

De fysica van polymere materialen

rede

uitgesproken ter gelegenheid van de aanvaarding
van het ambt van buitengewoon
hoogleraar in de

FYSICA VAN POLYMERE MATERIALEN

aan de Universiteit Twente
op donderdag 22 januari 1987

door:
Dr.Ir. L.C.E. Struik

Mijnheer de Rector Magnificus,

Dames en heren,

Toen deze Universiteit mij medio 1985 vroeg om onderwijs te komen geven in de fysica van vaste polymere materialen ben ik daar om twee redenen op ingegaan. Ten eerste omdat het mij van belang lijkt dat dit vak in Nederland op een wat meer integrale wijze onderwezen gaat worden, ten tweede omdat het een goede zaak is dat er meer personele unies komen tussen TNO instituten en Universiteiten. Op beide punten zal ik achtereenvolgens ingaan. Eerst wil ik echter iets opmerken over de manier waarop polymere materialen toegepast worden in de moderne techniek; het is immers deze toepassing die de vraag naar onderwijs genereert.

1. Het gebruik van polymere materialen in de moderne techniek

In de jaren 40-60 werden kunststoffen voornamelijk gebruikt voor produkten als knopen, balpenhouders, huishoudelijke artikelen, elektriciteitspijp, verpakkingsfolie, e.d. De vraag was enorm, de afzet groeide met 10-20% per jaar en de R&D was grotendeels gericht op de chemie (produktie en ontwikkeling van (nieuwe) polymeren) en op de verwerking (vormgeving van tussen- of eindprodukten). De voorspelling van het fysisch gedrag van het produkt was van secundair belang, behalve in speciale gevallen zoals b.v. buizen.

Die tijd ligt nu achter ons. In de jaren 70 en 80 zijn kunststoffen serieuze engineering materialen geworden. Men maakt er produkten en constructies van waaraan hoge eisen worden gesteld en waarbij het er echt op aan komt, b.v. doordat mechanisch falen zeer grote schade kan veroorzaken. Enkele voorbeelden:

- Het kielvlak van de nieuwe Airbus A.320 (ca. 10 meter hoog) wordt geconstrueerd uit kunststof composiet materiaal (koolstof-epoxy)¹).
- In West-Duitsland is een brug gebouwd waarbij de voorspanstaven in het beton gemaakt zijn van glasvezel versterkte kunststof (i.p.v. staal; TV reportage op WDR1 op 9-11-1986 n.a.v. de kunststofbeurs K86 te Düsseldorf).

- De Oosterscheldedam (waarde $>5 \times 10^9$ fl.) is mede gefundeerd m.b.v. kunststof geotextielen (o.a. polypropreen en polyester). Deze fundatie moet ca. 200 jaar blijven functioneren, bij voortijdig falen is reparatie nagenoeg onmogelijk. Op andere plaatsen in de Deltawerken zijn kunststof (en rubber) onderdelen op vergelijkbaar kritische plaatsen toegepast²⁾.
- Als laatste (dramatisch) voorbeeld kan de ramp met de Space Shuttle worden aangehaald; falende rubber ringen lijken, behalve de dood van de zeven astronauten, een schade te hebben veroorzaakt van meer dan 10^{10} fl. en een aanzienlijke vertraging in het Amerikaanse ruimtevaartprogramma.

Overigens gaat het niet altijd om dergelijke enkel-stuks of kleine-serie producten met een hoog afbreuk (schade) risico. Kunststoffen worden ook steeds meer toegepast als onderdelen van producten die in enorme aantallen worden vervaardigd en gedistribueerd (b.v. auto's³⁾). Deze kunststof onderdelen mogen net zo min falen, immers daardoor zou het gehele groot-schalige productie/distributie systeem worden verstoord. Ten slotte, soms worden er vooral hoge eisen gesteld omdat de kunststof onderdelen gebruikt worden in precisieproducten. Een voorbeeld vormt de compact-disk technologie⁴⁾ waarbij tolerantie eisen van $1 \mu\text{m}$ geen zeldzaamheid zijn.

Kunststoffen zijn de aanloopfase van de huishoudemmers en boterhamzakjes dus ontgroeid; het zijn serieuze hoogwaardige engineering materialen geworden. Hetzelfde geldt voor polymere materialen als rubbers, organische coatings en lijmen.

De moderne wijze van gebruik van polymere materialen verklaart de toegenomen belangstelling voor fysische zaken als een betrouwbare beschrijving en voorspelling van het mechanische en elektrische gedrag, inclusief dat op de (zeer) lange termijn. Constructeurs, werktuig- en vliegtuigbouwers, civiel ingenieurs en produktontwikkelaars hebben deze kennis nodig om hun werk naar behoren te kunnen doen. Indien wij, polymeerchemici en polymeerfysici deze kennis niet aanreiken zal de verdere ontwikkeling van het gebruik van polymere materialen kunnen worden gefrustreerd.

2. De noodzaak van onderwijs

Bezien we het vakgebied van de fysica van (vaste) polymere materialen dan vallen er onmiddellijk twee dingen op:

- a) Als geïntegreerd vakgebied bestaat het eigenlijk niet, zeker niet in Nederland. Gezien de historische ontwikkeling is dat ook goed te begrijpen; tot voor kort lag het accent immers op chemie, verwerking, vormgeving en op b.v. fundamenteel onderzoek aan polymeren in oplossing. In Nederland werd het vak, buiten de industriële laboratoria, dan ook nauwelijks integraal beoefend, behalve binnen de school die Staverman in 1946 binnen TNO heeft opgezet (zie par. 5).
- b) Er is de laatste 100 jaar voldoende relevante kennis opgebouwd om aan de eerste behoeften van de toepassers te kunnen voldoen. Een probleem is echter dat deze kennis meestal is opgebouwd in geheel andere vakgebieden. Zo kan men het sterk tijdsafhankelijke gedrag van polymere materialen veelal beschrijven met de theorie van de lineaire systemen, maar deze theorie is vooral ontwikkeld in de elektrotechniek en de regeltechniek. Voor de inwendige spanningen die optreden in b.v. spuitgietprodukten kan men gebruik maken van theorieën die zijn ontwikkeld in de glastechnologie (productie van ongelaaagd veiligheidsglas). Om het elektrisch gedrag van polymeren te beschrijven kan men de vaste-stof-fysica gebruiken, maar dat vak is weer vooral ontwikkeld t.b.v. de halfgeleiders. Breukverschijnselen kunnen worden geanalyseerd m.b.v. de breukmechanica, een vakgebied dat vooral ontwikkeld werd voor metalen en dientengevolge behept is met een aantal concepten die slecht bij kunststoffen passen.

Kortom, als vakgebied is de fysica van polymere materialen niet veel meer dan een samenraapsel. Omdat de behoefte aan kennis momenteel vooral van de toepassers komt (constructeurs, etc.) is het zaak het vakgebied zo snel mogelijk in kaart te brengen en toepasbaar te maken voor de "afnemers". Van deze afnemers mag immers niet worden verwacht dat zij de "vertaalslag" gaan uitvoeren. Als eerste prioriteit zie ik dan ook het toegankelijk maken van wat er bekend is, onderwijs dus. Ik zal dat nu aan de hand van twee voorbeelden (tijdsafhankelijk gedrag, breukmechanica) pogen te illustreren.

Het tijdsafhankelijk gedrag: een illustratie van de kloof tussen beschikbare, benodigde en toegepaste kennis

Bij kunststoffen en rubbers is het mechanisch (en ook elektrische) gedrag sterk tijdsafhankelijk. Indien een kunststof wordt belast met een constante trekspanning kan de rek, die na 1 seconde b.v. 0,02% bedroeg, na 1 maand tot 1% te zijn opgelopen (50X meer). Deze tijdsafhankelijkheid is te dominerend om nog als storende complicate te kunnen worden beschouwd. Het is in feite een wezenlijke karakteristiek van het vertraagd elastisch reagerende materiaal. De vraag is: wat moet een constructeur met dit soort verschijnselen? Mijn suggestie is: accepteren dat ze er zijn en de geëigende beschrijvingsmethoden gebruiken.

Bij tijdsafhankelijk gedrag zijn er twee mogelijkheden:

- a) **Lineair gedrag**; de deformaties en spanningen zijn zo klein dat de materiaaleigenschappen niet door het deformatieproces worden veranderd.
- b. **Niet-lineair gedrag**; de materiaaleigenschappen worden wel veranderd.

Voor het lineaire gedrag is er een uitstekende beschrijvingsmethode beschikbaar (speciaal geval van de theorie van de lineaire systemen). Ze werd oorspronkelijk geformuleerd door Boltzmann⁵⁾ en in de jaren 40-60 tot verregaande perfectie ontwikkeld^{6/9)}. Voor het niet-lineaire gedrag zijn er vele theorieën, meestal uiterst ingewikkeld⁸⁾, maar naar ik vrees om praktische en principiële redenen niet toepasbaar voor vaste polymere materialen. Gelukkig ligt bij kunststoffen de grens van lineair gedrag zeer hoog, nl. bij deformaties van 0,5-1%. De deformaties waarop wordt ontworpen liggen meestal lager, vandaar dat de z.g. lineair-viscoelastische theorie voor kunststoffen zeer breed kan worden toegepast. Bij metalen is dit anders: het lineaire gebied ligt meestal bij deformaties die (veel) kleiner zijn dan de in de praktijk gebruikelijke. Vandaar dat de lineair viscoelastische theorie voor metalen¹⁰⁾ nauwelijks wordt toegepast.

In dit verband is het van belang erop te wijzen dat het tijdsafhankelijk gedrag (b.v. kruip) onder praktijkomstandigheden bij kunststoffen en metalen meestal een totaal andere oorzaak heeft. Bij metalen gaat het om vloeï (secundaire kruip) of om een begin van breuk (tertiaire kruip); de kruip is sterk niet-lineair, d.w.z. de kruipsnelheid hangt in hoge mate af van het spanningsniveau en bij zeer kleine spanningen wordt het kruipverschijnsel onbelangrijk. Bij kunststoffen gaat het (binnen de ontwerp omstandigheden) bijna

nooit om vloeï of niet-lineaire verschijnselen; de kruip is eenvoudig een vertraagd-elastisch effect en blijft bij willekeurig lage belasting, relatief gezien, even belangrijk. Dit verschil verklaart de verwarring die ontstaat wanneer kunststof- of metaaltechnici met elkaar over een verschijnsel als kruip spreken. Het betekent ook dat we voorzichtig moeten zijn met het "over en weer" toepassen van test/ontwerpmethoden; deze methoden zijn veelal gebaseerd op concepten die moeilijk overdraagbaar zijn.

Keren we terug naar de toepassing van de lineair viscoelastische theorie op kunststoffen. Deze toepassing wordt door twee oorzaken bemoeilijkt:

- a) **Conceptuele moeilijkheden.** Ten eerste moeten we een aantal zaken afleren (rek is een functie van de spanning, wet van Hooke), ten tweede moeten we leren denken in de begrippen van de systeemtheorie. Het materiaal wordt gezien als een "black-box"; de spanning $\sigma(t)$ (een tijdsfunctie) als "input" en de rek $\epsilon(t)$ (ook een tijdsfunctie) als "output". De materiaaleigenschap beschrijft hoe deze tijdsfuncties van elkaar afhangen. In het algemeen heeft men voor de beschrijving convolutie integralen nodig.
- b) **Wiskundige moeilijkheden.** Een van de weinige mogelijkheden om effectief aan viscoelastische materialen te rekenen is gebruik te maken van de complexe rekenwijze en van Fourier- en Laplace transformaties. Wat dit betreft is de situatie niet anders dan in de elektrotechniek. Veelal echter missen niet alleen de toepassers maar ook de polymeertechnologen deze hulpmiddelen; ze zijn dan gedwongen inadequate hulpmiddelen als veren- en zuigermodellen toe te passen.

Mits goed gebruikt, vormt de lineair-viscoelastische theorie een uiterst krachtig hulpmiddel. Men kan er constructies mee doorrekenen, maar b.v. ook mee voorspellen hoe groot de plooiën worden die ontstaan wanneer een folie met ongelijke dikteverdeling na opslag van een rol wordt afgewikkeld¹¹⁾. Verder werd in de jaren 40-60 het z.g. *correspondentie principe* afgeleid^{7) 8)}. Dit zegt dat men voor viscoelastische materialen in veel gevallen gebruik kan maken van de spannings/deformatieverdeling die gevonden wordt voor een zuiver elastisch materiaal. Indien evenwichtsvergelijking, compatibiliteitsvergelijking, randvoorwaarden en de viscoelastische constitutieve vergelijking Laplace-getransformeerd worden, ontstaan in het s-domein vergelijkingen die identiek zijn met die van de (gewone) elasticiteitstheorie. De (voorhanden) oplossing voor het elastische geval levert dus voor het

viscoelastische geval de oplossing in het s-domein; door terug transformatie vindt men de oplossing in het tijdsdomein. Voor ingewikkelde geometrieën zijn er meestal geen analytische oplossingen voor het elastische geval voorhanden. In die gevallen kan men echter tegenwoordig gebruik maken van krachtige eindige elementen programma's. Het is, gezien het correspondentie principe niet nodig in deze programma's de elementen viscoelastisch te maken. Het is meestal voldoende om met het eindige elementen programma het elastisch analogon door te rekenen; op basis van de aldus verkregen oplossing kunnen dan uitspraken gedaan worden omtrent het viscoelastische geval. Het correspondentie principe en de Laplace transformaties geven dan een enorme vereenvoudiging van het rekenprobleem; het zijn dus zeer *praktische* hulpmiddelen (voor een voorbeeld en voor de analogie met de elektrotechniek, zie ¹²⁾).

De viscoelastische theorie is ook toepasbaar in gevallen waarin tijdens het deformatieproces de mechanische eigenschappen veranderen t.g.v. veranderingen in temperatuur, vochtigheid, oplosmiddelconcentratie, chemische reacties, fysische veroudering, enz. Voorwaarde is dat deze veranderingen uitsluitend de snelheid van de mechanische responsie beïnvloeden; dit is een uitbreiding van het begrip "thermorheologisch eenvoudig gedrag", ingevoerd door Schwarzl en Staverman in 1952¹³⁾. De wiskundige uitwerking is minstens 30 jaar geleden geformuleerd¹⁴⁾ en de theorie is op zeer veel verschillende problemen toegepast. Enkele voorbeelden:

- Effect van verwerkingsomstandigheden op produkteigenschappen zoals krimp, maatvastheid, e.d. Krimp is, in een aantal gevallen, niets anders dan de trage reactie op het niet-isotherme deformatieproces tijdens de vormgeving¹⁵⁻¹⁷⁾.
- Berekening van de ingevroren thermische spanningen die ontstaan t.g.v. snel inhomogeen afkoelen in een matrix¹⁷⁾.
- Berekening van de lange-duur kruip voor het geval dat de kruipeigenschappen tijdens het kruipproces veranderen door fysische veroudering¹⁸⁾.

Enkele andere toepassingsmogelijkheden zijn: de berekening van de inwendige spanningen die ontstaan in een uithardende lijm of verflaag, of de berekening van de inwendige spanningen t.g.v. de harsuitharding in een compo-

siet. Ten slotte enkele alledaagse voorbeelden: met deze theorie kan in principe de stabiliteit van een door de kapper aangebrachte watergolf worden voorspeld, of de stabiliteit van een door strijken of persen aangebrachte vouw in een kledingstuk.

Bovenstaande uitweiding diende om aan te geven wat er zoal "op de plank ligt" om gebruikt te worden. Zoals eerder gezegd, het overdragen en toegankelijk maken van dit soort kennis zie ik als mijn eerste taak. Daarbij zal ik mij vanzelfsprekend niet beperken tot de viscoelastische theorie. Ook op andere gebieden van de polymeerfysica heersen er onduidelijkheden en/of misverstanden en is een grondig in kaart brengen zeker geboden.

Breukmechanica

Als tweede voorbeeld bezien we de breukmechanica. Deze werd oorspronkelijk ontwikkeld om te verklaren waarom de feitelijke sterkte van materialen zoveel lager (b.v. een factor 100) ligt dan de theoretische sterkte. Als verklaring werd voorgesteld dat materialen defecten (flaws) bevatten, die zich catastrofaal gaan uitbreiden lang voordat de theoretisch mogelijke belasting wordt bereikt. Deze theorie werd oorspronkelijk ontwikkeld voor brosse materialen zoals glas, later uitgebreid naar metalen en momenteel ook veelvuldig toegepast op kunststoffen. Hierbij wordt dan echter voorbijgegaan aan het feit dat kunststoffen, in tegenstelling tot de meeste andere materialen, wel degelijk hun theoretische sterkte kunnen bereiken of benaderen, iets waarop in 1958 werd gewezen door Buchdahl¹⁹). Voor kunststoffen is dus de oorspronkelijke motivering voor de breukmechanica niet relevant. Het is derhalve nog maar de vraag of de vele breukmechanische proeven aan gekerfde monsters die momenteel overal aan kunststoffen worden uitgevoerd veel zeggen over het faalgedrag in de praktijk.

3. Onderzoek

Zoals gezegd ligt mijn eerste prioriteit in het onderwijs. Dat neemt echter niet weg dat ik graag een bijdrage zou willen leveren aan het onderzoek dat aan deze Universiteit plaatsvindt. In eerste instantie zal ik mij aansluiten bij het onderzoek dat nu binnen de vakgroep van de Macromoleculaire Chemie en Materiaalkunde loopt. In een later stadium zou ik graag, samen met collega's van de faculteit der Technische Natuurkunde, enkele projecten willen starten als hieronder geschetst.

- a. **Niet-lineair viscoelastisch gedrag.** Zoals gezegd, er is geen bruikbare beschrijving voor het niet-lineaire gedrag van vaste polymeren; deze moet er echter wel komen. De ontwerpdeformaties voor kunststoffen liggen weliswaar in het lineaire gebied, maar kunststof producten falen omdat de lineariteitsgrens lokaal overschreden wordt, ofwel door inwendige spanningsconcentraties ofwel door uitwendige oorzaken (slag of stoot, ongelijke belasting van bijv. een buis op een slechte ondergrond, enz.). De spanningsconcentraties kunnen (gedeeltelijk) relaxeren d.m.v. een lokaal versnelde niet-lineaire spanningsrelaxatie, maar tijdens dit proces kan ook breuk worden ingeleid. Zolang we geen goede beschrijving bezitten van het niet-lineaire viscoelastische gedrag bestaat er dan ook weinig kans op doorbraken ten aanzien van verschijnselen als breuk, crazing, milieu-spanningsbroosheid, e.d. Het is dan ook van groot praktisch belang dat het probleem van het niet-lineaire viscoelastische gedrag van kunststoffen eens goed, d.w.z. fundamenteel wordt aangepakt.

In dit verband zou ik graag, met een aantal medewerkers van deze Universiteit, een idee uitwerken dat ik zo'n tien jaar geleden heb geformuleerd¹⁶⁾. De essentie is dat kunststoffen een sterk thixotroop karakter bezitten²⁰⁾²¹⁾. Het idee kan worden geïllustreerd aan de hand van een voorbeeld uit het dagelijks leven. Als we 's avonds een pakje margarine in de koelkast leggen, treedt er gedurende de nacht een geleidelijke verstarring op. Dat blijkt de volgende morgen: de margarine is moeilijk smeerbaar. Deze verstarring is slechts ten dele een direct gevolg van de afkoeling; minstens even belangrijk is de geleidelijke opbouw van een verstarrende structuur (netwerk van vetkristallen). De margarine kan dan ook 's morgens op twee manieren weer smeerbaar gemaakt worden: door opwarming ofwel door mechanische deformatie (kneden = afbreken van de structuur).

M.i. treedt een dergelijk thixotroop gedrag ook op bij kunststoffen (ofwel amorfe materialen in het algemeen). Deze materialen worden bijna altijd verkregen door verstarring vanuit de vloeibare fase (afkoeling van uit de smelt, verdamping van een oplosmiddel, enz.). Voor een deel wordt de (amorfe) vloeistof "structuur" ingevroren, en deze structuur bevat een groot aantal defecten. Bij polymeren worden deze defecten vaak aangeduid met de cryptische term "vrij volume". Het zijn deze defecten die verantwoordelijk zijn voor de moleculaire beweeglijkheid, dus voor de tijdsafhankelijke processen zoals kruip, relaxatie, enz. Nu wordt de verstarring nooit oneindig langzaam uitgevoerd; derhalve bevat de amorfe structuur

bij de gebruikstemperatuur meer defecten dan bij thermodynamisch evenwicht bij die temperatuur. De overmaat aan defecten "wil" er dus uit, en omdat het dezelfde defecten zijn die de moleculaire beweging mogelijk maken, "slagen" zij (de defecten) er ook daadwerkelijk in om langzaam te verdwijnen. Dit proces wordt fysische veroudering genoemd, het gaat gepaard met een afname van de moleculaire beweeglijkheid en dus met een vertraging van kruip, relaxatie, etc.¹⁶⁾.

Echter, defecten kunnen ook worden gegenereerd, b.v. door opwarming of mechanische vervorming. Dit laatste is bij metalen goed bekend (productie van dislocaties). Maar ook voor iets grofstoffelijks als zandkorrels is reeds lang bekend dat het "vrij volume" van ingeklonken zand toeneemt bij afschuiving. Mijn suggestie¹⁶⁾ was dat deze productie van vrij volume (defecten) ook optreedt wanneer verouderde (ingeklonken) amorphe materialen gedeformeerd worden. Indien dit zo is gaan amorphe materialen zich net zo thixotroop gedragen als margarine: in rust treedt verstarring op t.g.v. het verdwijnen van defecten; bij deformatie worden de defecten weer gegenereerd. Beide processen: verdwijnen en produceren van defecten wedijveren met elkaar en het resultaat noemen we niet-lineair gedrag.

- b. **Moleculaire interpretatie van relaxatieprocessen.** Een tweede gebied, overigens verwant aan het eerste, betreft de moleculaire interpretatie van mechanische en diëlektrische relaxatie. Nadat zaken als relaxatiespectra en veren- en zuigermodellen de vooruitgang, tot op zekere hoogte, jarenlang hadden geblokkeerd, is dit veld van onderzoek nu sterk in beweging²²⁻²³⁾. Om dit uiteen te zetten bekijken we eerst de diëlektrische relaxatie. Deze ontstaat doordat b.v. dipolen zich op verschillende manieren kunnen oriënteren in een elektrisch veld. Is het externe veld gelijk aan nul dan zijn de oriëntaties willekeurig verdeeld; de totale polarisatie is dan nul. Is het externe veld ongelijk aan nul, dan worden bepaalde oriëntaties bevoordeeld, en andere benadeeld. Een deel van de dipolen stelt zich op de gunstiger oriëntaties in (althans over de tijd gemiddeld) en we meten een macroscopisch polarisatie-effect. Dit oriëntatieproces kost tijd want tussen de verschillende oriëntatieposities van de dipool bevinden zich hoge (activerings)drempels. Een dipool moet dan ook wachten tot de warmtetrillingen van zijn burens zodanig interfereren dat hij (de dipool) over de drempel wordt gewipt. Zo ontstaat de bekende Eijring of Arrhenius term.

Wat men zich soms niet realiseert is dat de gangbare theorieën uitgaan van een oneindig verdund systeem; ze beschrijven de relaxatie van één enkele dipool in een warmtebad. Vanzelfsprekend leidt deze aanpak tot één enkele relaxatietijd (Debye relaxatie). In werkelijkheid vertonen polymeren (en andere materialen) verdelingen van relaxatietijden die vele decaden breed kunnen zijn. Bovendien lijken die verdelingen voor vele stoffen erg op elkaar²²⁾. Men heeft jarenlang geprobeerd dit te verklaren door b.v. te veronderstellen dat de activeringsdrempels van dipool tot dipool verschillen. De veronderstelde verdeling van activeringsenergieën leidt dan tot de experimenteel vastgestelde verdeling van relaxatietijden. Deze "verklaring" lost echter niets op; de verdeling van activeringsenergieën wordt niet op onafhankelijke gronden voorspeld maar is niet meer dan een wat andere schrijfwijze voor de experimenteel bepaalde verdeling van relaxatietijden. De theorie voorspelt niets en heeft dus weinig waarde.

Pas de laatste jaren²²⁾ wordt gepoogd de verdeling van relaxatietijden op een m.i. realistische wijze te verklaren, nl. vanuit het wezenlijk coöperatieve karakter van het relaxatieproces. Bijna altijd zitten de dipolen in vaste polymeren immers vlak bij elkaar; de gangbare aanpak (verdunde oplossing) is dan ook een veel te grove benadering. De coöperatieve effecten zorgen er, ook bij volkomen identieke dipolen, voor dat de relaxatiefunctie principieel afwijkt van de vorm $\exp(-t/\tau)$ en zich ook over een veel breder gebied van de logarithmische tijdschaal uitstrekt. De coöperatieve effecten zijn verder, binnen groepen van materialen, sterk analoog en dit zou kunnen verklaren waarom de verdeling van relaxatietijden voor zoveel stoffen gelijkvormig is.

Voor mechanische relaxatie heeft men lange tijd dezelfde theorie toegepast als voor diëlektrische relaxatie. Omdat elektrische velden op afstand werken, werd impliciet verondersteld dat mechanische krachten dit ook kunnen; de mechanische koppeling van het relaxerende molecuul met zijn onmiddellijke omgeving kwam dan ook in de theorieën niet voor. Het behoeft geen betoog dat deze aanpak, fysisch gezien, nogal curieus is. Behalve gravitatie werken mechanische krachten niet op afstand. Dus indien het molecuul niet gekoppeld is aan zijn onmiddellijke omgeving, worden er helemaal geen mechanische krachten op het molecuul uitgeoefend; van relaxatie is er dan geen sprake.

Recentelijk is het gelukt, voor een eenvoudig geval, deze koppeling in de theorie op te nemen en kon een aantal reeds lang bestaande discrepanties tussen theorie en experiment worden opgelost²⁴). Ik zou deze theorie hier graag verder willen ontwikkelen en heb daar de hulp van een theoretisch fysicus voor nodig. Hij moet echter goed weten waar hij aan begint. De zojuist besproken gevallen betroffen slechts beperkte locale molecuulbewegingen, bij polymeren noemt men dat secundaire relaxaties. Interessanter en van groter belang voor de praktijk zijn relaxatieprocessen waarbij de moleculen op grote schaal t.o.v. elkaar gaan bewegen. Dit soort, primaire processen, veroorzaken de kruip en relaxatie waarover de constructeur zich zorgen maakt en zij zijn ook verantwoordelijk voor de niet-lineaire viscoelasticiteit (punt (a)) en voor faalprocessen zoals breuk, crazing, shear-banding, enz. Het lijkt mij een geweldige uitdaging om voor dit soort processen een moleculaire beschrijving te vinden. Een aantal van U zal echter het probleem reeds hebben aangevoeld: indien de moleculen t.o.v. elkaar gaan bewegen verliest het materiaal zijn vastestofkarakter, het krijgt vloeistofkarakteristieken. Dus om het praktische probleem van de kruip en relaxatie van kunststoffen moleculair te kunnen beschrijven, hebben we een betrouwbare theorie voor de vloeibare fase nodig, een kinetische beschrijving van hoe een vloeistof vloeit. Bij mijn weten is die theorie (nog) niet beschikbaar.

Tot zover twee onderzoeksgebieden waar ik mij hier graag mee bezig zou houden. Ze zijn nogal fundamenteel van karakter. Er zit echter zo'n groot praktisch probleem achter dat het m.i. weinig moeite zal kosten om op omvangrijke schaal industriële sponsoring te verwerven, mits natuurlijk duidelijk gemaakt kan worden dat er een redelijke kans is op succes.

Deze twee projecten heb ik mede besproken met het oog op de discussie die aan deze Universiteit momenteel gevoerd wordt over de strategie van de jaren 90. Om te beginnen, veel van wat er b.v. tijdens de rede²⁵) bij de opening van het academisch jaar 1986-1987 gezegd is, onderschijf ik van harte en aanpak en mentaliteit klinken mij vertrouwd in de oren²⁶). Ik zou echter graag de volgende kanttekeningen willen plaatsen:

- Marktgerichtheid en wetenschappelijke niveau zijn zaken die weinig met elkaar te maken hebben. Het is m.i. zeker onjuist om te stellen dat een marktgerichte opstelling een afglijden naar een laag wetenschappelijk niveau zal bewerkstelligen. Met de twee boven besproken voorbeelden

heb ik willen illustreren dat er ook een koopkrachtige vraag bestaat naar fundamenteel werk. Er is dus wel degelijk een markt voor fundamentele onderzoeksgroepen; of zulke groepen op die markt kunnen opereren hangt vooral af van hun niveau.

- Marktgerichtheid is luisteren naar en ingaan op wat de markt daadwerkelijk *vraagt*. luisteren naar wat wij, op grond van b.v. politieke overwegingen t.a.v. het MKB, *goed achten* voor de markt heeft weinig met marktgerichtheid te maken. We luisteren dan weer naar ons zelf en doen weer vooral wat we zelf bedacht hebben
- Op pag. 14 van²⁵⁾ staan een aantal van de "tien geboden" van Peters en Waterman²⁶⁾. Ik mis het "Schoenmaker blijf bij je leest". Een Universiteit die zich vooral zou opwerpen als trouble-shooter van het Midden- en Kleinbedrijf komt m.i. in strijd met dit "gebod" en begint aan een avontuur dat tot mislukking is gedoemd. Ervaringen binnen het Kunststoffen en Rubber Instituut (KRITNO) wijzen in elk geval sterk in deze richting.

Na deze opmerkingen zou ik over willen gaan tot het laatste punt:

4. De samenwerking tussen TNO en de Universiteiten

Zoals eerder gezegd, een van de redenen waarom ik hier sta is dat TNO een beleid voort, gericht op een versteviging van de samenwerking met de Universiteiten²⁷⁾. Hierbij spelen de volgende overwegingen een rol.

- a) **De wettelijke taak van TNO²⁸⁾**. De organisatie is bedoeld een soort "supertransferpunt" te zijn tussen het "wetenschappelijke circuit" en de Nederlandse samenleving. Hieruit vloeit voort dat er nauwe banden dienen te zijn tussen de universitaire wereld en TNO: een zeer effectief middel is het instituut van personele unies.
- b) **Samenwerking en taakverdeling tussen niet-industriële instellingen en instituten op het gebied van de polymeertechnologie**. Nederland is zo klein dat er op elk deelgebied van de polymeertechnologie slechts enkele echte deskunigen zijn. Het op alle plaatsen (Universiteiten, Kunststoffen en Rubber Instituut TNO) alles willen, is ten ene male onmogelijk; er is eenvoudigweg niet voldoende deskundige mankracht aanwe-

zig. Het ligt derhalve erg voor de hand tot samenwerking en taakverdeling te komen. De oprichting van de Stichting Polymeertechnologie Nederland²⁹⁾ is een uiting van dit streven en mijn aanwezigheid hier evenzeer.

Vanuit mijn positie als directeur van KRITNO zou ik nog de volgende opmerkingen willen maken: Wij zouden bovengenoemde samenwerking gestalte kunnen geven door onze subsidie (ca. 6 Mfl/jaar) niet meer uitsluitend te gebruiken voor de financiering van eigen activiteiten maar ook aan te wenden voor de financiering van projecten aan Universiteiten. Hierbij denk ik aan projecten waarmee wij (KRI) onze positie in de toekomst kunnen versterken en waarbij we op zakelijke basis tot overeenkomsten met de Universiteiten kunnen komen. Verder denk ik aan bijdragen onzerzijds in onderwijs en cursussen, aan het ter beschikking stellen van stage- en promotieplaatsen, aan het verlenen van faciliteiten op het gebied van dure apparatuur, e.d. Met al dit soort samenwerkingsactiviteiten is inmiddels een begin gemaakt.

Een van onze belangen hierin betreft de personeelswerving. Wij hebben momenteel een vrij hoog verloop, vooral op academisch en HBO niveau. Op zich is dat een gezond teken, maar het noodzaakt ons wel een systematische instroom van jonge medewerkers op gang te brengen. (In 1986 ca. 30 mensen). Het zal duidelijk zijn dat samenwerkingspatronen als boven geschetst hierbij uitstekend van dienst kunnen zijn.

Bij mijn beslissing om hier te komen heeft de angst voor concurrentie tussen UT en KRITNO nauwelijks meegespeeld. M.i. is de markt voorlopig groot genoeg voor zowel de Universiteiten als het KRITNO, en verder is het aantal echte specialisten voorlopig zo klein (zie boven) dat de kans op doublures (dus concurrentie) gering is. Kortom, samenwerking ligt veel meer voor de hand dan concurrentie.

5. Afsluiting

Ik hoop hiermee (§2-4) duidelijk gemaakt te hebben waarom ik de uitnodiging om hier op part-time basis te komen werken, heb aanvaard. Mijn interesse vloeit voort uit wetenschappelijke en zuiver zakelijke motieven. Ik kom nu tot de afsluiting van mijn betoog.

Heren hoogleraren en medewerkers van de Vakgroep Macromoleculaire Chemie en Materiaalkunde, en van het Centrum voor Polymeertechnologie.

Het was voor mij een aangename verrassing dat juist deze vakgroep c.q. dit centrum mij uitnodigden. Deze vakgroep/dit centrum "timmerd reeds jaren aan de weg" en vormt vanuit KRITNO gezien een prima samenwerkingspartner. Ik hoop echter wel dat de vacatures i.v.m. het emiritaat van Prof. Dr. J. Schuijjer en het komende emiritaat van Prof. Ir. J.F. Ingen-Housz snel zullen worden opgevuld. Onderwerpen als biomaterialen en membranen vormen, hoe interessant en belangrijk ze ook zijn, geen voldoende brede basis voor een groep/centrum voor polymeertechnologie.

Ik wil U dank zeggen voor het in mij gestelde vertrouwen en voor de plezierige manier waarop U mij, sinds ik hier vanaf september 1986 elke week kom, hebt ontvangen.

Dames en heren studenten. We zijn in december begonnen met een college Kunststoffen. Ik hoop dat ik U niet te veel in verwarring heb gebracht. De eerste middag hebben we gepraat over de toepassingskant en over de maatschappelijke aspecten van kunststoffen. Een aantal van U vond het, naar ik hoorde, zo eenvoudig dat ze er over dachten maar niet meer te komen. De volgende keer heb ik U een stuk bedriegelijk eenvoudige theorie voorgeschoteld waarbij achteraf nauwelijks kop en staart van elkaar te onderscheiden bleek. Bedenk echter: het hoort er allemaal bij, en de "zachte" kant is even belangrijk als de "harde".

Dames en heren, hoogleraren en medewerkers van andere vakgroepen.

In mijn betoog zaten al enkele "aangevertjes" verwerkt, gericht op de faculteit der Technische Natuurkunde; ik zal daar t.z.t. op terugkomen. Vanuit mijn positie binnen TNO heb ik echter ook belangstelling voor diverse andere vakgroepen en ik zal mijn best doen contacten te leggen tussen U en onze medewerkers. Het gaat daarbij om de volgende gebieden:

- reologie van polymere smelten, verf en aardolie;
- kunststof- en rubberverwerking;
- membraanfiltratie m.b.v. holle vezels;
- biomedische polymeertoepassingen;
- toepassingen van lichte/sterke composietmaterialen in de gehandicaptenzorg;

- systematische produktontwikkeling;
- sensoren op basis van elektreten of piëzoelektreten;
- intrinsiek geleidende polymeren.

Op een aantal van deze gebieden bestaan overigens reeds contacten tussen UT en KRI.

Dames en heren van TNO. In de eerste plaats wil ik dank zeggen aan Ir. W.A. Koumans van de Raad van Bestuur van TNO die, samen met Prof. Dr. J. Schuijjer van deze Universiteit, zonder dat ik er iets van wist, het initiatief genomen heeft dat uiteindelijk uitmondde in mijn benoeming. U, heren van de RvB-TNO kunt uit mijn betoog opmaken dat ik Uw beleid in deze van harte ondersteun. De medewerkers van het KRITNO hebben wat meer moeite gehad met deze benoeming en mij dat ook wel gezegd. Zij brengt met zich mee dat ik 1 dag per week afwezig ben en een aanzienlijk deel van mijn energie gebruik voor deze Universiteit en niet meer voor het instituut. Een onmiddellijk gevolg was dat wij de zaken intern wat anders moesten organiseren en de taken van de afdelingsleiders moesten aanpassen, d.w.z. verzwaren. Ik hoop dat U zich niet blind zult staren op de korte-termijn problemen, die er zeker zijn, maar vooral oog zult hebben voor het lange-termijn belang dat wij als instituut bij dit soort samenwerkingen hebben. Overigens, ik heb sinds de reorganisatie van het KRI in 1981 vrijwel al mijn energie gestopt in de opbouw van het instituut-nieuwe stijl. U kunt het nu best zelf; als dat niet zo zou zijn ben ik de laatste jaren niet goed bezig geweest. Vervolgens een woord van dank aan de "oude garde" van TNO, de school van Staverman die ik eerder noemde: Staverman, Schwarzl, Heijboer en vele anderen. Van U heb ik het vak geleerd. Ik kwam in 1962 en was zo ongeveer de laatste leerling. Nu ben ik nog de enige die overgebleven is binnen TNO: alle anderen zijn gepensioneerd of naar elders vertrokken. Wat U, vooral in de jaren vijftig, hebt opgebouwd, wordt nu eindelijk echt actueel. Ik zal mijn best doen de zaak goed over te dragen aan de huidige generatie (binnen TNO) en aan de nieuwe generatie (hier).

Tenslotte een speciaal woord van dank aan de groep medewerkers van het voormalige Centraal Laboratorium TNO met wie ik samen een aanzienlijk deel van de kennis die hier zal worden overgedragen in de jaren 60 en 70 heb mogen opbouwen. Ik denk hierbij aan de experimentele ondersteuning door Mw. C. Zoetewij, de Hr. J. Seffelaar en vele anderen en aan de ondersteuning t.a.v. speciale meetapparatuur door Ir. C.W. v.d. Wal, Ing.

R.H.J.W.A. Drent en hun medewerkers. Gelet op het "door meten tot weten" is uw bijdrage van doorslaggevend belang geweest.

Zeer geachte aanwezigen.

Een deel van U is werkzaam in het bedrijfsleven en betrokken bij de voorzichtige pogingen om tot een effectieve landelijke samenwerking te komen zoals boven geschetst; ik verzoek U dringend ons hierbij te helpen. De weg die wij te gaan hebben is vol met voetangels en klemmen; wij hebben U hard nodig.

Ik dank U voor uw aandacht.

Literatuur

- 1) H.M. Brüggeman, Ed., "Kunststoffen 1986, Terugblik en Toekomst", Uitgave KRI-TNO, Delft, 1986, pag. 127 en 257.
- 2) Ibid., pag. 229.
- 3) Ibid., pag. 243.
- 4) Ibid., pag. 322.
- 5) L. Boltzmann. Pogg. Ann. Physik, 7 (1876), 624.
- 6) H. Leaderman, "Elastic and Creep Properties of Filamentous Materials and Other High Polymers", The Textile Foundation, Washington, D.C., 1944.
- 7) W. Flügge, "Viscoelasticity" Springer, 1975.
- 8) W.L. Findley, J.S. Lai and K. Onarin, "Creep and Relaxation of Nonlinear Viscoelastic Materials", North-Holland, Amsterdam, 1976.
- 9) Ref. 1, pag 297.
- 10) C. Zener, "Elasticity and Anelasticity of Metals", Un. of Chicago Press, 1944.
- 11) Ref. 1, pag. 173 en 283.
- 12) Ref. 1, pag. 281.
- 13) F.R. Schwarzl en A.J. Staverman, J. Appl. Phys. 27, 838 (1952).
- 14) I.L. Hopkins, J. Polymer Sci. 28, 631 (1958).
- 15) Ref. 1, pag. 282.
- 16) L.C.E. Struik, "Physical Aging in Amorphous Polymers and Other Materials", Elsevier, Amsterdam, 1978.
- 17) L.C.E. Struik, Polymer Eng. Sci. 18, 799 (1979).
- 18) Ref. 16, Hoofdst. 10-12.
- 19) R. Buchdahl, J. Polym. Sci. 28, 239 (1958).
- 20) Ref. 1, pag. 272.
- 21) L.C.E. Struik, "Physical Aging: Influence on the Deformation Behaviour of Amorphous Polymers", in "Mechanical Failure of Plastics" Brotow & Corneliusen, Eds., Hanser, Munnich-Vienna, 1986.
- 22) K.L. Ngai and G.B. Wright, Eds.: "Relaxation in Complex Systems", 1984, Office of Naval Research, USA, Nat. Techn. Inform. Service, US Dept. of Commerce, 5285 Port Royal Road, Springfield VA 22161.
- 23) Ref. 1, pag. 274-275 en pag. 290.
- 24) L.C.E. Struik, "Mechanical Relaxation in Solid Polymers: Proposal for a New Approach and a Solution of Heijboer's Problem", Lezing op de ZIF workshop over "Glass-Forming Liquids", 11-15 nov. 1985 "Zentrum für Interdisziplinäre Forschung" Un. van Bielefeld. Proceedings worden uit-

- gegeven door Springer, 1987, Eds. T. Dorfmueller en G. Williams.
- 25) H.H. v.d. Kroonenberg "Naar een nieuw Universitair Elan", rede bij de aanvang van het academisch jaar 1986-87: Universiteit Twente.
 - 26) T.J. Peters en R.H. Waterman, "Excellente Ondernemingen", Veen, Utrecht, 1983.
 - 27) Nota "Strategie van TNO", 1986, pag. 10.
 - 28) TNO Wet 1985: zie ook Memorie van Toelichting, Kamerstuk II 1983/84, 1984/85, 18393.
 - 29) Chemisch Weekblad, 1986, Jaargang 82, no. 26, 26 juni 1986, p. 257.