

UNTERSUCHUNGEN ÜBER DIE ANWENDBARKEIT DER ALLGEMEINEN VISKOSITÄTSGLEICHUNG

Von

L. HALÁSZ und I. MONDVAI

Lehrstuhl für Kunststoff- und Gummiindustrie, Technische Universität, Budapest,

(Eingegangen am 2. Januar 1970)

Vorgelegt von Prof. Dr. GY. HARDY

In vorhergehenden Mitteilungen [1, 2] wurde über die rheologische Untersuchung der in großen Mengen erzeugten thermoplastischen Polymere, von Polyolefinen und von Vinylchlorid-Polymeren und Copolymeren berichtet. Es wurde die Anwendbarkeit der allgemeinen Viskositätsgleichung demonstriert; unsere Versuchsergebnisse stimmten gut mit den aus der allgemeinen Viskositätsgleichung bzw. ihrer transformierten Form abgeleiteten Resultaten überein. In vorliegender Arbeit wird über Untersuchungen an weiteren Gruppen der Thermoplaste, an Styrol- und Methacrylat-Polymeren und Copolymeren, an Butadien-Copolymeren und an natürlichen Kautschuken berichtet.

Versuchsmaterial und Methode

Die kennzeichnenden Daten der benutzten Styrol-Polymere und Copolymere sind in Tab. 1 ersichtlich. Die Fließkurven wurden mit Hilfe des in [3] beschriebenen Ausflußplastometers ermittelt. Über die Größen der angewandten Kapillaren berichteten wir in [1], über die Errechnungsweise der Werte der tatsächlichen Schubspannung, Schergeschwindigkeit und der maximalen Viskosität in [3].

Tabelle 1

Kennzeichnende Daten der untersuchten Styrol, Polymere und Copolymere

Benennung	Dichte g/ml 23 °C	Temperatur °C	Maximale Viskosität Poise	Bemerkung
Polystyrol D	1,06	180	$1,32 \cdot 10^7$	Sowjetisches Erzeugnis
		200	$4,89 \cdot 10^6$	
		220	$1,78 \cdot 10^6$	
		240	$5,11 \cdot 10^5$	
SzNP	1,05	200	$1,35 \cdot 10^7$	ABS-Copolymer Sowjetisches Erzeugnis
		220	$4,28 \cdot 10^6$	
		240	$7,27 \cdot 10^5$	
Vestyron HI	1,06	200	$1,80 \cdot 10^6$	BS-Copolymer Chem. Werke Hüls
		220	$5,50 \cdot 10^5$	
		240	$1,26 \cdot 10^5$	

Mit Hilfe von der Literatur entnommenen Daten [4–10] wurden die reduzierten Viskositätskurven für Styrol-Polymere und Copolymere (Tab. 2), für Methacrylat-Polymere und Copolymere (Tab. 3), weiterhin für Butadien-

Tabelle 2
Kennzeichnende Daten der Styrol-Polymere und Copolymere

Benennung	Dichte g/ml 23 °C	Temperatur °C	Maximale Viskosität Poise	Lite- ratur
Styron 475 (The Dow Chemical Comp.)	1,06	180	$1,51 \cdot 10^6$	[4]
		200	$8,01 \cdot 10^5$	
		230	$1,50 \cdot 10^5$	
		260	$4,00 \cdot 10^4$	
Tyril 767 (AS Copolymer The Dow Chem. Comp.)	1,06	200	$1,01 \cdot 10^6$	[4]
		220	$3,83 \cdot 10^5$	
Vestylon N (Chem. Werke Hüls)	1,05	200	$5,60 \cdot 10^5$	[5]
Vestylon MB (Chem. Werke Hüls)	1,05	200	$3,10 \cdot 10^5$	[5]

Tabelle 3
Kennzeichnende Daten der Methacrylat-Polymere und Copolymere

Benennung	Dichte g/ml 23 °C	Temperatur °C	Maximale Viskosität Poise	Lite- ratur
Lucite 130 (Du Pont)	1,17	150	$1,89 \cdot 10^6$	[4]
		200	$1,03 \cdot 10^7$	
		250	$1,23 \cdot 10^5$	
Lucite 140 (Du Pont)	1,19	230	$2,82 \cdot 10^6$	[4]
		260	$5,20 \cdot 10^5$	
		280	$6,02 \cdot 10^4$	
Plexiglas V 100 (Röhm u. Haas)	1,19	150	$3,16 \cdot 10^{12}$	[4]
		170	$3,08 \cdot 10^{10}$	
		190	$4,20 \cdot 10^8$	
		210	$1,17 \cdot 10^7$	
Plexiglas VM 100 (Methacrylat Copolymer, Röhm u. Haas)	1,19	230	$1,89 \cdot 10^5$	[4]
		150	$2,10 \cdot 10^{10}$	
		170	$4,20 \cdot 10^8$	
		190	$8,30 \cdot 10^6$	
Plexiglas VS 100 (Methacrylat Copolymer, Röhm u. Haas)	1,19	210	$3,18 \cdot 10^5$	[4]
		150	$9,10 \cdot 10^9$	
		170	$1,20 \cdot 10^8$	
		190	$2,10 \cdot 10^6$	
Implex A (Modifiziertes Methacrylat, Röhm u. Haas)	1,11	210	$3,00 \cdot 10^5$	[4]
		150	$7,45 \cdot 10^{11}$	
		170	$2,10 \cdot 10^{10}$	
		190	$7,01 \cdot 10^8$	
		210	$9,98 \cdot 10^7$	
		230	$2,50 \cdot 10^7$	

Tabelle 4

Kennzeichnende Daten der natürlichen Kautschuke
und Butadien-Copolymere

Benennung	Temperatur °C	Maximale Viskosität Poise	Lite- ratur
Smoked I.	100	$7,20 \cdot 10^6$	[6]
Smoked II.	100	$1,12 \cdot 10^7$	[7]
Weißkrepp	90	$7,84 \cdot 10^7$	[8]
Weißkrepp	100	$1,60 \cdot 10^9$	[9]
	140	$3,40 \cdot 10^7$	
	50	$6,10 \cdot 10^8$	
	60	$4,20 \cdot 10^8$	
GR-S	80	$1,80 \cdot 10^8$	
(Budadien-Styrol Copolymer)	100	$1,00 \cdot 10^8$	[10]
	120	$7,98 \cdot 10^7$	
	140	$6,10 \cdot 10^7$	

Copolymere und natürliche Kautschuke (Tab. 4) errechnet. Die aus [4, 5] übernommenen Daten wurden mit einem Kapillarviskosimeter, die aus [6–10] übernommenen mit einem Rotationsviskosimeter bestimmt.

Bei der Auswertung von Literaturdaten muß man berücksichtigen, daß aus den mit Kapillarviskosimeter gemessenen Daten die Schergeschwindigkeit mit Hilfe der Beziehung

$$\gamma_f = \frac{4Q}{\pi R^3}, \quad (1)$$

die Schubspannung aus

$$\tau_f = \frac{\Delta P R}{2L} \quad (2)$$

errechnet wurde; weder die Gleichung von RABINOVITSCH, noch der von METZGER und BRODKEY empfohlene differentiale Zusammenhang zur Beseitigung der Eintritts- und Endwirkungen wurden angewandt. Aus den mit Rotationsviskosimeter erhaltenen Daten erfolgte die Berechnung der Schergeschwindigkeit ebenfalls durch Annäherung. Die aus Literaturdaten errechneten reduzierten Viskositätswerte zeigten deshalb stärkere Streuung als unsere versuchsmäßig bestimmten Werte.

Versuchsergebnisse und ihre Wertung

Die Fließkurven der von uns untersuchten Polystyrole sind in Abb. 1, die der schlagfesten Copolymere in Abb. 2 dargestellt. Aus den Fließkurven ist zu sehen, daß das Potenzgesetz nur in sehr beschränktem Maße auf die untersuchten Polymere anwendbar ist. In Abb. 3 sind die Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und reduzierter Schergeschwindigkeit für

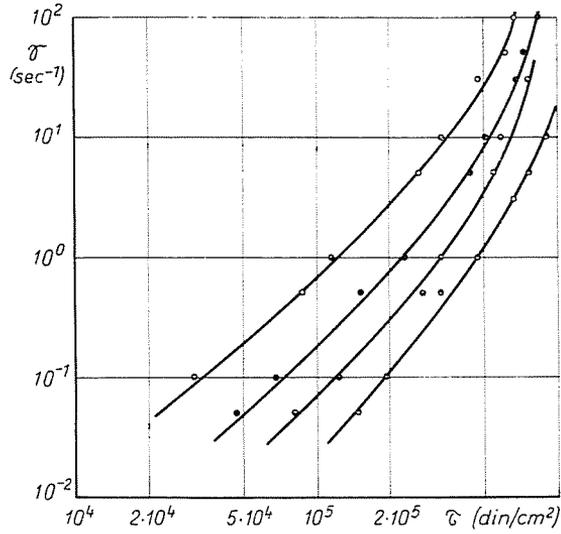


Abb. 1. Fließkurven von Polystyrol D
 ○: bei 180 °C; ◐: bei 200 °C; ●: bei 220 °C; ○: bei 240 °C

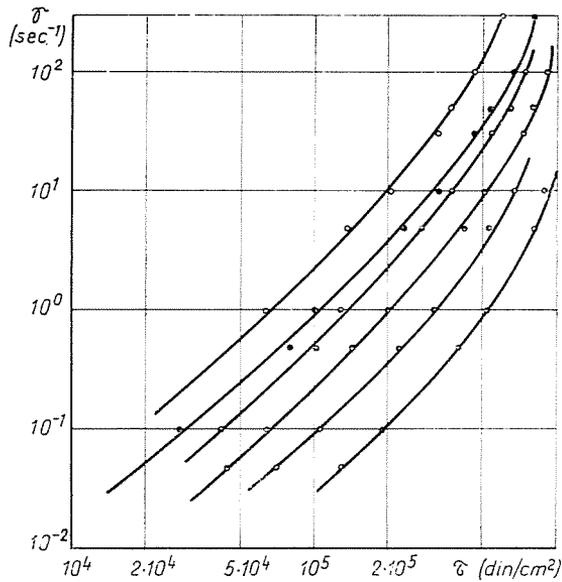


Abb. 2. Fließkurven von Polystyrolen. SzNP bei 200 °C: ○; ◐; ●; bei 220 °C: ◐; ●; bei 240 °C: ○; Vestyron HI bei 200 °C: ○; ◐; bei 220 °C: ◐; ●; bei 240 °C: ○

Styrol-Polymere und Copolymere, in Abb. 4 für Methacrylat-Polymere und Copolymere, in Abb. 5 für Butadien-Copolymere und natürliche Kautschuke enthalten. Mit ausgezogener Linien sind die aus der WINOGRADOW—MALKIN-

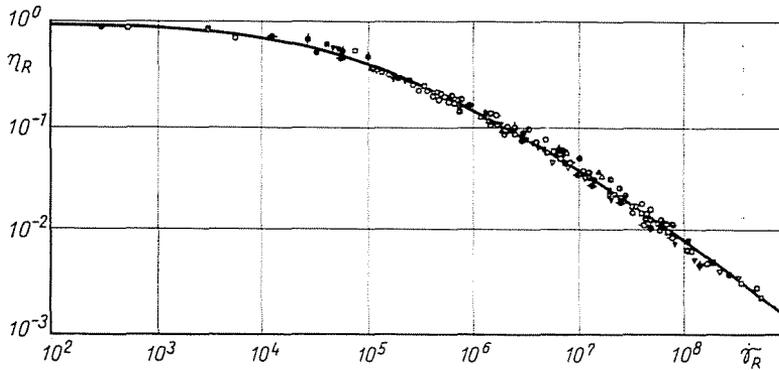


Abb. 3. Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und reduzierter Schergeschwindigkeit. Polystyrol D bei 180 °C: ▽, bei 200 °C: ▼, bei 220 °C: ▽, bei 240 °C: ▽; SzNP bei 200 °C: □, bei 220 °C: ■, bei 240 °C: ▣; Vestyron HI bei 200 °C: -O-, bei 220 °C: ●, bei 240 °C: ●-; Styron 475 bei 180 °C: ⊙, bei 200 °C: ⊙, bei 230 °C: ⊙, bei 260 °C: ⊙; Tyril 767 bei 200 °C: △, bei 220 °C: ▲; Vestyron N bei 200 °C: ○; Vestyron MB bei 200 °C: ●

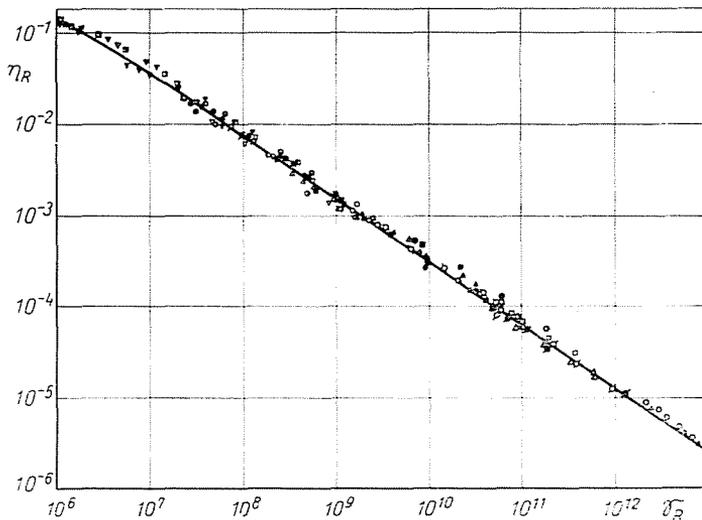


Abb. 4. Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und reduzierter Schergeschwindigkeit. Lucite 130 bei 150 °C: ●, bei 200 °C: ○, bei 250 °C: ●; Lucite 140 bei 230 °C: ⊙, bei 260 °C: ⊙, bei 280 °C: ⊙; Plexiglas V 100 bei 150 °C: △, bei 190 °C: ▲, bei 210 °C: ▽, bei 230 °C: ▲; Plexiglas VM 100 bei 150 °C: □, bei 170 °C: ■, bei 190 °C: ■, bei 210 °C: ■; Plexiglas VS 100 bei 150 °C: ▲, bei 170 °C: ▲, bei 190 °C: ▽, bei 210 °C: ▽; Implex A bei 150 °C: ○, bei 170 °C: ∅, bei 190 °C: ∅, bei 210 °C: ●, bei 230 °C: ●

sehen Gleichung

$$\eta_0/\eta = 1 + 6,12 \cdot 10^{-3} \gamma_R^{0,355} + 2,33 \cdot 10^{-4} \gamma_R^{0,71} \quad (3)$$

erhaltenen Werte bezeichnet.

In Abhängigkeit von der Schubspannung sind die reduzierten Viskositäts-
werte verschiedener Polymere und Copolymere aus Abb. 6 ersichtlich. Die aus-

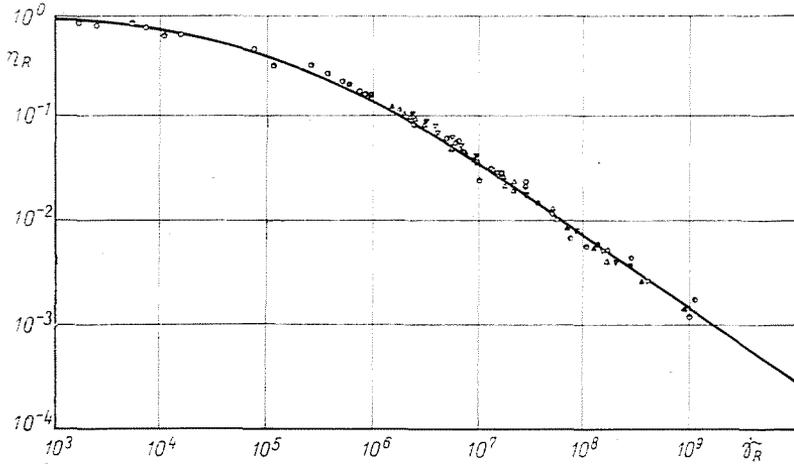


Abb. 5. Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und reduzierter Schergeschwindigkeit. Smoked I bei 100 °C: ○; Smoked II bei 100 °C: ⊙; Weißkreppe bei 90 °C: ⊕ bei 100 °C: ⊖, bei 140 °C: ⊗; GR-S bei 50 °C: △, bei 60 °C: ▲, bei 80 °C: ▽, bei 100 °C: ▼, bei 120 °C: ◀ bei 140 °C: ▶.

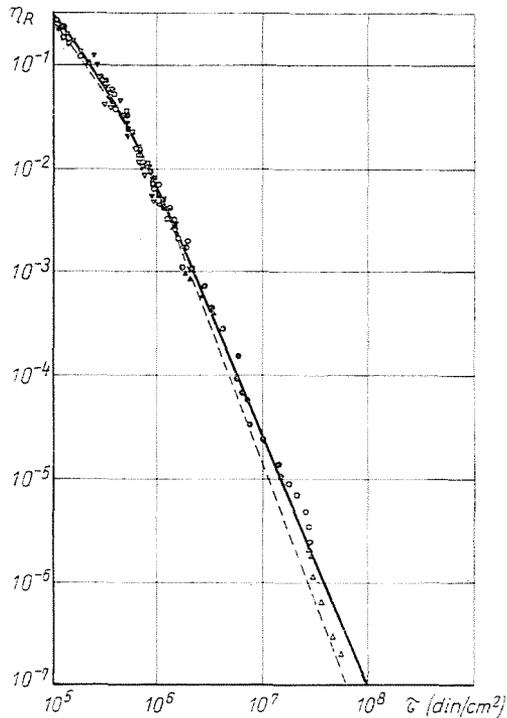


Abb. 6. Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und Schubspannung. Implex A bei 150 °C: ○, bei 170 °C: ⊙, bei 190 °C: ⊕, bei 210 °C: ⊖, bei 230 °C: ⊗; Plexiglas V 100 bei 150 °C: △, bei 190 °C: ▲; Polystyrol D bei 180 °C: ▽, bei 200 °C: ▼, bei 220 °C: ◀, bei 240 °C: ▶; SzNP bei 200 °C: □, bei 220 °C: ⊠, bei 240 °C: ⊡; Weißkreppe bei 100 °C: ⊕ bei 140 °C: ⊗.

gezogene Linie zeigt die aus der für die Schubspannung ausgedrückten Form der Gleichung (1), die punktierte Linie die aus der in Veröffentlichung [1] gegebenen Gleichung

$$\eta_0/\eta = 1 + 1,72 \cdot 10^{-4} \tau^{0,71} + 1,9 \cdot 10^{-7} \tau^{1,42} + 8,3 \cdot 10^{-16} \tau^{2,84} \quad (4)$$

ermittelten Werte.

Bei Polymeren und Copolymeren von Styrol fielen die gemessenen und aufgearbeiteten Werte in den Temperaturbereich zwischen 180—260 °C, in den Schubspannungsbereich von 10^2 — 10^6 dyn cm⁻² und in den reduzierten Schergeschwindigkeitsbereich zwischen 10^2 — 10^9 . Dieser Temperaturbereich liegt ziemlich weit von der Erstarrungstemperatur des Polystyrols, doch tritt noch keine thermische Zersetzung auf, das Fließen verläuft folglich ohne Molekulargewichtsveränderung. Diese Ergebnisse bezeugen in Einklang mit den Ergebnissen von WINOGRADOW und MALKIN [11], von PROSOROWSKAJA [12], weiterhin von SAMOSATSKIJ und ANDREJEW [13] die Anwendbarkeit der allgemeinen Viskositätsgleichung.

Für die Polymere und Copolymere des Methacrylats liegen die entsprechenden Werte im Temperaturbereich zwischen 150—280 °C, im Schubspannungsbereich von 10^4 — $5 \cdot 10^7$ dyn cm⁻² und im Bereich 10^6 — 10^{14} der reduzierten Viskosität. Wie in Tab. 3 zu sehen, sind die Werte der maximalen Viskosität bei 150 °C außerordentlich hoch, ein Umstand, der sich durch die relative Nähe der Erstarrungstemperatur erklären läßt. Aus Abb. 4 und 6 geht hervor, daß die allgemeine Viskositätsgleichung auch bei Methacrylat-Polymeren und Copolymeren anwendbar ist, was in der Literatur bis jetzt nicht angegeben wurde.

Bei natürlichen Kautschuken und Butadien-Styrol-Copolymeren lagen die entsprechenden Werte im Temperaturbereich von 50—140 °C, im Schubspannungsbereich von 10^3 — 10^6 dyn cm⁻² und im Bereich 10^3 — 10^{10} der reduzierten Viskosität. Die Ergebnisse lassen sich in Einklang mit den Messungen von WINOGRADOW und MALKIN [11] gut mit den vorgeführten Formen der allgemeinen Viskositätsgleichung beschreiben.

Die allgemeine Viskositätsgleichung findet man in der Literatur in verschiedenen Formen aufgeschrieben. Nach unseren Versuchsdaten wird durch Form (3) das Fließen verschiedener Polymere in einem breiten, bezüglich der Polymeraufarbeitung praktisch kompletten Schergeschwindigkeits- bzw. reduziertem Schergeschwindigkeitsbereich gut beschrieben. In Tab. 5 werden Gleichung (3) mit Gleichung

$$\eta_0/\eta = 1 + 6,12 \cdot 10^{-3} \dot{\gamma}_R^{0,355} + 2,85 \cdot 10^{-4} \dot{\gamma}_R^{0,71} \quad (5)$$

aus (14), weiterhin die vereinfachte Form von Gleichung (3)

$$\eta_0/\eta = 2,33 \cdot 10^{-4} \dot{\gamma}_R^{0,11} \quad (6)$$

Tabelle 5

Reduzierte Viskositätswerte aus Schubspannungen, mit Hilfe

Gleichung	Reduzierte Scherge-						
	10 ¹	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶	10 ⁷
(3)	9,9 · 10 ⁻¹	9,6 · 10 ⁻¹	9,1 · 10 ⁻¹	7,6 · 10 ⁻¹	4,6 · 10 ⁻¹	1,6 · 10 ⁻¹	4,1 · 10 ⁻²
(5)	9,9 · 10 ⁻¹	9,6 · 10 ⁻¹	9,0 · 10 ⁻¹	6,9 · 10 ⁻¹	4,2 · 10 ⁻¹	1,4 · 10 ⁻¹	3,4 · 10 ⁻²
(6)					1,2	2,4 · 10 ⁻¹	4,5 · 10 ⁻²
(7)	9,9 · 10 ⁻¹	9,6 · 10 ⁻¹	9,1 · 10 ⁻¹	7,6 · 10 ⁻¹	4,6 · 10 ⁻¹	1,6 · 10 ⁻¹	4,0 · 10 ⁻²

Tabelle 6

Reduzierte Viskositätswerte aus Schubspannungen mit Hilfe

Gleichung	Schubspannung						
	9,87	96,43	9,07 · 10 ²	7,56 · 10 ²	4,57 · 10 ⁴	1,65 · 10 ⁵	4,06 · 10 ⁵
(3)	9,9 · 10 ⁻¹	9,6 · 10 ⁻¹	9,1 · 10 ⁻¹	7,6 · 10 ⁻¹	4,6 · 10 ⁻¹	1,6 · 10 ⁻¹	4,1 · 10 ⁻²
(4)	1,0	9,9 · 10 ⁻¹	9,8 · 10 ⁻¹	9,4 · 10 ⁻¹	4,7 · 10 ⁻¹	1,3 · 10 ⁻¹	3,7 · 10 ⁻²
(8)	9,9 · 10 ⁻¹	9,6 · 10 ⁻¹	9,0 · 10 ⁻¹	7,4 · 10 ⁻¹	4,9 · 10 ⁻¹	1,6 · 10 ⁻¹	4,0 · 10 ⁻²
	10 ¹	10 ²	10 ³	10 ⁴	10 ⁵	10 ⁶	10 ⁷

und Gleichung

$$\eta_0/\eta = 1 + 6,12 \cdot 10^{-3} \dot{\gamma}_R^{0,355} + 2,35 \cdot 10^{-4} \dot{\gamma}_R^{0,71} \quad (7)$$

aus [15] miteinander verglichen, die alle Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und reduzierter Schergeschwindigkeit darstellen.

Wie zu sehen, stimmen die mit Hilfe von Gleichung (3) — deren Gültigkeit für verschiedene Polymere auch durch unsere Versuche bewiesen wurde — und Gleichung (7) errechneten Werte der reduzierten Viskosität miteinander gut überein, die Höchstabweichung zwischen ihnen betrug weniger als 1%. Eine größere Abweichung besteht zwischen den mit Gleichung (3) und (5) errechneten Werten (Höchstabweichung 18%). Gleichung (6) darf nur bei Werten der reduzierten Schergeschwindigkeit über 10⁸ herangezogen werden, da bei niedrigeren Werten die Abweichung rasch zunimmt.

In Tab. 6 wurden die Gleichungen verglichen, die die Zusammenhänge zwischen reduzierter Viskosität und Schubspannung ausdrücken. In der Tab. sind die für Schubspannung ausgedrückte Form der Gleichung (3), die durch Regressionsanalyse der für Polyolefine erhaltenen Versuchsergebnisse erhal-

von verschiedene n Formen der allgemeinen Viskositätsgleichung berechnet

schwindigkeit							
10^8	10^9	10^{10}	10^{11}	10^{12}	10^{13}	10^{14}	10^{15}
$8,6 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$	$3,4 \cdot 10^{-4}$	$6,6 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$2,5 \cdot 10^{-6}$	$4,9 \cdot 10^{-7}$	$9,6 \cdot 10^{-8}$
$7,1 \cdot 10^{-3}$	$1,4 \cdot 10^{-3}$	$2,8 \cdot 10^{-4}$	$5,4 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^{-5}$	$2,1 \cdot 10^{-6}$	$4,0 \cdot 10^{-7}$	$7,8 \cdot 10^{-8}$
$8,6 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$	$3,4 \cdot 10^{-4}$	$6,7 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$2,6 \cdot 10^{-6}$	$4,9 \cdot 10^{-7}$	$9,6 \cdot 10^{-8}$
$8,5 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$	$3,4 \cdot 10^{-4}$	$6,6 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$2,5 \cdot 10^{-6}$	$4,9 \cdot 10^{-7}$	$9,5 \cdot 10^{-8}$

von verschiedenen Formen der allgemeinen Viskositätsgleichung berechnet

(din/cm ²)							
$8,58 \cdot 10^6$	$1,71 \cdot 10^6$	$3,38 \cdot 10^6$	$6,61 \cdot 10^6$	$1,29 \cdot 10^7$	$2,53 \cdot 10^7$	$4,93 \cdot 10^7$	$9,60 \cdot 10^7$
$8,6 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$	$3,4 \cdot 10^{-4}$	$6,6 \cdot 10^{-4}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$2,5 \cdot 10^{-6}$	$4,9 \cdot 10^{-7}$	$9,6 \cdot 10^{-8}$
$8,7 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-3}$	$3,3 \cdot 10^{-4}$	$4,9 \cdot 10^{-5}$	$7,6 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^{-6}$	$1,8 \cdot 10^{-7}$	$2,3 \cdot 10^{-8}$
$8,4 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$	$3,4 \cdot 10^{-4}$	$6,6 \cdot 10^{-4}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$2,7 \cdot 10^{-6}$	$4,9 \cdot 10^{-7}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$
10^8	10^9	10^{10}	10^{11}	10^{12}	10^{13}	10^{14}	10^{15}

Reduzierte Schergeschwindigkeit

tene Gleichung (4), weiterhin die durch Regressionsanalyse aller Versuchsergebnisse erhaltene Gleichung

$$\eta_0/\eta = 1 + 5 \cdot 10^{-3}\tau^{0,34} + 5,75 \cdot 10^{-4}\tau^{0,68} + 8,8 \cdot 10^{-13}\tau^{2,38} \quad (8)$$

enthalten.

Wie ersichtlich, ist die auf reduzierte Viskosität berechnete Höchstabweichung zwischen der für Schubspannung ausgedrückten Form von Gleichung (3) und der von uns eingeführten Gleichung (8) nicht höher als 8%, im Durchschnitt beträgt sie 3–4%. Die aus Gleichung (4) berechneten Viskositätswerte stimmen nach unseren Erfahrungen im Fall von Polyolefinen [1] und PVC-Gemischen [2] bei höheren Schubspannungen besser mit den Versuchsergebnissen überein, als die aus der für Schubspannung ausgedrückten Form von Gleichung (3) abgeleiteten. Es zeigt sich weiterhin, daß über einer Schubspannung von $3,4 \cdot 10^6$ dyn cm⁻² die aus Gleichung (3) und (4) errechneten Viskositätswerte voneinander stark abweichen, wahrscheinlich deshalb, weil nur Versuchsergebnisse aus dem Bereich unter 10^{10} reduzierter Schergeschwindigkeit für die Aufstellung von Gleichung (3) zur Verfügung standen.

Zusammenfassung

Die Gültigkeit der allgemeinen Viskositätsgleichung wurde durch die rheologische Untersuchung von verschiedenen thermoplastischen Polymeren und Copolymeren an zahlreichen neuen Beispielen bewiesen. Die in der Literatur vorhandenen verschiedenen Formen der Gleichung wurden mit den von Verfassern durch Regressionsanalyse der Versuchsdaten erhaltenen Gleichungen verglichen. Abweichungen zeigten sich nur im Meßbereich über 10^{10} reduzierter Schergeschwindigkeit.

Literatur

1. HALÁSZ, L.—MONDVAI, I.: *Műanyag és Gumi* 7, 159(1970). *Periodica Polytech.* 15, 169 (1971)
2. MONDVAI, I.—HALÁSZ, L.—MOLNÁR, I.: *Műanyag és Gumi* 7, 198 (1970). *Periodica Polytech.* 15, 203 (1971).
3. HALÁSZ, L.—MONDVAI, I.: *Műanyag és Gumi* 6, 427 (1969). *Periodica Polytech.* 13, 337 (1969).
4. BERNHARDT, E. C.: *Processing of thermoplastics materials*. Reinhold Publ. Corp., New York, 1960.
5. BARTOS, O.: *J. Appl. Polymer Sci.* 35, 2767 (1964).
6. PIPER, G. H.—SCOTT, J. R.: *J. Sci. Instr.* 22, 206 (1946).
7. SAUNDERS, D. W.—TRELOAR, L. R. G.: *Trans. Inst. Rubber Ind.* 24, 92 (1948).
8. HAMM, G. G.: Thesis, Naamloze Vennoetschap, W. D. Meinema, Delft, 1946.
9. MOONEY, M.: *Physics* 7, 413 (1936).
10. TRELOAR, L. R. G.: *Trans. Inst. Rubber Ind.* 25, 167 (1949).
11. WINOGRADOW, G. W.—MALKIN, A. JA.: *Dokl. Akad. Nauk. SSSR* 150, 574 (1963).
12. PROSOROWSKAJA, N. W.: *Pererabotka plastitscheskih mass*. Izd. Himija, Moskau, 1966 S. 26.
13. SAMOSATSKIJ, N. N.—ANDREEW, A. P.: s. 12. S. 31.
14. WINOGRADOW, G. W.—MALKIN, A. JA.: *J. Polymer Sci.* A4, 135 (1966).
15. WINOGRADOW, G. W.—MALKIN, A. JA.: *Dokl. Akad. Nauk SSSR* 154, 890 (1963).

Dr. László HALÁSZ }
 Dr. Imre MONDVAI } Budapest XI., Műegyetem rkp. 3, Ungarn