

doi:10.3969/j.issn.1001-3539.2025.05.010

基于混沌场与超临界流体挤出的PBAT/EG及性能

朱金萍^{1,2}, 刘海³, 梁永岳^{1,2}, 黄泓睿^{1,2}, 徐涛⁴, 肖书平^{1,2}, 王琼瑶^{1,2}, 徐百平^{1,2}, 谈灵操^{1,2}

(1. 五邑大学机械与自动化工程学院, 广东江门 529020; 2. 江门市高分子智能制造重点实验室, 广东江门 529020;

3. 深圳赛意法微电子有限公司, 广东深圳 518017; 4. 江苏金沃机械有限公司, 江苏镇江 212400)

摘要: 碳基填料增强聚合物复合材料虽因卓越的导热导电性能备受关注,但其实际应用仍受分散性难题限制。为了解决此难题,采用基于混沌场的差速非对称双螺杆挤出机结合超临界流体挤出发泡设备原位剥离膨胀石墨(EG)制备聚己二酸-对苯二甲酸丁二酯(PBAT)/EG复合材料,通过微观形貌、导热性能、介电性能等测试分析,研究了注气压力对EG的剥离、分散分布及PBAT/EG复合材料性能的影响。结果表明,注气压力的升高能提升EG的原位剥离和分散分布效果,从而提升复合材料的综合性能。当注气压力达到12 MPa时,热导率达到0.70 W/(m·K),与4 MPa时相比,提高了27.27%,介电常数和介电损耗分别为345.01 F/m和2.68,与4 MPa时相比,分别提高了484.56%和1240%,同时,拉伸强度和断裂伸长率分别提升了7.19%和90.47%。本研究为制备具有较好EG剥离分散效果的功能复合材料提供一种创新的成型方法。

关键词: 差速非对称双螺杆挤出机;超临界流体;注气压力;聚己二酸-对苯二甲酸丁二酯;膨胀石墨

中图分类号: TQ320.66 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3539(2025)05-0069-08

PBAT/EG composites based on chaotic field and supercritical fluid extrusion and their properties

ZHU Jinping^{1,2}, LIU Hai³, LIANG Yongyue^{1,2}, HUANG Hongrui^{1,2}, XU Tao⁴, XIAO Shuping^{1,2},

WANG Qiongyao^{1,2}, XU Baiping^{1,2}, TAN Lingcao^{1,2}

(1. School of Mechanical and Automation Engineering, Wuyi University, Jiangmen 529020, China;

2. Jiangmen Key Laboratory of Polymer Intelligent Manufacturing, Jiangmen 529020, China;

3. ST Microelectronics (Shenzhen) Co., Ltd., Shenzhen 518017, China; 4. Jiangsu Jinwo Machinery Co., Ltd., Zhenjiang 212400, China)

Abstract : Although carbon-based fillers reinforced polymer composites have attracted much attention due to their outstanding thermal and electrical conductivity, their practical applications are still limited by the dispersion problem. In order to solve this problem, polybutylene adipate-co-terephthalate (PBAT)/expanded graphite (EG) composites were prepared by in-situ exfoliating of EG using the non-twin screw extruder based on chaotic field coupled with a supercritical fluid extrusion foaming equipment. The effects of gas injection pressure on the exfoliating, dispersion distribution of EG and properties of PBAT/EG composites were investigated by testing and analyzing the microscopic morphology, thermal conductivity and dielectric properties. The results indicate that the increase of gas injection pressure can enhance the in-situ stripping and dispersion distribution effect of EG, thereby improving the comprehensive performance of the composite material. When the injection pressure reaches 12 MPa, the thermal conductivity reaches 0.70 W/(m·K), which is improved by 27.27% compared with that at 4 MPa. The dielectric constant and dielectric loss are 345.01 F/m and 2.68 at 12 MPa, respectively, which are improved by 484.56% and 1240% compared with that at 4 MPa, while the tensile strength and elongation at break are enhanced by 7.19% and 90.47%. This research provides an innovative molding method for preparing functional composites with better EG exfoliation and dispersion effects.

Keywords : non-twin screw extruder ; supercritical fluid ; injection pressure ; polybutylene adipate-co-terephthalate ; expanded graphite

随着现代科技的不断进步,单一材料的性能局限性和片面性,难以满足日益严苛的技术需求和应用场景,多功能材料的重要性日益凸显^[1-3]。而研究复合材料成为了突破性能瓶颈、拓展应用领域、促

基金项目: 国家自然科学基金项目(11972023),广东省教育厅普通高校毕业生创新创业人才项目(2024KQNCX032),粤港澳大湾区(佛山)先进制造业国家卓越工程师创新研究院联合培养扶持项目(2023FCXM011),江门市科技计划项目(2023JC1026)

通信作者: 谈灵操, 讲师, 研究方向为高分子材料加工新方法与新技术、功能高分子材料制备及应用

收稿日期: 2025-03-18

引用格式: 朱金萍, 刘海, 梁永岳, 等. 基于混沌场与超临界流体挤出的PBAT/EG及性能[J]. 工程塑料应用, 2025, 53(5): 69-76.

ZHU Jinping, LIU Hai, LIANG Yongyue, et al. PBAT/EG composites based on chaotic field and supercritical fluid extrusion and their properties[J]. Engineering Plastics Application, 2025, 53(5): 69-76.

进技术创新的关键路径。二维填料因其显著的比表面积、卓越的电学性能、优良的热学特性、独特的光学性质以及极高的强度和柔韧性而备受关注^[4-5]。而蠕虫状的膨胀石墨(EG),由于其结构疏松、具有较大的层间距离、展现出良好的柔韧性和回弹性以及丰富的孔隙结构脱颖而出^[6]。相较于其他硬度高、脆性大、稳定性差、导电性不足且应用范围有限的二维填料,EG在加工过程中不易破损或断裂,降低了加工难度,从而减少了生产成本和工艺复杂度,是提升聚合物复合材料综合性能最为经济有效的选择^[7-10]。EG作为功能性填料,在多个领域展现出卓越应用价值。在热管理领域,作为高导热填料用于5G芯片和LED散热;在电子设备领域,如轻质EG/丙烯腈-丁二烯-苯乙烯塑料(ABS)复合材料兼具电磁屏蔽(30 dB)和散热功能,适用于手机背板。

尽管EG作为二维填料具备诸多优势,但在实际应用中仍面临若干亟待解决的问题,比如在基体材料(如聚合物、树脂等)中的剥离分散难题。研究显示,由于EG多层堆叠的特性,其部分性能显著低于剥离出单片层状态下的表现。当前,针对片状填料的剥离技术主要包括机械剥离法^[11-12]、液相剥离法^[13]、联合超声波法^[14-15]、氧化还原法^[16]、外延生长法^[17]和化学气相沉积法^[18]等。机械剥离法中的熔融共混法^[19-20]因其操作简便、生产效率高、产量大且无需使用有害化学物质等优点,在聚合物复合材料的工业生产中展现出较大的应用潜力。

然而,现有研究表明,由于传统双螺杆挤出机(TSE)的对称螺纹结构和恒定转速主要产生剪切流场,多层片状填料在TSE中的剥离、分散和分布效果往往不尽如人意。为了提高混合混炼效率,TSE中的高剪切力会导致高分子材料的降解,从而显著降低力学性能^[21-22]。为解决上述问题,徐百平等^[23-24]提出了一种新颖的差速双螺杆挤出机(NTSE)。这种装备两根螺杆结构非对称,并且差速旋转,引入混沌混合耦合拉伸力场作用。前期研究结果表明,与TSE相比,差速双螺杆挤出机传质传热效率以及混合效果显著提高,并且减少了物料的降解程度。Tan等^[25]采用NTSE熔融挤出制备高密度聚乙烯/六方氮化硼(h-BN)复合材料,并与TSE进行对比。研究结果表明,基于周期性横向挤压扩张作用的NTSE对BN的原位剥离、分散和分布效果,以及制备的复合材料综合性能显著优于TSE。此外他们采

用摄动环取代捏合块改造差速非对称双螺杆挤出机^[26],以强化拓扑二分和折叠拉伸作用,提高分散分布效果的同时,有效降低了分子链降解,制备了高性能尼龙6/玻纤复合材料。而超临界流体挤出发泡技术使用二氧化碳或氮气等作为发泡剂,节能环保,且通过调节温度、压力和流体浓度,能形成均匀细密的泡孔结构,提升材料的强度、韧性、抗冲击性等,满足不同应用需求。超临界流体润滑和膨胀作用有利于EG的剥离和分散分布。

聚己二酸对苯二甲酸丁二酯(PBAT)是一种可生物降解的塑料,具有优良的柔性和延展性,并且展现出较高的抗冲击强度以及较大的断裂伸长率,因此在多功能材料的应用中能够有效减少产品废弃物对环境的负面影响^[27-28]。笔者在NTSE熔融混炼基础上,进一步借助超临界二氧化碳(ScCO_2)挤出发泡中超临界流体的超高扩散率和表面张力促进EG的剥离。该方法采用NTSE与超临界流体挤出发泡技术相结合的方式,以增强复合材料中EG良好的剥离、分散和分布。通过微观结构、导热性能测试和介电性能等测试手段,探讨了注气压力对EG剥离分散效果以及PBAT/EG复合材料性质的影响。

1 实验部分

1.1 主要原材料

EG:LG100-01,工业级,相对密度为 0.97 g/cm^3 ,80目($188 \mu\text{m}$),膨胀200倍,河南六工石墨有限公司;

PBAT:TH801T,密度为 1.2273 g/cm^3 ,熔体流动速率为 $2.5\sim 4.5 \text{ g/10 min}$,熔点为 $110\sim 120^\circ\text{C}$,新疆蓝山屯河聚酯有限公司。

1.2 仪器及设备

恒温鼓风干燥箱:DHG-9240A,上海市精宏实验设备有限公司;

差速双螺杆挤出机:DHK26,螺杆转速比1:2,螺杆长径比3:7,南京科亚化工成套装备有限公司;

超临界流体挤出发泡设备:MEDI-2240,广州市普同实验分析仪器有限公司;

程控型平板硫化仪:BL-6170-B,东莞市宝轮精密检测仪器有限公司;

旋转流变仪:HAAKE MARS 60,美国赛默飞世尔科技公司;

万能材料试验机:INSTRON/5966,美国英斯特朗公司;

导热系数仪:HS-DR-5,上海和晟仪器科技有限公司;

动态热机械分析(DMA)仪:DMA1,瑞士梅特勒-托利多公司;

扫描电子显微镜(SEM):Sigma 500,德国蔡司公司;

数字电桥(LCR)测试仪:E4980A,美国是德科技公司。

1.3 试样制备

将PBAT放置于恒温鼓风干燥箱中60℃下干燥8 h。为使EG更好地与PBAT混合,先将EG与液体石蜡以质量比3:1的比例混合。然后,按照特定质量比例,先将PBAT与EG/液体石蜡进行预混合,然后利用差速双螺杆挤出机通过熔融共混方法制备PBAT/EG复合材料。EG质量分数为9%。NTSE的温度从进料口到机头分别设定为110,130,140,155,150,150,145℃,主喂料为0.7 Hz,两根螺杆转速为125/250 r/min。然后对挤出后的线材进行冷却造粒。之后使用在60℃下的恒温鼓风干燥箱烘干6 h备用。最后将切粒后的样品投入超临界流体挤出发泡设备,一阶双螺杆温度设置为130,160,180,185,185,185,180,170,160,160,160℃,转速设置为90 r/min,二阶单螺杆温度设置为150,140,130,120,120,120℃,转速设置为6 r/min,注气压力分别为4,6,8,10,12 MPa,注气流量为0.7 mol/L。将所有挤出物分别模压成1 mm和2 mm的片状样品用于测试表征,模压温度为180℃,压力为10 MPa,预压时间5 min,增压时间3 min。将模压后的复合材料命名为9EG-N-xMPa,其中x代表注气压力。作为对比,仅采用超临界流体挤出发泡制备了PBAT/EG-UN-10 MPa复合材料。PBAT/EG复合材料的制备流程如图1所示。

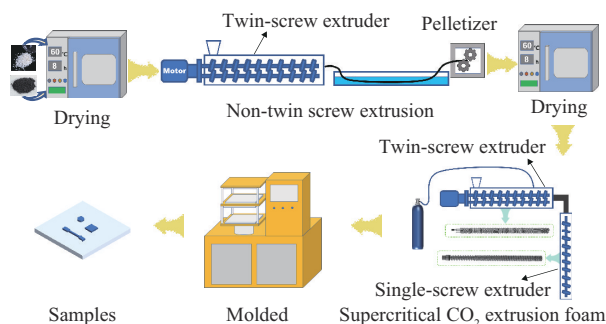


图1 PBAT/EG复合材料制备流程图

Fig. 1 Flow chart for preparation of PBAT/EG composites

1.4 测试与表征

1.4.1 扫描电子显微镜(SEM)分析

将样品急冻60 min后进行脆断,然后喷金4次,每次喷金时间30 s,再将样品在10 kV下用SEM观察微观形貌。

1.4.2 流变性能分析

利用旋转流变仪表征PBAT/EG复合材料的动态流变行为,样品厚度为1 mm,在振荡频率模式下进行测试,振荡幅度为1.5%,测试温度为180℃,剪切频率为0.01~100 Hz。

1.4.3 动态热机械(DMA)分析

裁剪出10 mm×4 mm×1 mm的样品,每组样品在-60~60℃,5℃/min的测试条件下,采用动态热机械分析仪进行测试。

1.4.4 介电性能分析

采用精密型LCR测量样品的电容电阻,再通过公式(1)计算出介电常数。将样品裁剪成圆形薄片(直径=16.5 mm,厚度=1 mm),然后夹在夹具上。

$$\varepsilon_r = \frac{C \cdot d}{\varepsilon_0 \cdot S} \quad (1)$$

式中: ε_r 为复合材料的介电常数; C 为测得的样品的电容,F; d 为样品厚度,m; S 为样品面积,m²; ε_0 为真空介电系数,取 8.854×10^{-12} F/m。

1.4.5 导热性能分析

利用模具热压出40 mm×40 mm×2 mm的样品,每组样品在25℃下,采用导热系数仪测试5次有效数据,取平均值和标准差。

1.4.6 拉伸性能分析

按照GB/T1040-2006制备标准样条,拉伸速率为50 mm/min,每组样品取5次有效数据,并计算平均值和标准差。

2 结果与讨论

2.1 微观形貌

图2为EG粉末和不同注气压力下制备的PBAT/EG复合材料的形貌图。由图2a可见,EG为多层堆叠的蠕虫状结构^[29]。当注气压力为4 MPa时,EG呈现出较厚的形态,且出现少量的团聚现象,复合材料中的泡孔较大且不均匀。随注气压力的增大,泡孔数量逐渐增多,泡孔直径逐渐变小,且泡孔大小更加均匀,EG在PBAT基体中的分散分布也更加均匀。图2还给出了未经差速双螺杆挤出,仅采用超临界流体挤出发泡的PBAT/EG-UN-10 MPa复合材料作为对比。明显看出,未经差速挤出的复

合材料不仅泡孔较少,团聚现象也更为严重。这是因为混沌场的引入使得 EG 剥离较好,生成了较多的泡孔成核位点。而更多的泡孔成核位点在气泡

长大过程中更有利于 EG 的剥离和分散分布。这表明了混沌场协同超临界流体挤出在 EG 原位剥离中的巨大优势。

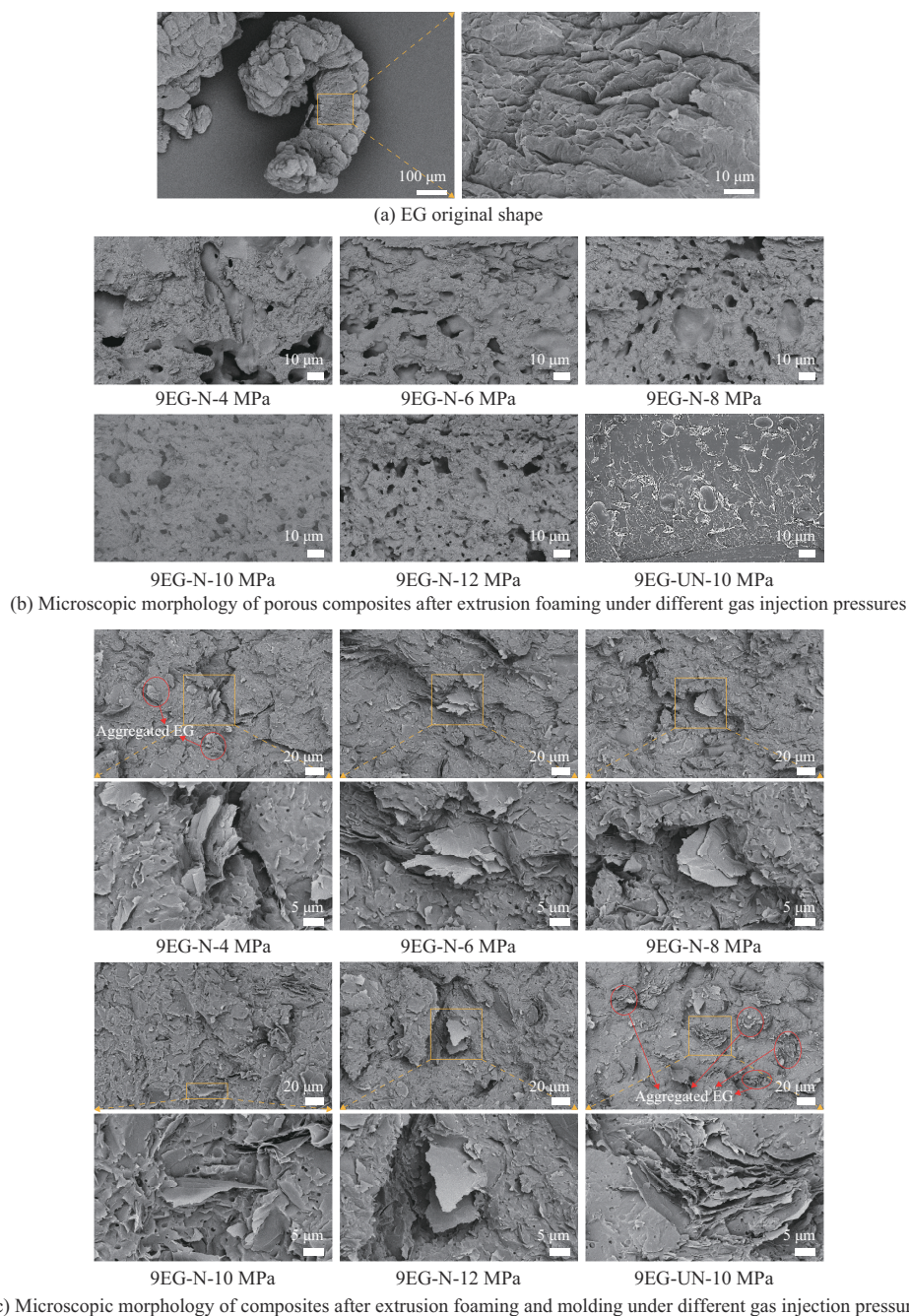


图2 EG原始形貌、不同注气压力下制备的多孔PBAT/EG复合材料及其模压后的形貌图

Fig. 2 Original morphology of EG, morphology of porous PBAT/EG composites prepared under different gas injection pressures and composites after molding

从图2中可以明显看出来,当注气压力达到12 MPa时,EG剥离成更薄的片层,泡孔的均匀性得到显著提升,表明注气压力的提升有利于EG的剥离分散,从而提升发泡倍率。如图2b中所示,这可能由于注气压力的提升使得超临界CO₂进入到基体

后,更有利于渗入EG片层之间,并且起润滑剂作用,可以使PBAT插层进入EG片层间,有利于EG的剥离、分散与分布。当挤出发泡时,EG起成核剂作用,产生更多更均匀的气泡。在气泡长大过程中,使EG片层间的距离逐渐增大,直至剥离,也可能将

较大片层的EG分成两片或者多片,表现出更加优异的发泡及剥离分散能力。

2.2 流变行为

图3为不同注气压力下挤出发泡并模压后制备的PBAT/EG复合材料的流变性能。如图3a所示,随着扫描频率增加,所有复合材料的复数黏度(η^*)均呈降低趋势,这是因为在高频率下分子的摩擦阻力会减小,样品呈现剪切变稀行为^[30]。随着注气压力从4 MPa增加到12 MPa,PBAT/EG复合材料的 η^* 和储能模量(G')逐渐增加,如图3a、图3b所示。这可能是因为注气压力的增加,会使EG分离成更多的片层,其对分子链运动的阻碍作用也增大,降

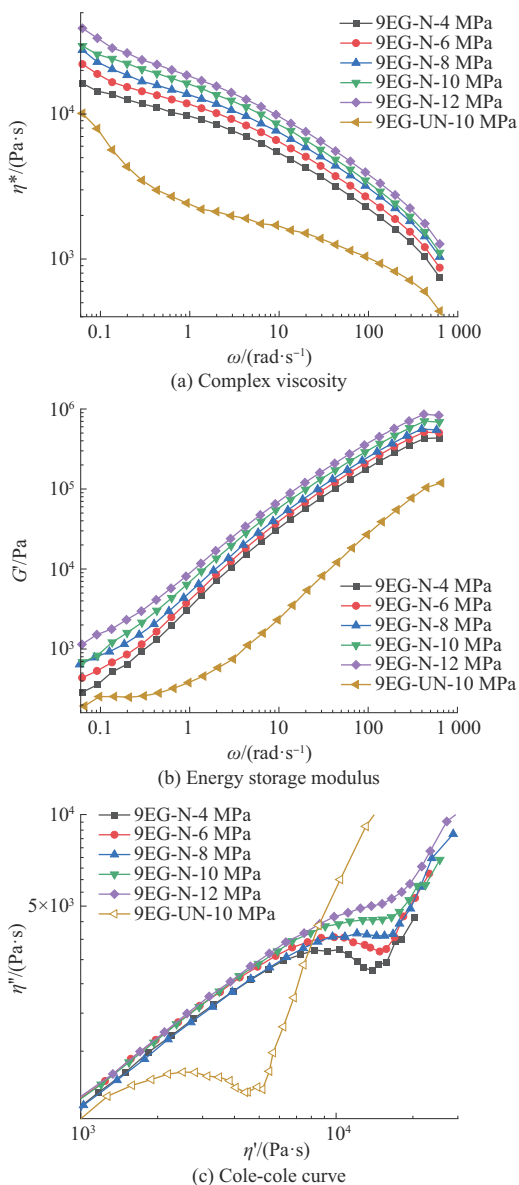


图3 不同注气压力制备PBAT/EG复合材料的流变曲线

Fig. 3 Rheological profiles of PBAT/EG composites prepared under different gas injection pressures

低了PBAT熔体的流动性。图3c为复合材料的cole-cole曲线,其横坐标 η' 表示材料的弹性行为,纵坐标 η'' 表示材料的黏性行为。从图中可以看出,随注气压力的增加, η' 的位置越来越往后移,且拐点的位置越来越高,形状越来越不规则。这是因为随着压力的增加,其在PBAT基体中分布的更加均匀,相分离越严重,逐渐倾向于非均相结构。图3还给出了未经差速双螺杆挤出,仅采用超临界流体挤出发泡的PBAT/EG-UN-10 MPa复合材料作为对比。从图3可看出,未经差速挤出的复合材料的 η^* , G' 都较小,且 η' 的位置最靠前、拐点位置最低,这表明与经差速挤出的材料相比,其对EG的剥离效果最差。

2.3 DMA性能

图4为不同注气压力下挤出发泡并模压后制备的PBAT/EG复合材料的DMA测试结果中的损耗角正切值($\tan\delta$)与温度的关系。如图4所示,随注气压力的增加,复合材料的玻璃化转变温度降低。这可能是由于EG被剥离分散为更多的小片层,更均匀分散分布于基体中,起润滑剂的作用,降低了分子链间的缠结作用,促进了分子链段的运动的原因。

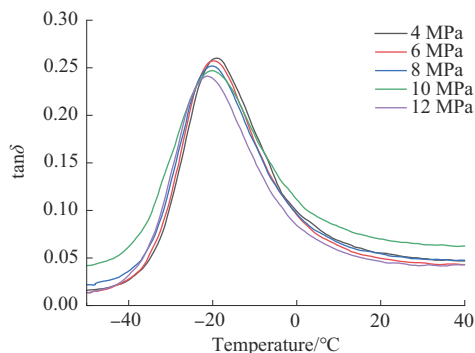


图4 不同注气压力下制备PBAT/EG复合材料的 $\tan\delta$ 与温度的关系

Fig. 4 $\tan\delta$ versus temperature for PBAT/EG composites prepared under different gas injection pressures

2.4 导热性能

图5为PBAT/EG复合材料在不同注气压力下的热导率变化曲线。实验数据显示,提高注气压力可有效增强材料的热传导能力。当注气压力增至12 MPa时,其热导率提升至0.70 W/(m·K),比纯PBAT的0.16 W/(m·K)提高了337.50%,并且与4 MPa时相比,提高了27.27%。由SEM分析(图2)可知,当注气压力为12 MPa时,EG被剥离得更薄,片层更多,且其均匀分散在PBAT基体中,从而使EG之间接触更多,形成了较多的导热通路,改善了复合材料的导热性能。

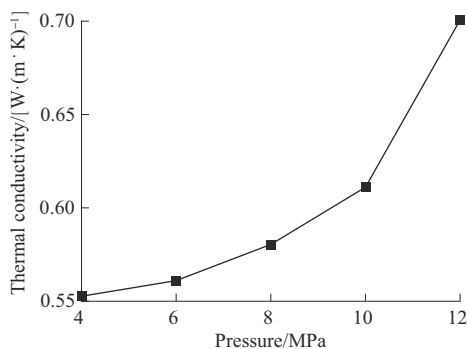


图5 不同注气压力下制备PBAT/EG复合材料的热导率

Fig. 5 Thermal conductivity of PBAT/EG composites prepared under different gas injection pressures

2.5 介电性能

图6为不同注气压力下挤出发泡并模压后制备的PBAT/EG复合材料的介电性能。从图6可以看出,随注气压力的增加,介电常数和介电损耗也逐渐增加。这可能是因为注气压力的增加,EG也被剥离分散为较薄、较多的小片层,内部形成的微电容器的数目也在增加,这些微电容器在外加电场作用下会极化,而介电常数的提升可归因于材料内部总极化强度的增大。而极化过程中电荷的移动和重新分布会导致能量损耗,因此极化强度的增加也使得介电损耗增大。

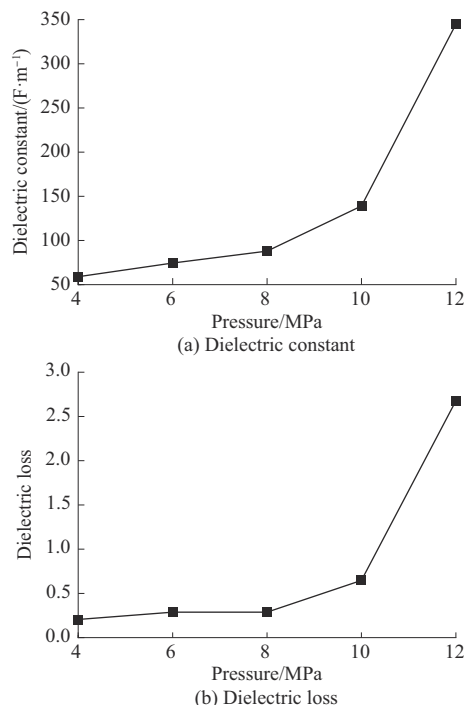


图6 不同注气压力下挤出发泡并模压后制备的PBAT/EG复合材料的介电性能

Fig. 6 Dielectric properties of PBAT/EG composites prepared after extrusion foaming and molding under different gas injection pressures

2.6 拉伸性能

图7为不同注气压力下挤出发泡并模压后制备的PBAT/EG复合材料的拉伸性能。根据图7所示,随着注气压力的提升,复合材料的拉伸强度和断裂伸长率均呈现逐渐上升的趋势。当注气压力从4 MPa提升至12 MPa时,复合材料的拉伸强度提高了7.19%,而断裂伸长率则显著增加了90.47%。由此可见,提高注气压力可有效增强复合材料的力学性能。SEM分析结果(图2)表明,EG在PBAT基体中实现了良好的剥离与均匀分散,从而显著减少了团聚现象。这种均匀分散的结构有助于降低复合材料内部的应力集中效应,减少了局部应力过度累积对PBAT基体造成破坏,因此,复合材料的力学性能得以提升。

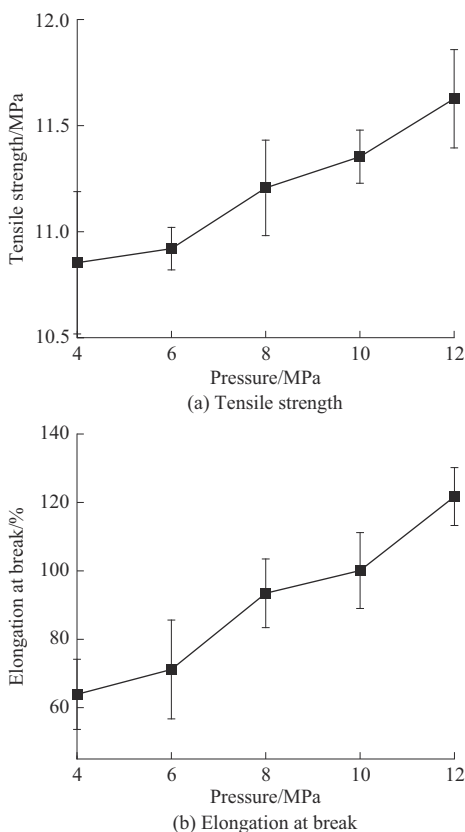


图7 不同注气压力下挤出发泡并模压后制备的PBAT/EG复合材料的拉伸性能

Fig. 7 Tensile properties of PBAT/EG composites prepared after extrusion foaming and molding under different gas injection pressures

3 结论

(1)微观形貌观察表明,经过NTSE挤出,随后使用ScCO₂挤出发泡设备制备PBAT/EG复合材料时,注气压力对泡孔形态及EG在PBAT基体中的剥离

分散有较大影响。随着注气压力的提升,EG的剥离程度显著提高,表现为片层厚度降低、数量增加,并在PBAT基体中呈现更均匀的分散状态。

(2)随着注气压力的提升,复合材料的热导率逐渐增大。当注气压力达到12 MPa时,热导率达到0.70 W/(m·K),比纯PBAT的0.16 W/(m·K)提高了337.50%,并且与4 MPa时相比,提高了27.27%。

(3)随着注气压力的提升,复合材料的介电性能逐渐增强。当注气压力达到12 MPa时,介电常数和介电损耗分别345.01 F/m和2.68,与4 MPa时相比,分别提高了484.56%和1 240%,同时,力学性能测试结果表明,该复合材料的拉伸强度提高了7.19%,同时断裂伸长率显著增加了90.47%。

(4)测试数据显示,注气压力的提升对复合材料性能产生多重积极影响:玻璃化转变温度降低,同时介电常数、导热系数和力学参数均呈现不同程度的提高,综合性能得到全面增强,该方法有望解决高含量层状填料在聚合物基复合材料中的团聚问题。

参考文献

- [1] FANG S Y, LYU X Y, TONG T, et al. Turning dead leaves into an active multifunctional material as evaporator, photocatalyst, and bioplastic[J]. *Nature Communications*, 2023, 14. DOI: 10.1038/s41467-023-36783-8.
- [2] LI W, ZHU L Y, XU Y, et al. Lignocellulose-mediated functionalization of liquid metals toward the frontiers of multifunctional materials[J]. *Advanced Materials*, 2025, 37(12). DOI: 10.1002/adma.202570095.
- [3] WU J L, XU F, LI S M, et al. Porous polymers as multifunctional material platforms toward task-specific applications[J]. *Advanced Materials*, 2019, 31(4). DOI: 10.1002/adma.201802922.
- [4] YU Y D, ZHENG J, LI J C, et al. Applications of two-dimensional materials in food packaging[J]. *Trends in Food Science & Technology*, 2021, 110:443–457.
- [5] 朱世东, 赵乾臻, 王星海, 等. 石墨烯/高分子功能复合材料制备与应用研究进展[J]. *复合材料学报*, 2022, 39(2):489–501.
ZHU Shidong, ZHAO Qianzhen, WANG Xinghai, et al. Research progress in preparation and application of graphene/polymer functional composite materials[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2022, 39(2):489–501.
- [6] ZHANG D, ZHANG W Z, ZHANG S R, et al. Synthesis of expanded graphite-based materials for application in lithium-based batteries[J]. *Journal of Energy Storage*, 2023, 60. DOI: 10.1016/j.est.2023.106678.
- [7] JIANG Z D, XING B L, QU X X, et al. Anthracite-based expanded graphite as anode materials for sodium-ion batteries with exceptional sodium storage performances[J]. *Journal of Energy Storage*, 2024, 83. DOI: 10.1016/j.est.2024.110667.
- [8] TANG Z M, XU L, XIE C, et al. Synthesis of CuCo2S4@Expanded Graphite with crystal/amorphous heterointerface and defects for electromagnetic wave absorption[J]. *Nature Communications*, 2023, 14. DOI: 10.1038/s41467-023-41697-6.
- [9] WEI B J, ZHANG L, YANG S Q. Polymer composites with expanded graphite network with superior thermal conductivity and electromagnetic interference shielding performance[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2021, 404. DOI: 10.1016/j.cej.2020.126437.
- [10] ZENG Z Y, ZHAO B C, WANG R Z. High-power-density packed-bed thermal energy storage using form-stable expanded graphite-based phase change composite[J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2023, 182. DOI: 10.1016/j.rser.2023.113373.
- [11] GAO E L, LIN S Z, QIN Z, et al. Mechanical exfoliation of two-dimensional materials[J]. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 2018, 115:248–262.
- [12] GÜLER Ö, GÜLER S H, SELEN V, et al. Production of graphene layer by liquid-phase exfoliation with low sonication power and sonication time from synthesized expanded graphite[J]. *Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures*, 2016, 24(2): 123–127.
- [13] ZHOU D, YIN J Z. Steer the rheology of solvent with little surfactant to exfoliate MoS₂ nanosheet by liquid phase exfoliation method[J]. *Nano*, 2020, 15(10). DOI: 10.1142/s1793292020501180.
- [14] GU X G, ZHAO Y, SUN K, et al. Method of ultrasound-assisted liquid-phase exfoliation to prepare graphene[J]. *Ultrasonics Sonochemistry*, 2019, 58. DOI: 10.1016/j.ultsonch.2019.104630.
- [15] TYURNINA A V, TZANAKIS I, MORTON J, et al. Ultrasonic exfoliation of graphene in water: A key parameter study[J]. *Carbon*, 2020, 168:737–747.
- [16] ZAABA N I, FOO K L, HASHIM U, et al. Synthesis of graphene oxide using modified hummers method: Solvent influence[J]. *Procedia Engineering*, 2017, 184:469–477.
- [17] ZEBARDASTAN N, BRADFORD J, LIPTON-DUFFIN J, et al. High quality epitaxial graphene on 4H-SiC by face-to-face growth in ultra-high vacuum[J]. *Nanotechnology*, 2023, 34(10). DOI: 10.1088/1361-6528/aca8b2.
- [18] HU Z N, LI F F, WU H T, et al. Rapid and scalable transfer of large-area graphene wafers[J]. *Advanced Materials*, 2023, 35(29). DOI: 10.1002/adma.202300621.
- [19] ZHANG X M, ZHANG J J, XIA L C, et al. Simple and consecutive melt extrusion method to fabricate thermally conductive composites with highly oriented boron nitrides[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2017, 9(27):22 977–22 984.
- [20] 骆济宏. 相变协同动态拉伸熔融混合设备研制及其在高导热复合材料中的应用[D]. 广州: 华南理工大学, 2022.
LUO Jihong. Development and application of a dynamic tensile melting mixer in synergy with phase transition for high thermal

- conductivity composites[D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2022.
- [21] 钟景浚, 余汉文, 郭文帅, 等. 差速非对称双螺杆挤出制备高性能 HDPE/h-BN 导热复合材料[J]. 塑料工业, 2024, 52(4): 104–109, 164.
- ZHONG Jingjun, SHE Hanwen, GUO Wenshuai, et al. Preparation of HDPE/h-BN thermally conductive composites with high performances *via* non-twin screw extruder[J]. China Plastics Industry, 2024, 52(4): 104–109, 164.
- [22] 余汉文, 钟景浚, 郭文帅, 等. 混沌场下扩链改性 PBAT 对 PBAT/TPS/OMMT 复合材料的影响[J]. 塑料科技, 2024, 52(8): 1–6.
- SHE Hanwen, ZHONG Jingjun, GUO Wenshuai, et al. Effect of chain expansion modified PBAT on PBAT/TPS/OMMT composites under chaotic field[J]. Plastics Science and Technology, 2024, 52(8): 1–6.
- [23] XU B P, LIU Y, HE L, et al. Numerical study of mixing dynamics inside the novel elements of a corotating nontwin screw extruder [J]. Advances in Polymer Technology, 2018, 37(7): 2 478–2 496.
- [24] 徐百平. 一种新型差速同向双螺杆挤出机[J]. 橡塑技术与装备, 2018, 44(10): 32–39.
- XU Baiping. A new differential co-rotating twin screw extruder [J]. China Rubber/Plastics Technology and Equipment, 2018, 44 (10): 32–39.
- [25] TAN L C, ZHONG J J, GUO W S, et al. A novel melt extrusion method for efficient and large-scale in situ exfoliation of boron nitride to prepare high performance thermal conductive polymer composite[J]. Polymer, 2024, 315. DOI: 10.1016/j. polymer. 2024.127809.
- [26] TAN L C, GUO W S, GAO Q, et al. A novel method and equipment for manufacturing high-performance fiber-reinforced polymer composite based on chaotic mixing and stretching force field[J]. Polymer Composites, 2024. DOI: 10.1002/pc.29376.
- [27] GUO Y C, ZUO X H, XUE Y, et al. Engineering thermally and electrically conductive biodegradable polymer nanocomposites[J]. Composites Part B: Engineering, 2020, 189. DOI: 10.1016/j. compositesb.2020.107905.
- [28] WONDU E, LEE G, KIM J. Polybutylene adipate terephthalate (PBAT) composites for thermally conductive, fire retardant, high dielectric applications using BaTiO₃ and MWCNTs as fillers[J]. Polymer Testing, 2024, 135. DOI: 10.1016/j. polymertest- ing.2024.108447.
- [29] 张屹东, 张红婴, 闻静, 等. 月桂酸-棕榈酸-石蜡/膨胀石墨定形复合相变材料的制备及性能表征[J/OL]. 化工新型材料, 2024: 1-9. (2024-12-26). [https://link. cnki. net/doi/10.19817/j. cnki. issn1006-3536.2025.08.040](https://link.cnki.net/doi/10.19817/j.cnki.issn1006-3536.2025.08.040).
- ZHANG Yidong, ZHANG Hongying, WEN Jing, et al. Preparation and property characterization of lauric acid-palmitic acid-paraffin/expanded graphite shaped composite phase change materials[J/OL]. New Chemical Materials, 2024: 1-9. (2024-12-26). [https://link. cnki. net/doi/10.19817/j. cnki. issn1006-3536.2025.08.040](https://link.cnki.net/doi/10.19817/j.cnki.issn1006-3536.2025.08.040).
- [30] 王从晓. PBAT 基生物可降解复合材料的制备及其性能研究[D]. 北京: 北京化工大学, 2023.
- WANG Congxiao. Research on preparation and properties of the biodegradable composite material based on poly (butylene adipate-co-terephthalate) [D]. Beijing: Beijing University of Chemical Technology, 2023.