

doi:10.3969/j.issn.1001-3539.2022.01.005

超低介电常数氟化聚酰亚胺合成与性能

高春, 翟建广, 邹明辉

(上海工程技术大学材料工程学院, 上海 201620)

摘要: 分别以 4,4'-联苯醚二酐 (ODPA) 和 4,4'-(4,4'-异丙基二苯氧基) 二酐酸酐 (BPADA) 为酐单体、2,2-双[4-(4-氨基苯氧基苯)] 六氟丙烷 (HFBAPP) 为胺类单体, 采用两步法制备了两种聚酰亚胺 (PI) 薄膜 (PI-1 和 PI-2)。采用傅里叶变换红外光谱仪对薄膜的结构进行了表征, 采用差示扫描量热仪和热重分析仪对薄膜的热性能进行了测试, 结果表明, PI-1 和 PI-2 薄膜失重 5% 时的温度分别为 543.19℃ 和 553.82℃, 玻璃化转变温度分别为 230℃ 和 210℃; 通过阻抗分析仪对薄膜的介电性能进行了表征, 结果表明, 通过引入含氟官能团和醚键, 有效降低了 PI 的介电常数, PI-1 和 PI-2 薄膜在 1 MHz 下的介电常数分别为 1.30 和 1.32, 介电损耗分别为 0.046 和 0.052; 通过紫外-可见分光光度计和接触角测量仪分别对薄膜的光透过率和疏水性进行了测试, 结果表明, 波长在 690 nm 时两种薄膜的光透过率达到 80% 以上, 制备的薄膜表现出良好的疏水性, 水接触角均在 96° 左右。

关键词: 氟化聚酰亚胺; 低介电常数; 介电性能

中图分类号: TB324 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3539(2022)01-0028-05

Synthesis and Properties of Ultra-low Dielectric Constant Fluorinated Polyimide

Gao Chun, Zhai Jianguang, Zou Minghui

(School of Materials Engineering, Shanghai University of Engineering Science, Shanghai 201620, China)

Abstract: Two polyimide (PI) films (PI-1 and PI-2) were synthesized by two steps with 4,4'-diphenyl ether dianhydride (ODPA), 4,4'-(4,4'-isopropylidenediphenyloxy) phthalic anhydride (BPADA) as anhydride monomer respectively and 2,2-bis[4-(4-aminophenoxy)benzene] hexafluoropropane (HFBAPP) as amine monomer. The structures of the films were characterized by Fourier transform infrared spectroscopy, the thermal properties of the films were tested by differential scanning calorimetry and thermogravimetric analyzer. The results show that the temperature of the PI-1 and PI-2 film at 5% weight loss are 543.19℃ and 553.82℃ respectively, and the glass transition temperature are 230℃ and 210℃ respectively. Impedance analyser was explored to character the dielectric properties of the films. The results show that the introduction of fluorine-containing functional groups and ether bonds can effectively reduce the dielectric constant of PI, the dielectric constant of PI-1 and PI-2 film are 1.30 and 1.32 at 1 MHz, the dielectric loss are 0.046 and 0.052 at 1 MHz. The light transmittance and hydrophobicity of the films were tested by UV-vis photometer and contact angle meter, and the results show that the light transmittance of the two films reach above 80% at 690 nm, the prepared films exhibits good hydrophobicity and their water contact angles are about 96°.

Keywords: fluorinated polyimide; low dielectric constant; dielectric property

随着电子设备的精密化, 新一代的高频和高速电路对电阻-电容时延、功耗和线间串扰的性能提出了更高的要求, 对低介电常数夹层的需求日益迫切^[1]。作为覆铜层合板的关键组成部分, 中间层通常由电气、热、机械等综合性能良好的聚合物复合材料构成^[2]。常用的聚合物基体有聚酰亚胺 (PI)、环

氧树脂、酚醛树脂和聚苯醚^[3-6]。其中 PI 由于其优异的热、力学和电气性能, 适合应用于高频电路^[7]。

相对于脂肪族 PI, 芳香族 PI 具有更为优异的力学性能、热稳定性能及电气性能, 在微电子、光学等领域具有广泛的应用^[8-10]。但是, 大多数芳香族 PI 的介电常数 (大于 2.9) 仍然较高, 不足以在高频

通信作者: 翟建广, 讲师, 从事高性能纤维增强复合材料智能化制造

收稿日期: 2021-11-05

引用格式: 高春, 翟建广, 邹明辉. 超低介电常数氟化聚酰亚胺合成与性能 [J]. 工程塑料应用, 2022, 50(1):28-32, 85.

Gao Chun, Zhai Jianguang, Zou Minghui. Synthesis and properties of ultra-low dielectric constant fluorinated polyimide[J]. Engineering Plastics Application, 2022, 50(1):28-32, 85.

电路中应用,因此需要降低芳香族 PI 的介电常数。

根据 Clasius-Mosotti 方程 $D_k = \frac{1 + 2(P_m/V_m)}{1 - (P_m/V_m)}$ (D_k 为介电常数, P_m 为摩尔极化率, V_m 为摩尔体积),降低介电常数有两个方向:①降低 P_m ,即引入极化率低的原子基团,如 C—C, C—F, C—O;②增加原子团的 V_m ,即分子链的自由体积^[11]。另外,在聚合物材料中加入孔隙结构也可以降低介电常数^[12-14],但是,由于孔隙的结构、尺寸分布难以控制,会导致材料的力学性能急剧下降,限制了这些孔隙材料的实际应用。

早先有研究者通过以氧化石墨烯或氟化石墨烯作为填料,降低介电常数,例如, Wang 等^[15]将氧化石墨烯作为填充物加入到 PI 中,氧化石墨烯含量为 0.19% 的 PI 复合薄膜的介电常数降低至 1.41。Chen 等^[16]将胺化的氟化石墨烯加入到 PI 中,得到介电常数为 2.75 的纳米复合材料。另有研究者通过分子设计引入低极化率的基团或者增加原子团摩尔体积制备了各种低介电常数的 PI。Chen 等^[17]选择了大体积非极性基团三苯基甲烷和曲折的主链结构,制备了 PI 薄膜,在 10 kHz 的频率下,介电常数为 2.56。Hu 等^[18]通过 Suzuki 反应设计并合成了一种新的含 6 个三氟甲基的二胺;然后,以含氟芳香族二酐和脂环族二酐为原料,采用两步法合成了 PI,介电常数为 2.24。Zhang 等^[19]采用含氟二胺与含氟二酐为原料,合成了共聚 PI,介电常数小于 2.9。另外,同时引入低极化率基团及大体积基团,可获得低介电常数的 PI。Zuo 等^[20]在聚合物链中同时引入间取代结构和三氟甲基,以 3,5-二氨基苯并三氟脲(m-TFPDA)和 4,4'-(六氟异丙基)二苯二甲酸酐(6FDA)为原料制备了 PI 薄膜,介电常数为 2.27。Wu 等^[21]制备了一系列含酰氧基苄基的 PI,通过引入酰氧基减少 PI 链段的堆积密度,增大自由体积并降低吸水率,其具有高透光性,且在 1 MHz 时的介电常数低至 2.58。

笔者以 2,2-双[4-(4-氨基苯氧基苯)]六氟丙烷(HFBAPP)为胺类单体,分别以 4,4'-联苯醚二酐(ODPA)和 4,4'-(4,4'-异丙基二苯氧基)二酐酸酐(BPADA)为酸酐单体合成了两种氟化 PI。相比其它二酐单体,BPADA 和 ODPA 具有大体积苯环结构,可以降低聚合物的介电常数,并且苯环由醚键相连,可以提高聚合物的柔性,有利于材料的实际应用。对两种不同二酐所制的 PI 薄膜的介电性能、热

性能、光学性能及亲疏水性能进行测试和分析,研究重复单元结构的差异对 PI 薄膜介电性能、热性能的影响,为超低介电常数 PI 的制备和应用提供参考。

1 实验部分

1.1 主要原材料

ODPA, BPADA, HFBAPP: 纯度 97%, 上海阿拉丁化学试剂有限公司;

N-甲基-2-吡咯烷(NMP): 分析纯, 上海阿拉丁化学试剂有限公司。

1.2 主要仪器与设备

傅里叶变换红外光谱 (FTIR) 仪: Spectrum Two 型, 珀金埃尔默仪器(上海)有限公司;

差示扫描量热 (DSC) 仪: DSC4000 型, 珀金埃尔默仪器(上海)有限公司;

热重 (TG) 分析仪: TGA4000 型, 珀金埃尔默仪器(上海)有限公司;

阻抗分析仪: E4991A 型, 是德科技(中国)有限公司;

光学接触角测量仪: DSA30 型, 克吕士科学仪器(上海)有限公司;

紫外-可见分光光度计: UV-2600 型, 日本岛津公司;

鼓风干燥箱: DGG-9030GD 型, 上海森信实验仪器有限公司。

1.3 氟化 PI 的制备

氟化 PI 的合成过程分为两步, 如图 1 所示。

聚酰胺酸 (PAA) 的制备: 在氮气的作用下, 将 HFBAPP (7.718 g, 10 mmol) 溶解在 NMP (40 mL) 中, 然后在室温下加入 ODPA (4.618 g, 10 mmol), 反应 6 h 后, 得到了质量分数为 30% 的 PAA-1 溶液。

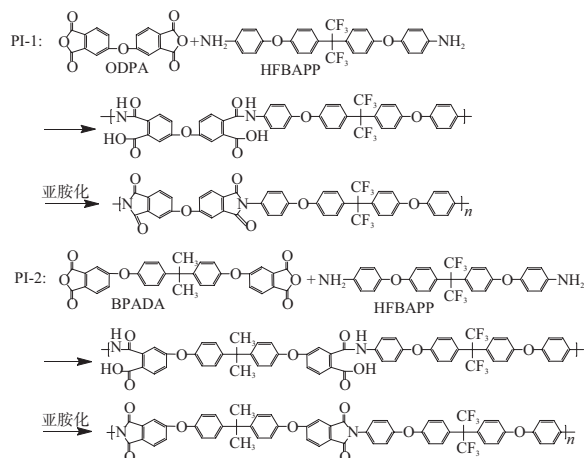


图1 两种 PI 的合成过程

在氮气流下将 HFBAPP (6.156 mmol) 溶于 NMP (40 mL), 然后在室温下加入 BPADA (6.180 mmol), 反应 6 h 后, 得到质量分数为 10% 的 PAA-2 溶液。

PAA-1 和 PAA-2 的亚胺化反应: 将 PAA-1 和 PAA-2 溶液铺展在玻璃板上, 置于鼓风干燥箱中分别在 80, 100, 200, 300 °C 下各加热 1 h, 然后在 350 °C 下加热 1.5 h, 得到氟化 PI-1 和氟化 PI-2 薄膜。

1.4 性能测试与表征

FTIR 测试: 采用全反射方式, 波数范围 350 ~ 7800 cm^{-1} ;

TG 测试: 取 3 ~ 5 mg 样品置于铝坩埚中, 在氮气气氛下以 10 °C/min 升温速率进行测试;

DSC 测试: 取 3 ~ 5 mg 样品置于铝坩埚中, 在氮气气氛下以 5 °C/min 的升降温速率进行测试;

介电性能测试: 测试前对薄膜两面镀金纳米颗粒层, 并将样品置于 60 °C 烘箱中干燥处理 1 h;

接触角测试: 用无尘纸将 PI 薄膜擦拭干净后将其水平放置在光学接触角测量仪载物台上, 进行水接触角测量, 设置针管水流量为 2, 捕捉并保存 60 s 后水滴接触角大小;

光透过率测试: 将所制 PI 薄膜剪裁成尺寸为 40 mm × 20 mm 小条, 通过紫外-可见分光光度计进行测试, 扫描波长范围为 200 ~ 800 nm。

2 结果与讨论

2.1 氟化 PI 的 FTIR 分析

测量了两种 PI 薄膜的 FTIR 谱图, 结果如图 2 所示。在图 2 中, CO—NH 特征吸收带中的 C=O 特征峰在 1660 cm^{-1} 处消失, 然后, 大约在 1779 cm^{-1} (不对称的伸缩振动) 和 1718 cm^{-1} (对称伸缩振动) 处出现了酰亚胺环中的 C=O 的特征峰, 并且, 在约 1373 cm^{-1} 和 743 cm^{-1} 处分别观察到酰亚胺环中 C—N 的伸缩振动峰和弯曲振动峰。对应于 C—F 的特征吸收峰出现在 1134 cm^{-1} 至 1373 cm^{-1} 之间。此外, 连有芳环的不对称醚键 C—O—C 的特征吸收峰出现在 1235 cm^{-1} (不对称

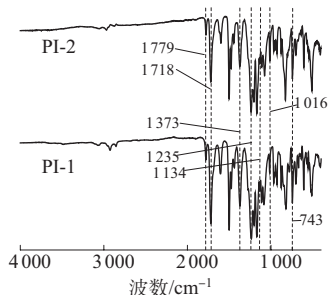
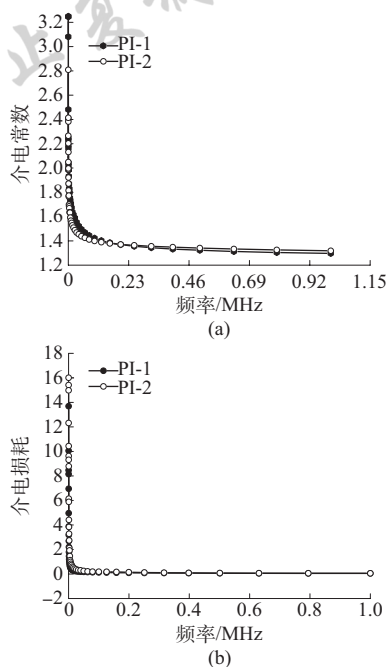


图2 PI-1 和 PI-2 的 FTIR 谱图

伸缩振动) 和 1016 cm^{-1} (对称伸缩振动)。这表明 PI 薄膜已经亚胺化。

2.2 氟化 PI 的介电性能分析

图 3 展示了两种 PI 的介电常数和介电损耗。由图 3 可以看出, 随着频率的增加, 介电常数不断减小, PI-1 由 100 Hz 的 3.08 降低到 1 MHz 的 1.30, PI-2 由 100 Hz 的 2.26 降低到 1 MHz 的 1.32, PI-1 在低频下的介电常数比 PI-2 略低, 而当同处于高频时, 介电常数差距不大, 远低于其它 PI 薄膜材料的介电常数 (2.2 ~ 2.9)^[22]。PI-1 与 PI-2 在 1 MHz 下的介电损耗分别为 0.046 和 0.052, 而目前相关文献所报道的 PI 薄膜的介电损耗为 10^{-2} ~ 10^{-4} ^[23]。通过引入含氟官能团降低极性, 以及引入低值的醚键, 有效地降低了 PI 的介电常数, 但醚键的加入打破了分子链中芳杂环的规整性, 导致分子链上大体积的芳杂环堆积更加紧密, 从而使合成的 PI 介电损耗增加。与 PI-1 相比, PI-2 中醚键数量更多, 其介电损耗也随之提高。



a—介电常数; b—介电损耗

图3 PI-1 和 PI-2 的介电性能

2.3 氟化 PI 的热性能分析

两种 PI 的 TG-DTG 曲线如图 4 所示。由图 4a 和图 4b 可以看出, PI-1 和 PI-2 的热稳定性相似, TG 曲线显示 PI-1 和 PI-2 的降解过程为单一阶段, PI-1 和 PI-2 均在 510 °C 左右才开始大幅度失重, 失重 5% 时的温度分别为 543.19 °C 和 553.82 °C, 在 700 °C 时的质量保持率分别为 61.04% 和 63.24%。

芳环由于结构稳定,可以提高 PI 的热稳定性,而醚键使高分子的自由体积增大,导致分子内部链间间隙扩大,促进热扩散,进一步提高热稳定性,但大体积的酰亚胺环及甲基基团削弱了这一影响,所以 PI-1 和 PI-2 在较高温度的热稳定性相差不大。DTG 曲线显示,当 PI-1 和 PI-2 处在 580~680℃ 的阶段时,酰亚胺环结构由于高温影响发生开环分解,因此 PI 的分解速率大幅度升高。两种二酐单体的结构差异对 PI 薄膜的影响体现在玻璃化转变温度 (T_g) 的差异,如图 5 所示。由图 5 可以看出,PI-1 和 PI-2 的 T_g 分别为 230℃ 和 210℃,主链中引入醚键后,分子链内旋转能力提高,降低了芳杂环结构及极性侧基三氟甲基对材料耐热性的正面影响,导致两种 PI 的 T_g 不高。由二酐单体 ODPA 所制的 PI 薄膜 (PI-1) 的重复单元中含氟量比由二酐单体 BPADA 所制的 PI 薄膜 (PI-2) 高,可以发现 PI 薄膜中氟含量的增加可以提高材料的 T_g 。因此,可通过改变 PI 中氟含量和芳杂环、醚键的分布及比例有效调控 PI 材料的热性能及 T_g 。

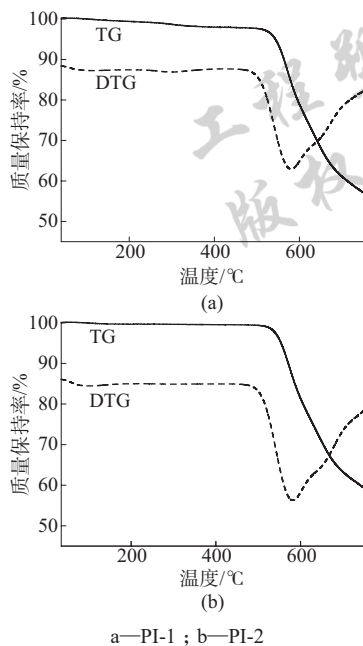


图 4 PI-1 和 PI-2 的 TG-DTG 曲线

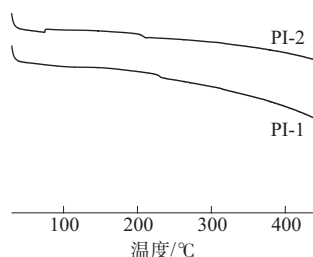


图 5 PI-1 和 PI-2 的 DSC 曲线

2.4 氟化 PI 的光学性能分析

图 6 为 PI-1 和 PI-2 薄膜的光学性能曲线。由图 6 可以看出, PI-2 的截止波长与 PI-1 相差不多,均在 310 nm 附近;在波长 320~550 nm 范围内,两种 PI 薄膜的光透过率较低,PI-2 的光透过率略高于 PI-1;在波长 600~800 nm 范围内,两种 PI 薄膜的光透过率相差不大,当波长为 690 nm 时两种薄膜的光透过率均达到 80% 以上,而同类型材料在波长为 500 nm 时可以达到 80%^[24]。聚合物整体透明度受 PI 分子链中分子之间的电荷转移络合作用的影响。二胺单体 HFBAPP 中三氟甲基基团的氟原子高电负性抑制了 PI 分子结构之间电荷转移复合物的形成,减少了电子在苯环之间的移动,从而影响材料的光学透明度。

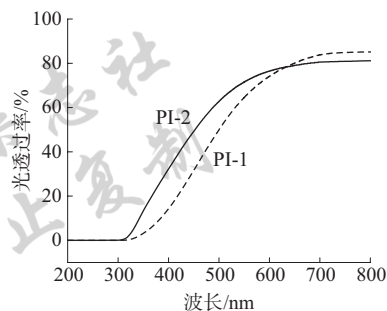


图 6 PI-1 和 PI-2 薄膜的光学性能曲线

2.5 氟化 PI 的亲疏水性

由于水的介电常数很大,高含水量或高亲水性对高分子材料的介电性能有明显影响。因此对所制的氟化 PI 薄膜进行了接触角测试,表征其亲疏水性,结果如图 7 所示。由图 7 可以看出,两种 PI 薄膜的接触角相差不大,均在 96° 左右,表现出良好的疏水性。氟化 PI 薄膜的疏水性来源于三氟甲基的强极性和低表面能,这可以减少亚胺化过程中水分的残留。而两种二酐单体对材料疏水性的影响不大。

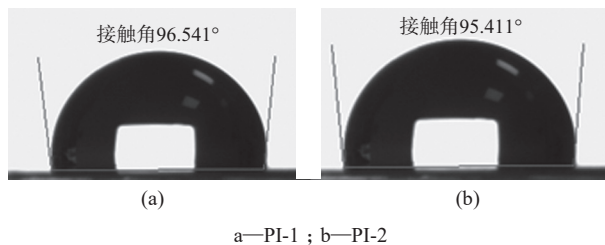


图 7 PI-1 和 PI-2 的接触角

3 结论

(1) 由 ODPA, BPADA 分别与 HFBAPP 所制的氟化 PI-1 与 PI-2 薄膜在 1 MHz 下的介电常数分别为 1.30 和 1.32,介电损耗分别为 0.046 和 0.052。醚

键和含氟官能团的复合作用可以有效降低PI的介电常数,但过多的醚键会影响PI的介电损耗。

(2) 制备的PI薄膜热学性能优异,均在510℃左右才开始发生失重,PI-1和PI-2失重5%时的温度分别为543.19℃和553.82℃,在700℃时的质量保持率分别为61.04%和63.24%。PI-1和PI-2的 T_g 分别为230℃和210℃。通过改变PI中氟含量和芳杂环、醚键的分布及比例,可以有效调控PI材料的热稳定性和 T_g 。

(3) 制备的氟化PI薄膜在690 nm处的光透过率达到80%以上,两种氟化PI薄膜具有良好的疏水性,水接触角均在96°左右。

参考文献

- [1] Grill A, Gates S M, Ryan T E, et al. Progress in the development and understanding of advanced low k and ultralow k dielectrics for very large-scale integrated interconnects—State of the art[J]. *Applied Physics Reviews*, 2014, 1(1). DOI:10.1063/1.4861876.
- [2] Maier G. Low dielectric constant polymers for microelectronics[J]. *Progress in Polymer Science*, 2001, 26(1):3–65.
- [3] Wang Z L, Zhang X R, Weng L, et al. Low dielectric constant and high toughness epoxy resin based on hyperbranched polyester grafted by flexible chain modified[J]. *Journal of Materials Science:Materials in Electronics*, 2019, 30(6):5936–5946.
- [4] Qiu G R, Ma W S, Wu L. Low dielectric constant polyimide mixtures fabricated by polyimide matrix and polyimide microsphere fillers [J]. *Polymer International*, 2020, 69(5):485–491.
- [5] Chen J B, Zeng M, Feng Z J, et al. Design and preparation of benzoxazine resin with high-frequency low dielectric constants and ultra-low dielectric losses[J]. *Acs Applied Polymer Materials*, 2019, 1(4):625–630.
- [6] Ge M N, Zhang J F, Zhao C L, et al. Effect of hexagonal boron nitride on the thermal and dielectric properties of polyphenylene ether resin for high-frequency copper clad laminates[J]. *Materials & Design*, 2019, 182(11). DOI:10.1016/j.matdes.2019.108028.
- [7] Qiu G R, Ma W S, Jiao Y Q, et al. Low-dielectric-constant aromatic homopolyimide and copolyimide derived from pyromellitic dianhydride, 4,4'-oxydianiline, 2,2-bis[4-(4-aminophenoxy)phenyl]propane, 1,4-bis(4-aminophenoxy)benzene, or 1,3-bis(4-aminophenoxy)benzene[J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2019, 136(18). DOI:10.1002/app.47405.
- [8] Wang X L, Li Y F, Tao M, et al. Synthesis and characterization of novel polyimides derived from 2,6-bis[4-(3,4-dicarboxyphenoxy)benzoyl]pyridine dianhydride and aromatic diamines[J]. *Polymer*, 2006, 47(11):3774–3783.
- [9] Purushothaman R, Bilal I M, Palanichamy M. Effect of chemical structure of aromatic dianhydrides on the thermal, mechanical and electrical properties of their terpolyimides with 4,4'-oxydianiline[J]. *Journal of Polymer Research*, 2011, 18(6):1597–1604.
- [10] Simpson J O, Clair A. Fundamental insight on developing low dielectric constant polyimides[J]. *Thin Solid Films*, 1997, 308–309(1):480–485.
- [11] 张帆. 低介电聚酰亚胺的合成及其性能研究[D]. 深圳:中国科学院大学(中国科学院深圳先进技术研究院), 2020.
Zhang Fan. Preparation and study on properties of low dielectric polyimide[D]. Shenzhen:University of Chinese Academy of Sciences(Shenzhen Institutes of Advanced Technology, Chinese Academy of Sciences), 2020.
- [12] Seino M, Wang W D, Lofgreen J E, et al. Low-k periodic mesoporous organosilica with air walls:POSS-PMO[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2011, 133(45):18082–18085.
- [13] Chen J, Shan J Y, Xu Y, et al. Polyhedral oligomeric silsesquioxanes (POSSs)-based cationic conjugated oligoelectrolyte/porphyrin for efficient energy transfer and multi-amplified antimicrobial activity[J]. *Acs Applied Materials & Interfaces*, 2018, 10(40):34455–34463.
- [14] Huang C, Li J H, Xie G X, et al. Low-dielectric constant and low-temperature curable polyimide/POSS nanocomposites[J]. *Macromolecular Materials and Engineering*, 2019, 304(12). DOI:10.1002/mame.201900505.
- [15] Wang J Y, Yang S Y, Huang Y L, et al. Preparation and properties of graphene oxide/polyimide composite films with low dielectric constant and ultrahigh strength via in situ polymerization[J]. *Journal of Materials Chemistry*, 2011, 21(35):13569–13575.
- [16] Chen X, Huang H H, Shu X, et al. Preparation and properties of a novel graphene fluoroxide/polyimide nanocomposite film with a low dielectric constant[J]. *RSC Advances*, 2017, 7(4):1956–1965.
- [17] Chen W X, Zhou Z X, Yang T T, et al. Synthesis and properties of highly organosoluble and low dielectric constant polyimides containing non-polar bulky triphenyl methane moiety[J]. *Reactive and Functional Polymers*, 2016, 108:71–77.
- [18] Hu K, Ye Q Q, Fan Y T, et al. Preparation and characterization of organic soluble polyimides with low dielectric constant containing trifluoromethyl for optoelectronic application[J]. *European Polymer Journal*, 2021, 157. DOI:10.1016/j.eurpolymj.2021.110566.
- [19] Zhang F, Li J H, Wang T, et al. Fluorinated graphene/polyimide nanocomposites for advanced electronic packaging applications[J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2020, 138(6). DOI:10.1002/app.49801.
- [20] Zuo H T, Gan F, Dong J, et al. Highly transparent and colorless polyimide film with low dielectric constant by introducing meta-substituted structure and trifluoromethyl groups[J]. *Chinese Journal of Polymer Science*, 2020, 39(4):455–464.

- [5] Prasad V, Hunize C, Abhiraj R I, et al. Advances in industrial and production engineering[M]. Berlin:Springer, 2019.
- [6] 严立云. 纺织用品中阻燃纤维的阻燃性能阐述[J]. 轻纺工业与技术, 2021, 50(9):113–114.
- Yan Liyun. Expounding on flame retardant properties of flame retardant fibers in textile products[J]. Light and Textile Industry and Technology, 2021, 50(9):113–114.
- [7] 林生根, 刘晓辉, 苏晓伟, 等. 新型植酸基阻燃剂改性 Lyocell 纤维与织物的制备及其性能[J]. 纺织学报, 2021, 42(7):25–30.
- Lin Shenggen, Liu Xiaohui, Su Xiaowei, et al. Preparation and properties of Lyocell fibers and fabrics modified with new phytic acid based flame retardant[J]. Journal of Textile Research, 2021, 42(7):25–30.
- [8] Li Shanshan, Ding Fang, Lin Xinghuan, et al. Layer-by-layer self-assembly of organic-inorganic hybrid intumescent flame retardant on cotton fabrics[J]. Fibers and Polymers, 2019, 20(3):538–544.
- [9] Chang S C, Slopek R P, Condon B, et al. Surface coating for flame-retardant behavior of cotton fabric using a continuous layer-by-layer process[J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2014, 53(10):3 805–3 812.
- [10] Alongi J, Colleoni C, Rosace G, et al. The role of pre-hydrolysis on multi step sol-gel processes for enhancing the flame retardancy of cotton[J]. Cellulose, 2013, 20(1):525–535.
- [11] 谢雨彤, 孙陵, 王晓雪, 等. 磷/氮协同阻燃棉织物制备工艺及性能研究[J]. 纤维素科学与技术, 2020, 28(2):64–70.
- Xie Yutong, Sun Ling, Wang Xiaoxue, et al. Preparation and properties of phosphorus/nitrogen synergistic flame retardant cotton fabrics[J]. Journal of Cellulose Science and Technology, 2020, 28(2):64–70.
- [12] 刘延松, 王阳, 郭寻, 等. 阻燃纤维素纺织品的研究进展[J]. 精细化工, 2020, 37(11):2 208–2 215.
- Liu Yansong, Wang Yang, Guo Xun, et al. Research progress of flame retardant cellulose fabrics[J]. Fine Chemicals, 2020, 37(11):2 208–2 215.
- [13] 薛昊, 徐灿, 白天, 等. 竹纤维-环氧树脂复合材料的树脂传递模塑成型制备工艺及界面改性[J]. 东北林业大学学报, 2020, 48(12):106–111, 123.
- Xue Hao, Xu Can, Bai Tian, et al. Preparation and interfacial modification of bamboo fiber/epoxy resin composites via RTM process[J]. Journal of Northeast Forestry University, 2020, 48(12):106–111, 123.
- [14] 刘晓龙, 谢利鹏, 张鹏, 等. 聚丙二醇二缩水甘油醚改性环氧力学性能及固化动力学[J]. 工程塑料应用, 2021, 49(4):109–114.
- Liu Xiaolong, Xie Lipeng, Zhang Peng, et al. Mechanical properties and curing kinetics of epoxy resin modified by polypropylene glycol diglycidyl ether[J]. Engineering Plastics Application, 2021, 49(4):109–114.
- [15] 程遥辉, 丁武学, 孙宇. 汽车内饰用酚醛树脂/黄麻纤维复合材料的拉伸性能[J]. 工程塑料应用, 2016, 44(12):63–67.
- Cheng Yaohui, Ding Wuxue, Sun Yu. Tensile properties of phenolic resin/jute fiber composites used in automotive interior[J]. Engineering Plastics Application, 2016, 44(12):63–67.
- [16] 莫正才, 胡程耀, 霍冀川, 等. 苧麻短纤维层间增韧碳纤维/环氧树脂复合材料[J]. 复合材料学报, 2017, 34(6):1 237–1 244.
- Mo Zhengcai, Hu Chengyao, Huo Jichuan, et al. Interlayer-toughening carbon fiber/epoxy composites with short ramie fiber[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2017, 34(6):1 237–1 244.
- [17] 余小娟. 阻燃改性苧麻增强不饱和聚酯复合材料的制备及其性能和机理研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2017.
- Yu Xiaojuan. Study on preparation, properties and mechanisms of flame retardant modified ramie fabric-reinforced unsaturated polyester resin[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2017.
- [18] Younis A A. Optimization of mechanical, thermal, and ignition properties of polyester fabric using urea and phosphoric acid[J]. Journal of Industrial Textiles, 2018, 49(6):791–808.
- [19] Xie Yanjun, Hill C A S, Xiao Zefang, et al. Silane coupling agents used for natural fiber/polymer composites: A review[J]. Composites Part A Applied Science and Manufacturing, 2010, 41(7):806–819.
- [20] 陈钰玮, 简凌峰, 翁梦蔓, 等. 聚酰亚胺介电性能改性的研究进展[J]. 绝缘材料, 2021, 54(9):9–14.
- Chen Yuwei, Jian Lingfeng, Weng Mengman, et al. Research progress on dielectric properties modification of polyimide[J]. Insulating Materials, 2021, 54(9):9–14.
- [21] Wu Y C, Ji J Q, Huang H H, et al. Facile synthesis of acyloxy-containing fluorene-based Cardo polyimides with high optical transparency, fluorescence and low dielectric constant[J]. Reactive and Functional Polymers, 2021, 166. DOI:10.1016/j.reactfunctpolym.2021.104979.
- [22] 谢高艺, 马春平, 全大萍, 等. 低介电聚合物材料研究进展[J]. 绝缘材料, 2021, 54(9):15–29.
- Xie Gaoyi, Ma Chunping, Quan Daping, et al. Research progress of low dielectric polymers[J]. Insulating Materials, 2021, 54(9):15–29.
- [23] 曹传昊. 基于不同单体的聚酰亚胺薄膜透明性及导热特性研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨理工大学, 2021.
- Cao Chuanhao. Study on transparency and thermal conductivity of polyimide films based on different monomers[D]. Harbin: Harbin University of Science and Technology, 2021.

(上接第 32 页)