

doi:10.3969/j.issn.1001-3539.2020.05.005

PA66-气凝胶复合粉体制备及性能

曹伟娜¹, 安彦飞¹, 严亚如¹, 翟静雯¹, 张玉坤², 谢铮¹, 于翔¹

(1. 河南工程学院材料与化学工程学院, 郑州 450007; 2. 黄山尚傅科技有限公司, 安徽黄山 245061)

摘要:以吸附石蜡的气凝胶 (AG) 为聚酰胺 (PA)66 的成核剂, 采用高温高压溶液沉淀法制备 PA66-AG 复合粉体, 并通过差示扫描量热仪、扫描电子显微镜、激光粒度分析仪和霍尔流速计等对复合粉体的结晶性能、微观形貌、粒度分布和流动性能等进行测试与分析。结果表明, 添加适量的 AG 后, PA66-AG 复合粉体由多层块状结构转变为密实的球形结构, 粉体的平均粒径从 180 μm 降至 67~113 μm ; PA66-AG 复合粉体中的 PA66 存在 α 、 γ 两种晶型, 且 AG 能够诱导 PA66 晶型的改变以及提高其复合粉体的结晶度; 当 AG 用量为 PA66 质量的 10%~20% 时, 复合粉体的流动性能较优, 当 AG 用量小于 30% 时, 其对石蜡的包覆率为 100%。

关键词: 聚酰胺 66; 气凝胶; 复合粉体; 流动性能

中图分类号: TQ323.6 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3539(2020)05-0023-06

Preparation and Properties of PA66-Aerogel Composite Powders

Cao Weina¹, An Yanfei¹, Yan Yaru¹, Zhai Jingwen¹, Zhang Yukun², Xie Zheng¹, Yu Xiang¹

(1. Department of Material and Chemical Engineering, Henan Institute of Engineering, Zhengzhou 450007, China;

2. Huangshan Sumf Technology Co. Ltd., Huangshan 245061, China)

Abstract: Taking aerogel (AG) adsorbing paraffin as the nucleating agent of polyamide 66 (PA66), the PA66-AG composite powders were prepared by high temperature and high pressure solvent precipitation method. The crystallization property, microstructure, particle size distribution and flowability of the composite powders were studied and analyzed by DSC, SEM, laser particle size analyzer, Hall flowmeter and so on. The results show that, PA66-AG composite powders are transformed from multilayer blocky structure to dense spherical structure and the average particle sizes of the powders are reduced from 180 μm to 67~113 μm with the addition of AG with appropriate amount. PA66 in PA66-AG composite powders has α and γ crystal forms, and AG can induce the change of PA66 crystal form and increase the crystallinity of the composite powders. When the AG addition amount is 10%~20% of PA66 mass, the flowability of the composite powders are better, and when the AG addition amount is less than 30%, the paraffin coating ratio is 100%.

Keywords: polyamide 66; aerogel; composite powders; flowing property

当今快速的科技发展下,人们生活质量越来越精致,不仅追求高品质的物质生活,而且越来越追求优异的生活环境。目前,绿色环保观念早已深入人心,成为生活中不可或缺的一部分。为此,人们开始研发绿色环保、无污染、便捷快速的材料加工方式,如选择性激光烧结^[1]、静电喷涂^[2]等,因此与其相关粉体的制备与研究显得尤为重要。聚酰胺 (PA) 是由于每个大分子链上的重复单元都含有酰胺基团而得名,其中 PA66 属于半结晶性高聚物材料,其在

较高温度下,仍能保持极高的刚度、强度和耐磨性,可持久使用,这些优异的特性是其它高分子材料不可比拟的^[3]。因此 PA66 在仪器仪表、汽车工业和其它需要高强度、高耐磨性等领域得到广泛的应用,同时 PA66 也可以进一步加工成粉体材料,以扩大 PA66 材料的应用范围,如可通过选择性激光烧结制备成相应组件或通过静电喷涂方式对物体进行镀膜。但由于 PA66 粉体的制备较为困难,因此对于 PA66 粉体的制备方法进行研究显得尤为重要,如

通讯作者: 于翔, 博士, 副教授, 硕士生导师, 主要从事 3D 打印粉体材料、光催化的研究 E-mail: yxpolymer@sina.com

收稿日期: 2020-03-01

引用格式: 曹伟娜, 安彦飞, 严亚如, 等. PA66-气凝胶复合粉体制备及性能 [J]. 工程塑料应用, 2020, 48(5): 23-28.

Cao Weina, An Yanfei, Yan Yaru, et al. Preparation and properties of PA66-aerogel composite powders[J]. Engineering Plastics Application, 2020, 48(5): 23-28.

Wang Ning 等^[4]通过剪切盘磨机制备 PA66 超细粉体,但其呈现不规则的微观形貌,本课题组前期通过高温高压溶剂沉淀法制备了用于 3D 打印的 PA66/Cu 复合粉体^[5],但其粉体粒径均大于 170 μm ,不适用于 3D 打印,因此仍需要探究合适的制备 PA66 粉体工艺与方法。

气凝胶 (AG) 可作为 PA66 的成核剂,在高温高压溶剂沉淀法制备 PA66 粉体中能够促进 PA66 的结晶,故笔者以吸附石蜡的 AG 作为成核剂 (吸附石蜡为了提高 AG 的密度,使其能够悬浮在溶剂中便于 PA66 粉体的制备),通过高温高压溶剂沉淀法制备出不同 AG 用量的 PA66-AG 复合粉体,并对其形貌、结晶性能、流动性能等进行研究分析。研究发现与前期制备的 PA66/Cu 复合粉体相比^[5],通过添加 AG 制备的 PA66-AG 复合粉体粒径更小,微观形貌更为规整,更有利于其在 3D 打印、静电喷涂等领域中的应用,从而拓展了 PA66 材料在粉体领域的应用范围。

1 实验部分

1.1 主要原料

PA66: A3X2G5, 德国巴斯夫公司;

AG: 1000 目 (粒径 13 μm), 星美科技集团;

石蜡: 西安锦源生物科技有限公司;

乙醇: 分析纯, 天津市风船化学试剂科技有限公司;

十六烷基三甲基溴化铵: 分析纯, 天津市光复精细化工研究所;

抗氧剂 Seed: 分析纯, 东莞和扬贸易有限公司。

1.2 主要设备与仪器

高压反应釜: TGYF-A 型, 巩义市予华仪器有限公司;

扫描电子显微镜 (SEM): XL-30ESEM 型, 荷兰 Philips 公司;

X 射线衍射 (XRD) 仪: D8ADVANCE 型, 德国布鲁克公司;

差示扫描量热 (DSC) 仪: Q20 型, 美国 TA 公司;

激光粒度分布仪: HYL-1076 型, 丹东市恒宇仪器有限公司;

霍尔流速计: SF-1002 型, 河北慧采科技有限公司。

1.3 PA66-AG 复合粉体的制备

首先在 70℃ 水浴加热下用 AG 吸附等质量的石蜡, 然后将 PA66 粒料与吸附石蜡后的 AG 按不

同比例加入 100 mL 的乙醇和水混合溶剂中 (乙醇与水的体积比为 7:3), 再分别加入用量为 PA66 质量 0.1% 的抗氧剂 Seed 与抗静电剂十六烷基三甲基溴化铵, 最后将其倒入带有套筒的不锈钢高温高压反应釜中密封。在磁力搅拌器作用下, 升温到 230℃, 恒温 10 min 后, 自然降温至 60℃, 取出高压釜中得到的悬浮液, 而后进行抽滤、洗涤、干燥、过筛, 得到 PA66-AG 复合粉体。其中 AG 用量为 PA66 质量的 0%, 5%, 10%, 20%, 30%。

1.4 性能测试与结构表征

微观形貌表征: 将复合粉体粘贴于样品台上, 进行喷金, 然后通过 SEM 进行观察并拍照。

XRD 测试: 采用 XRD 仪测试粉体的晶体结构, 扫描范围 10°~45°, 电压 40 kV, 电流 40 mA。

结晶性能测试: 利用 DSC 仪对粉体进行分析, 称取 3~5 mg 样品放入坩埚内进行密封, 在氮气氛围下, 以 10℃/min 的速率升温至 300℃, 然后降温至 20℃, 并记录粉体的温度热流曲线和相关数据。

粒度分布测试: 将一定量粉体溶于无水乙醇中, 在超声波水浴中震荡 5 min 后, 将溶液放入带有一定震荡的特定卡槽里进行测试。

流出速度法测试流动性能: 参照 GB/T 1482-2010 测试。

休止角法测试流动性能: 将足量的复合粉体加入漏斗中, 复合粉体自由流落在离漏斗 10 mm 直径为 15 mm 的玻璃圆片上并逐渐堆积, 直到不能继续堆高后拍照, 测量休止角 α 并记录。

压缩度测量法测试流动性能: 称取 2 g 复合粉体倒入量筒中, 记录量筒刻度, 测量多次, 取其平均值, 即得到松装密度 ρ_b ; 称取 2 g 复合粉体倒入量筒中, 放置于电磁振荡器上振荡 5 min, 测量多次, 取其平均值, 即得到振实密度 ρ_{bt} ; 压缩度 C 与豪斯那比 (HR) 值分别通过式 (1)、式 (2) 计算得出。

$$C=[(\rho_{bt}-\rho_b)/\rho_{bt}]\times 100\% \quad (1)$$

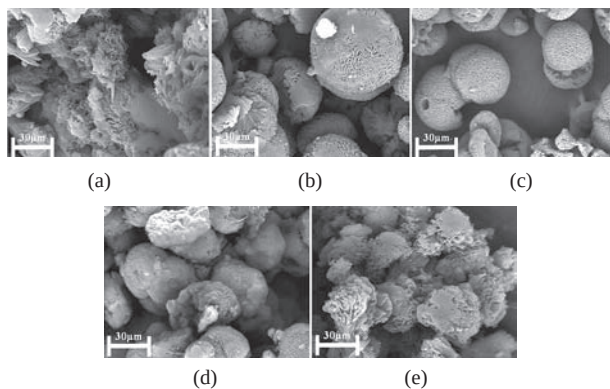
$$HR=\rho_{bt}/\rho_b \quad (2)$$

2 结果与讨论

2.1 PA66-AG 复合粉体的微观形貌

图 1 为不同 AG 用量下 PA66-AG 复合粉体的微观形貌。从图 1 可以发现, 与未添加 AG 的纯 PA66 粉体相比, 复合粉体的形貌和尺寸均有明显的区别。纯 PA66 粉体的形状极其不规则, 呈现多层块状结构。当添加 AG 后, 复合粉体的形状变得规则, 呈现出密实的球形结构, 但不同 AG 用量的粉体

尺寸具有较大差别。在 AG 用量为 5% 时,复合粉体呈现出完善的球形结构,随着 AG 用量增加,球形结构逐渐变得不规整,最后在 AG 用量为 30% 时再次变成多边的不规则结构。由于尺寸不均一的粉体表面存在大量平面接触点以及不规则粉体间的剪切力,会影响粉体的流动性,不利于粉体的铺展^[6],因此添加适量 AG 有利于复合粉体的铺展,从而有利于其在选择性激光烧结、静电喷涂等领域中的应用。

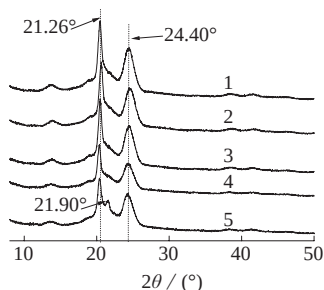


AG 用量: a—0%; b—5%; c—10%; d—20%; e—30%

图 1 PA66-AG 复合粉体的 SEM 照片

2.2 PA66-AG 复合粉体的 XRD 分析

图 2 为 PA66-AG 复合粉体的 XRD 曲线。通过对图 2 的分析可知, PA66-AG 复合粉体在 21.26° 和 24.40° 处出现的特征衍射峰分别为 PA66 的 α 晶型和 γ 晶型^[5]。在 AG 用量为 30% 时,在 21.90° 处还存在一个特征衍射峰,该峰为石蜡的特征峰,且对应着 (110) 晶面。这是由于当 AG 用量为 30% 时,溶液沉淀法制备 PA66-AG 复合粉体中,吸附石蜡的 AG 并未完全包覆石蜡,存在少量泄露。这也间接证明了在 AG 用量小于 30% 时,其对石蜡的覆盖率为 100%。



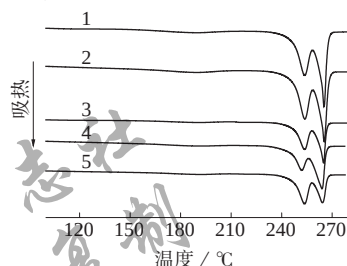
AG 用量: 1—0%; 2—5%; 3—10%; 4—20%; 5—30%

图 2 PA66-AG 复合粉体的 XRD 曲线

2.3 PA66-AG 复合粉体的结晶性能

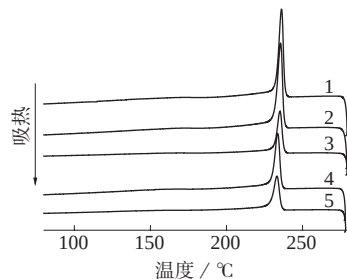
图 3 与图 4 分别为 PA66-AG 复合粉体的 DSC 升温与降温曲线,表 1 为 PA66-AG 复合粉体的 DSC 数据。可以发现,随 AG 用量的增加,复合粉

体的结晶度先升高后降低,但加入 AG 后,复合粉体的结晶度较纯 PA66 粉体均有所提高,这是由于 AG 在 PA66 的结晶过程中充当成核剂的作用,在结晶的过程中使 PA66 的分子链能够更迅速地依附在 AG 上结晶,进而提高了 PA66-AG 复合粉体的结晶度。同时从升温曲线中发现, PA66-AG 复合粉体的熔融过程中存在着两个熔融峰,由文献 [7] 可知,这两个熔融峰分别属于 PA66 的 γ 与 α 晶型。且随着 AG 用量的增加低温熔融峰的面积逐渐增大,高温熔融峰的面积逐渐减小,即 γ 晶型逐渐增多,而 α 晶型逐渐减少,这表明 AG 的加入能够诱导 PA66 晶型的转变。



AG 用量: 1—0%; 2—5%; 3—10%; 4—20%; 5—30%

图 3 PA66-AG 复合粉体的 DSC 升温曲线



AG 用量: 1—0%; 2—5%; 3—10%; 4—20%; 5—30%

图 4 PA66-AG 复合粉体的 DSC 降温曲线

表 1 PA66-AG 复合粉体的 DSC 数据

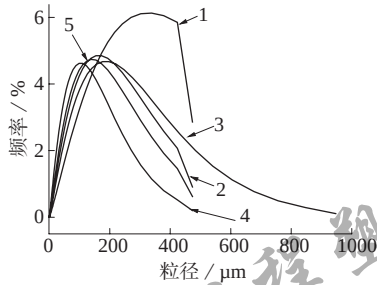
AG 用量 / %	$T_{m1} / ^\circ\text{C}$	$T_{m2} / ^\circ\text{C}$	$T_c / ^\circ\text{C}$	$X_c / \%$
0	265.18	253.64	236.21	28.3
5	265.13	253.58	235.50	35.6
10	264.87	253.57	235.14	37.3
20	264.29	251.81	233.68	35.9
30	263.99	253.58	233.18	32.3

注: T_{m1} 为高温熔融峰对应熔点; T_{m2} 为低温熔融峰对应熔点; T_c 为结晶温度; X_c 为结晶度。

2.4 PA66-AG 复合粉体的粒度分布

图 5 为 PA66-AG 复合粉体的粒径分布曲线,表 2 为 PA66-AG 复合粉体的平均粒径与粒度分布指数。结合图 5 与表 2 可知,随着 AG 用量的增加, PA66-AG 复合粉体的平均粒径呈现先减小后增大的趋势,粒度分布指数呈现先增后减的趋势,总体来看,加入 AG 后,复合粉体平均粒径由 $180\text{ }\mu\text{m}$ 降至 $67\sim 113\text{ }\mu\text{m}$ 。这说明粒径尺寸与 AG 的添加及

其用量有密切的联系,当未添加 AG 时,复合粉体的析出是一个均相成核的过程,因此其平均粒径较大。当加入 AG 后,AG 在复合粉体的析出过程中充当成核剂的作用,促进复合粉体以异相成核的过程进行结晶析出,因此其平均粒径明显降低。但当 AG 用量过多时 (AG 用量大于 20%),一方面由于 AG 会出现团聚导致有效的晶核数量下降,另一方面 AG 加入的过多会导致粉体的粘结,从而使复合粉体粒径增大,并影响复合粉体的规整度,即导致其复合粉体的微观形貌不规则。因此通过改变 AG 用量能够实现对复合粉体不同粒径尺寸及其分布的调控,以满足复合粉体不同用途的需要。如用于选择性激光烧结的粉体粒径常在 $10 \sim 100 \mu\text{m}$ ^[7-8],用于粉体涂料的复合粉体的粒径一般为 $75 \sim 200 \mu\text{m}$ ^[9]。



AG 用量: 1—0%; 2—5%; 3—10%; 4—20%; 5—30%

图5 PA66-AG 复合粉体的粒径分布曲线

表2 PA66-AG 复合粉体的平均粒径与粒度分布指数

AG 用量 / %	平均粒径 / μm	粒度分布指数
0	180.75	1.96
5	113.70	2.50
10	67.73	2.69
20	74.77	2.73
30	100.01	2.60

2.5 PA66-AG 复合粉体的流动性

在某种特定条件下复合粉体的流动能力称为复合粉体的流动性能,其与粉体的粒径、粒径分布、粉体形状、密度等基本性质有关,但其流动性并非为复合粉体的固有属性^[10]。复合粉体在静电喷涂^[11]、选择性激光烧结^[12-13]、医药制剂^[10,14]、粉末冶金^[15]等领域的应用中,其对粉体的流动性能有着重要的要求,因此对复合粉体流动性能的探究显得至关重要。由于复合粉体的流动性能受到众多因素的影响,很难用某种单一的方式来表征,因此笔者采用流出速度法、休止角法和压缩度测量法三种方式测试复合粉体的流动性。

(1) 流出速度法。

表3为不同 AG 用量的 2 g PA66-AG 复合粉

体的流完时间与流速。从表3可以看出,随着 AG 用量的增加,粉体的流完时间呈现先减后增的趋势,而粉体的流速呈现先增后减的趋势。一般来说,粉体的流速越快,其流动均匀性也越好,即流动性能越好^[16]。因此复合粉体的流动性能随着 AG 的添加呈现先增大后减小的趋势,并在 AG 用量为 10% 时其流动性能最优。

表3 PA66-AG 复合粉体的流完时间与流速

AG 用量 / %	流完时间 / s	流速 / $(\text{g} \cdot \text{s}^{-1})$
0	5.86	0.341
5	5.33	0.375
10	4.82	0.415
20	5.06	0.395
30	5.23	0.382

(2) 休止角法。

休止角主要是通过表现粉体之间的粘附力,进而反映粉体流动的难易程度,因此其休止角越小流动性能越好。表4是 PA66-AG 复合粉体的休止角数据,休止角的大小主要由粉体的尺寸以及形貌决定,其中复合粉体粒径对粉体流动性能有很大影响。由表4休止角的数据可知,随着 AG 用量的增加,PA66-AG 复合粉体的休止角先减小,当 AG 用量达到 30% 时,其休止角反而增大,即其流动性能随着 AG 用量增加呈现先增后减的趋势,当 AG 用量为 20% 时,复合粉体的休止角最小,表明该 AG 用量下复合粉体的流动性最优。

表4 PA66-AG 复合粉体的休止角值

AG 用量 / %	休止角 / $(^\circ)$
0	58.3
5	45.6
10	37.3
20	35.9
30	42.3

(3) 压缩度测量法。

表5为 PA66-AG 复合粉体的松装密度、振实密度、压缩度与 HR 值。从表5中的数据可知,PA66-AG 复合粉体的振实密度与松散密度均随着 AG 用量的增加而先增大后减小,并在 AG 用量为 20% 时,PA66-AG 复合粉体的振实与松散密度均达到最大。当 AG 用量为 30% 时,振实与松散密度均下降,这是由于当 AG 的用量过多时,在降温结晶的过程中,AG 会发生聚集现象,促使有效成核剂的数量下降,进而使粉体直径变大且使其外观形状不规则,从而导致粉体振实与松散密度下降。压缩度与 HR 值均是反映流动性能的重要指标,一般来说,粉体的压缩度越小、HR 值越小,其流动性能越好。

添加 AG 后的复合粉体的压缩度与 HR 值随 AG 用量的增加呈现先增大后减小再增大的趋势,当 AG 用量为 20% 时,复合粉体的压缩度与 HR 均小于纯 PA66 粉体,这表明该 AG 用量下复合粉体的流动性能优于纯 PA66 粉体。

表 5 PA66-AG 复合粉体的松装密度、振实密度、压缩度与 HR 值

AG 用量 / %	松装密度 / (g · cm ⁻³)	振实密度 / (g · cm ⁻³)	压缩度 / %	HR 值
0	0.26	0.32	18.75	1.23
5	0.27	0.34	20.59	1.25
10	0.29	0.36	19.44	1.24
20	0.33	0.38	13.16	1.15
30	0.24	0.31	22.58	1.29

测试方法与操作条件对流出速度法的测试结果影响较大,如孔径对粉体的流速影响极大;休止角法的影响因素主要为测试装置、方法以及实验条件等,且其仅反映粉体间的相互作用并不能反映其自身性能;压缩度测量法中主要影响压缩比与 HR 值的因素为粉体的粒径、粉体形状、附着性、密度等,因此该法也被看做复合粉体流动性能的综合评价指标,但其测试方法对压缩比与 HR 值也有较大的影响。每种表征方式的测试方法均对粉体的流动性能有较大的影响,因此在实际应用中要综合各种表征方式的测试结果来判断复合粉体的流动性能。表 6 为休止角法和压缩度测量法测试的流动性能指标与流动性能判定效果的对应表^[17],通过流出速度法的相关数据(表 3),以及表 6 中的数据与表 4 和表 5 中的相关数据对比可知,不同表征方式的结果均有所不同,但整体来说 AG 的添加能够改善复合粉体的流动性能,并且在 AG 用量为 10%~20% 时,PA66-AG 复合粉体的流动性能较佳。

表 6 休止角法和压缩度测量法测试的流动性能指标与流动性能判定效果的对应表

流动性能 判定效果	流动性能指标		
	休止角 / (°)	压缩度 / %	HR 值
非常好	25~30	0~10	1.00~1.11
好	31~35	11~15	1.12~1.18
较好	36~40	16~20	1.19~1.25
一般	41~45	21~25	1.26~1.34
略差	46~55	26~31	1.35~1.45
差	56~65	32~37	1.46~1.59
非常差	大于 65	38~100	大于 1.60

3 结论

(1) 通过高温高压沉淀法成功制备了 PA66-AG 复合粉体,发现添加适量 AG 可使 PA66-AG 复合粉体的微观形貌从多层块状结构转变为密实的球形结构,并使复合粉体的平均粒径从 180 μm 降至 67~113 μm。

(2) 通过 XRD 可证实, PA66-AG 复合粉体中的 PA66 存在 α, γ 晶型,在 AG 用量小于 30% 时,石蜡的包覆率为 100%;通过 DSC 分析可知, AG 的添加能够促进 PA66 的结晶,提高结晶度,并诱导 PA66 晶型的改变。

(3) PA66-AG 复合粉体的流动性能随 AG 用量的改变而变化,且不同测试方式的结果有所区别,但总体来说 AG 用量为 10%~20% 时,复合粉体的流动性较优。

参考文献

- [1] 张昕. 覆膜砂选区激光烧结工艺参数研究[D]. 太原: 中北大学, 2016.
Zhang Xin. Study on process parameters of selective laser sintering of coated sand[D]. Taiyuan: North University of China, 2016.
- [2] 李雪涛. 桦木板材的环氧-聚酯粉末涂饰方法与涂层特性研究[D]. 杭州: 浙江农林大学, 2015.
Li Xuetao. Research on the process and coating properties of Beech timber epoxy-polyester powder coating[D]. Hangzhou: Zhejiang Agriculture & Forestry University, 2015.
- [3] 李洪潮, 田敏, 张颖新, 等. 改性蛭石粉体填充 PA66 微观结构及性能影响研究[J]. 产矿保护与利用, 2008, 23(5): 17-20.
Li Hongchao, Tian Min, Zhang Yingxin, et al. Study on microstructure and performance influence of modified vermiculite powder filling PA66[J]. Conservation and Utilization of Mineral Resources, 2008, 23(5): 17-20.
- [4] Wang Ning, Liu Yuansen, Liu Yuan, et al. A shear pan mill for preparation of ultrafine polymers 66 powder using sodium sulfate ionic crystals as grinding aid[J]. Materials and Manufacturing Processes, 2017, 32(2): 115-120.
- [5] 于翔, 赵珂, 王延伟, 等. 3D 打印用尼龙 66 / Cu 复合粉体的制备与性能[J]. 高分子材料科学与工程, 2018, 34(9): 165-175.
Yu Xiang, Zhao Ke, Wang Yanwei, et al. Preparation and properties of PA66 / Cu composite powders for 3D printing[J]. Polymer Materials Science and Engineering, 2018, 34(9): 165-175.
- [6] 章波, 冯怡, 徐德生, 等. 粉体流动性的研究及其在中药制剂中的应用[J]. 中成药, 2008, 30(6): 904-907.
Zhang Bo, Feng Yi, Xu Desheng, et al. Study on powder fluidity and its application in traditional chinese medicine preparations[J]. Chinese Traditional Patent Medicine, 2008, 30(6): 904-907.
- [7] 马云鹏. 选择性激光烧结用聚丙烯粉末的制备研究[D]. 广州: 广东工业大学, 2016.
Ma Yunpeng. Study on preparation and application in selective laser sintering of polypropylene powders[D]. Guangzhou: Guangdong University of Technology, 2016.
- [8] 曹伟娜, 贾红友, 许智越, 等. SLS 用纳米羟基磷灰石 / 聚酰胺 6 复合粉体的制备及粉体性能分析[J]. 塑料科技, 2018, 46(6): 42-45.

- Cao Weina, Jia Hongyou, Xu Zhiyue, et al. Preparation and characterization of nano hydroxyapatite / PA6 composite powders for SLS[J]. *Plastics Science and Technology*, 2018, 46(6):42-45.
- [9] 戴军, 陆惠琴. 聚酰胺 11 固体粉末涂料 [J]. *汽车工艺与材料*, 2004(11):40-43.
- Dai Jun, Lu Huiqin. PA11 solid powder painting material[J]. *Automobile Technology & Material*, 2004(11):40-43.
- [10] 王亮, 潘静, 袁颖, 等. 医药粉体流动性评价方法研究进展 [J]. *中国粉体技术*, 2016, 22(5):28-34.
- Wang Liang, Pan Jing, Yuan Ying, et al. Advance of evaluation methods for flowability of pharmaceutical powders[J]. *China Powder Science and Technology*, 2016, 22(5):28-34.
- [11] 刘宏, 向寓华, 刘碧雄. 影响铝型材静电喷涂用粉末涂料流动性因素探讨 [J]. *表面技术*, 2011, 40(3):102-104.
- Liu Hong, Xiang Yuhua, Liu Bixiong. Discussing on the factors effecting liquidity electrostatic powder spraying in aluminium profile[J]. *Surface Technology*, 2011, 40(3):102-104.
- [12] 曹毅, 张雅琪, 孙梦迪, 等. PA1012 / n-HAP 复合粉体的制备及热性能和流动性表征 [J]. *塑料科技*, 2018, 46(1):21-25.
- Cao Yi, Zhang Yaqi, Sun Mengdi, et al. Study on thermal and flowability properties of PA1012 / n-HAP composite powders and their preparation[J]. *Plastics Science and Technology*, 2018, 46(1):21-25.
- [13] 谭磁安. 尼龙及其复合粉末流动特性的实验研究与数值模拟 [D]. 湘潭: 湘潭大学, 2017.
- Tan Cilan. Experimental study and numerical simulation on flow properties of nylon and its composite powder[D]. Xiangtan: Xiangtan University, 2017.
- [14] 李毅斌, 沈静. 粒度分布及助流剂对药物对乙酰氨基酚粉体流动性的影响 [J]. *化工与医药工程*, 2017, 38(2):25-28.
- Li Yibin, Shen Jing. Effects of particle size distribution and lubricant to flow-ability of paracetamol powder[J]. *Chemical and Pharmaceutical Engineering*, 2017, 38(2):25-28.
- [15] 常治宇, 张建良, 宁晓钧, 等. MgO 对低铝渣流动性的影响机理及热力学分析 [J]. *钢铁*, 2018, 53(7):10-15, 37.
- Chang Zhiyu, Zhang Jianliang, Ning Xiaojun, et al. Effect mechanism of MgO on fluidity of low aluminum slag and thermodynamic analysis[J]. *Iron & Steel*, 2018, 53(7):10-15, 37.
- [16] 赵义. 水泥粉体流动性能的研究 [J]. *山东建材*, 2000(3):12-13.
- Zhao Yi. Study on liquidity of cement power[J]. *Create Living*, 2000(3):12-13.
- [17] 王晨光, 方建国. 药物粉体流动性的测量方法和应用 [J]. *中国新药杂志*, 2013, 22(7):809-813.
- Wang Chengguang, Fang Jianguo. Pharmaceutical powders flow properties characterization: methods and applications[J]. *Chinese Journal of New Drugs*, 2013, 22(7):809-813.
- ~~~~~
- (上接第 5 页)
- [15] Feng Zhanbin, Yu Bing, Hu Jing, et al. Multifunctional vitrimer-like polydimethylsiloxane (PDMS): Recyclable, self-healable, and water-driven malleable covalent networks based on dynamic imine bond[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2019, 58(3):1 212-1 221.
- [16] Zheng Hua, Liu Qing, Lei Xingfeng, et al. Performance-modified polyimine vitrimers: Flexibility, thermal stability and easy reprocessing[J]. *Journal of Materials Science*, 2019, 54(3):2 690-2 698.
- [17] Zheng Hua, Liu Qi, Lei Xingfeng, et al. A conjugation polyimine vitrimer: Fabrication and performance[J]. *Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry*, 2018, 56(22):2 531-2 538.
- [18] Li Hui, Bai Jing, Shi Zixing, et al. Environmental friendly polymers based on schiff-base reaction with self-healing, remolding and degradable ability[J]. *Polymer*, 2016, 85:106-113.
- [19] 李兰. 芳香亲核取代法合成基于 1,4-环己烷二胺的透明聚酰亚胺及其性能研究 [D]. 太原: 中北大学, 2016.
- Li Lan. Synthesis and properties of transparent polyimides derived from 1,4-diaminocyclohexane via aromatic nucleophilic substitution polymerization[D]. Taiyuan: North University of China, 2016.
- [20] Liu Huan, Xu Kai, Cai Hualun, et al. Thermal properties and flame retardancy of novel epoxy based on phosphorus-modified Schiff-base[J]. *Polym Adv Technol*, 2012, 23(1):114-121.
- [21] Wang Sheng, Ma Songqi, Li Qiong, et al. Robust, fire-safe, monomer-recovery, highly malleable thermosets from renewable bioresources[J]. *Macromolecules*, 2018, 51(20):8 001-8 012.
- [22] 刘晓. 动态热力学分析在高分子材料中的应用 [J]. *工程塑料应用*, 2010, 38(7):89-91.
- Liu Xiao. Application of dynamic mechanical thermal analysis on polymer material[J]. *Engineering Plastics Application*, 2010, 38(7):89-91.
- [23] Liu Yingjun, Tang Zhenghai, Chen Junlong, et al. Tuning the mechanical and dynamic properties of imine bond crosslinked elastomeric vitrimers by manipulating the crosslinking degree[J]. *Polymer Chemistry*, 2020, 11(7):1 348-1 355.
- [24] Okabe T, Oya Y, Tanabe K, et al. Molecular dynamics simulation of crosslinked epoxy resins: Curing and mechanical properties[J]. *European Polymer Journal*, 2016, 80:78-88.
- [25] Wu Jianing, Chen Lin, Fu Teng, et al. New application for aromatic Schiff base: High efficient flame-retardant and anti-dripping action for polyesters[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2018, 336:622-632.