

Diss. ETH No. 6664

BIAXIAL EXTENSIONAL FLOW OF POLYMER MELTS
AND ITS REALIZATION IN A NEWLY DEVELOPED RHEOMETER

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZÜRICH

for the degree of
Doctor of Technical Sciences

presented by

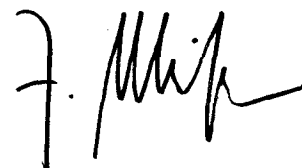
Stuart Eugen Stephenson
B.Sc., B.E., M.Eng.Sc.

born 18th September 1949
citizen of Australia

accepted on the recommendation of

Prof. J. Meissner, referee

Prof. M. Sayir, co-referee



1980

ABSTRACT

The general nature of biaxial elongation and its importance both technologically and theoretically is discussed briefly. A classification system and two types of material functions suitable for describing such flows are proposed. Elongational viscosities for steady extension beginning at time $t=0$ are defined, which, unlike the present definitions, reduce to the shear viscosity for deformations within the linear viscoelastic range. Secondly, kernel functions arising in the integral expansion of the constitutive equation for a simple fluid are considered.

Practical realization of biaxial elongation of polymer melts is discussed and the principles underlying a new type of biaxial extensional rheometer are explained. Before attempting more ambitious experiments in general biaxial elongation, simpler experiments in equibiaxial strain have been attempted. In this way it has been possible to test the operation of the rheometer and to show that the proposed design can indeed produce very large, homogeneous strains in a polymer melt initially at rest. In equibiaxial experiments on polyisobutylene at room temperature, radial Hencky strains in excess of 3.2 have been reached. This corresponds to a compression in the axial direction by a factor of more than 600.

The rheometer is not restricted to experiments in equibiaxial elongation and may be used for any form of biaxial experiment in which the rates of strain in two perpendicular directions remain positive and proportional throughout a test. Further development of the rheometer to allow biaxial elongation in which the strain rates in two directions are not proportional but may vary independently during a test is considered in conclusion. The determination of both stress and strain within the sample is dealt with in detail, not only for equibiaxial elongation but also for more general test modes.

The results obtained in tests on polyisobutylene in

equibiaxial extension are compared with the results of tests on the same material in both uniaxial extension and shear. Whereas previous experiments on polyisobutylenes using the bubble inflation technique have indicated that a rheological steady state is attainable at relatively small strains, the experiments reported here, for strains twice as large as previously possible, show that no such steady state is achieved.

ZUSAMMENFASSUNG

Die Biaxiale Dehnungsdeformation ist bei der Untersuchung des rheologischen Verhaltens von Polymer-Schmelzen besonders aussagekräftig, und zwar für theoretische Aspekte der Rheologie, nämlich für die Aufstellung der 'richtigen' Stoffgleichung (Constitutive Equation), ebenso wie für anwendungstechnische Aspekte in Bereich der Kunststoff-Verarbeitung. Wenn die Hauptdehngeschwindigkeiten zeitlich konstant sind, so wird gezeigt, dass sich die verschiedenartigen Dehnströmungen durch das dann konstante Verhältnis der beiden grössten Dehngeschwindigkeiten leicht klassifizieren lassen. Dabei wird InkompRESSibilität der Schmelzen vorausgesetzt. Dementsprechend wird bei derartigen Dehnströmungen das Materialverhalten durch zwei hier eingeführte zeitabhängige Materialfunktionen ("Dehnaviskositäten") erfasst, die im linear-viscoelastischen Grenzfall - im Gegensatz zu den Definitionen anderer Autoren - mit der linear-viskoelastischen Scherviskosität übereinstimmen. Aus dem allgemeinen Ansatz für die Stoffgleichung einfacher Flüssigkeiten folgen bei einer Integral-Entwicklung Kernfunktionen, die für das erste Glied der Integralreihe in die Betrachtung einbezogen werden.

Die praktische Durchführung der biaxialen Dehnung wird diskutiert, und es werden die Prinzipien erläutert, mit dem ein neuartiges Rheometer zur biaxialen Dehnung von Polymer-Schmelzen entwickelt worden ist. Mit diesem Rheometer sind vorerst äquibiaxiale Dehnversuche ausgeführt worden, die sich durch gute Homogenität und durch grosse erreichbare Gesamtdehnungen auszeichnen. Bei derartigen Versuchen mit Polyisobutylene konnten Gesamtdehnungen nach HENCKY von über 3,2 erzielt werden, was einer Kompression in der dritten Richtung um mehr als den Faktor 600 entspricht.

Das Rheometer ist nicht ausschliesslich für äquibiaxiale Dehnungsversuche ausgelegt und könnte für beliebige biaxiale Dehnungsversuche verwendet werden, so lange das Verhältnis zweier Hauptdehnungsgeschwindigkeiten positiv und während der Versuchsdauer konstant ist. Die Weiterentwicklung des Rheometers für Versuche, bei denen sich dieses Verhältnis zeitlich ändert, wird am Ende der Arbeit diskutiert. Die Ermittlung des Spannungs- und Deformationszustandes innerhalb der Probe wird ausführlich beschrieben, nicht nur für äquibiaxiale, sondern auch für allgemeinere Versuchsführungen.

Die Ergebnisse von biaxialen Dehnversuchen, die mit Polyisobutylen durchgeführt worden sind, werden mit den Ergebnissen anderer Versuchsführungen (einfacher Zug, einfache Scherung) verglichen. Während ältere Untersuchungen an Polyisobutylen mit der 'bubble-inflation-technique' andeuteten, dass ein rheologisch-stationärer Zustand schon bei relativ kleinen Dehnungen vorliegt, zeigen die hier beschriebenen Ergebnisse, dass bis zu einer doppelt so grossen Gesamtdehnung ein solcher rheologisch-stationärer Zustand nicht existiert.