

doi:10.3969/j.issn.1001-3539.2022.05.029

环氧树脂的增韧研究进展

董雅卓,侯倩倩,许峰,张文申,宋磊,朱天一,冀克俭

(山东非金属材料研究所,济南 250031)

摘要:介绍了几种环氧树脂(EP)的主要增韧方法,包括橡胶增韧法、热塑性树脂增韧法、纳米颗粒增韧法、核壳粒子增韧法、互穿网络增韧法、生物质增韧法以及超支化增韧法。简述了国内外近几年EP增韧改性的研究进展,对增韧后材料的力学性能、热学性能等进行了重点关注。最后对未来EP增韧的发展方向进行了展望,指出基于多领域不同应用需求,使用多种材料、多种方法协同增韧EP机理复杂,过程较难把控,是未来的研究重点。

关键词:环氧树脂;增韧;改性

中图分类号: TQ323.5 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3539(2022)05-0170-05

Research Progress on Toughening of Epoxy Resin

Dong Yazhuo, Hou Qianqian, Xu Feng, Zhang Wenshen, Song Lei, Zhu Tianyi, Ji Kejian

(Shandong Institute of Non-metallic Materials, Jinan 250031, China)

Abstract : Several main toughening methods of epoxy resin (EP) were introduced, including rubber toughening method, thermoplastic resin toughening method, nano-particle toughening method, core-shell particle toughening method, interpenetrating network toughening method, biomass toughening method toughening method and hyperbranching toughening method. The research progress of EP toughening modification at home and abroad in recent years was briefly described, and the mechanical properties and thermal properties of the toughened materials were focused on. Finally, the future development direction of EP toughening was prospected, and it was pointed out that based on different application requirements in multiple fields, the use of multiple materials and multiple methods to synergistically toughen EP had a complex mechanism, and the process was difficult to control, which should be the focus of future research.

Keywords : epoxy resin ; toughening ; modification

热固性树脂具有由共价键形成的交联网络结构^[1]。常见的热固性树脂有环氧树脂(EP)、酚醛树脂、聚氨酯(PUR)、不饱和聚酯、双马来酰亚胺、氰酸酯、热固性聚酰亚胺等^[2]。EP是热固性树脂中重要的一类,分子中至少含有一个环氧基团,应用广泛,需求量大,不可或缺。由于碳氧电负性不同,碳原子亲电,具有较高反应活性,环氧基易与多种官能团,如羟基、氨基、羧基等发生开环反应^[3-4]。基于此结构,EP具有优异的力学性能、粘接性能、电器绝缘性及耐高温、耐磨、耐溶剂性等,其化学稳定性强、易加工、成本低、内聚力高、固化收缩率小^[5-6]。但与此同时由于其高交联的特性,存在抗冲击性差、断裂韧性低、脆性高、内应力大的缺点,限制其在高冲击和抗断裂性能要求较高的情况下使用^[7-8]。

EP的传统增韧方法为向其加入橡胶、热塑性树脂,但是传统方法会降低EP的模量、硬度等。目前新型的增韧方法如纳米颗粒增韧、核壳粒子增韧等,可在提高EP韧性的同时,使材料的模量、耐热性没有降低,有的甚至略有增加。笔者简要介绍了几种EP的增韧方法,综述了近几年在EP增韧方面的最新研究成果。

1 橡胶增韧

向EP体系中加入橡胶是目前传统EP增韧的方法之一,该方法操作简便,研究历史长,发展较为成熟。橡胶增韧方法首先让EP与橡胶形成共混体系,固化过程中,橡胶与EP相分离,橡胶颗粒析出,形成海岛结构。受到外界冲击时,分散的橡胶颗粒发生变形,大量吸收能量,从而抵抗裂纹的扩

基金项目: 技术基础科研项目(JSJL2018208A006)

通信作者: 董雅卓,硕士,主要研究方向为化学分析计量

收稿日期: 2022-03-17

引用格式: 董雅卓,侯倩倩,许峰,等. 环氧树脂的增韧研究进展[J]. 工程塑料应用, 2022, 50(5):170-174.

Dong Yazhuo, Hou Qianqian, Xu Feng, et al. Research progress on toughening of epoxy resin[J]. Engineering Plastics Application, 2022, 50(5):170-174.

展,达到增韧的效果。

Bian等^[9]采用不同含量的端羧基液体丁腈橡胶(CTBN)对EP/氮化硼体系进行增韧,通过物理共混使材料形成海岛结构,达到增韧目的。对材料的热性能、力学性能、介电性能进行表征,结果表明,CTBN的加入降低了EP交联密度,材料的玻璃化转变温度(T_g)、热稳定性也随之下降。当CTBN质量分数为5%~15%时,材料的韧性提高约32%。CTBN质量分数为5%时,复合材料的热导率比EP高约173%。添加质量分数为10%~15%的CTBN时,材料表现出最优的综合性能,其韧性好, T_g 、击穿强度、稳定性高。

臧家庆等^[10]采用预聚法,将CTBN与EP生成预聚物,加入邻苯二甲酸二丁酯(DBP)增塑剂及活性稀释剂、固化剂等固化成型。对合成的材料进行了结构、力学性能、热学性能表征,结果表明,加入质量分数25%的CTBN后,冲击强度较原EP提高131%,拉伸剪切强度也得到提高。CTBN质量分数为0%~25%时,改性EP的 T_g 先降低后增加。加入质量分数为25%的CTBN后,材料的 T_g 高于原EP的 T_g ,在达到增韧效果的同时并未降低EP的耐热性。

谭珏等^[11]以CTBN为增韧剂对EP进行增韧处理,CTBN加入量为EP质量的15%。热重(TG)分析结果表明,CTBN的加入使EP在800℃下的残炭率由23%提高至54%,大大提高EP的热稳定性。由于CTBN的粒子模量和强度小于原EP体系,增韧后的材料拉伸、弯曲强度及模量均小于原EP体系。由断面形貌可看出,增韧后材料断面呈银纹撕裂状,是韧性增强的体现。对增韧前后的EP制备成的相同密度材料进行燃气流剪切、电弧风洞烧蚀试验,结果表明,CTBN增韧后的材料线烧蚀率减低,抗剪切、抗剥蚀性能得到提高。

刘大晨等^[12]向EP中加入聚硫橡胶进行增韧,使用傅里叶变换红外光谱仪、差示扫描量热仪、扫描电子显微镜等对材料的固化过程、反应动力学及形貌进行了表征,并进行了力学性能测试。结果表明,聚硫橡胶的加入使EP固化反应的总放热量减少,固化反应相对缓和。加入30份聚硫橡胶时,材料的冲击强度可达原EP材料的896%,继续增加聚硫橡胶的加入量,增韧效果略有下降。

2 热塑性树脂增韧

热塑性树脂韧性好、模量高,使用热塑性树脂增韧EP,操作简单,增韧产物具有较高模量,耐热性、耐疲劳性好^[13]。热塑性树脂增韧EP的方法类似于橡胶增韧法。由于热塑性树脂具有高于EP的断裂伸长率及相似的弹性模量,材料受力发生开裂时,基体中的热塑性树脂起到桥联及钉锚作用,吸收能量,阻止裂纹开裂,达到增韧的目的^[14]。常用的热塑性树脂有聚醚酮(PEK)、聚醚醚酮(PEEK)、聚醚砜(PESU)、

聚醚酰亚胺(PEI)、聚砜(PSF)、聚碳酸酯(PC)、聚苯醚(PPE)、芳香聚酯等^[15]。

Chen等^[16]研究了低含量PEI和氨基接枝的多壁碳纳米管对EP力学性能、热性能、固化行为、相结构的影响,并从微纳米尺度上解释了增韧的机理。结果表明,两者的加入显著提高了EP的韧性。两种添加物分散良好,所合成的三元复合材料的弯曲强度、冲击强度及断裂韧性得到显著提升,热稳定性略有提高, T_g 显著升高。

黄壮等^[17]采用热溶法,在EP中添加PESU和碳纳米管(CNTs),达到了较好的增韧效果。对EP复合体系的微观结构、力学性能进行表征,结果表明,PESU和CNTs同时加入EP时,其微观结构表现出海岛相。两者的加入明显提高了EP的断裂韧性、弯曲强度、冲击强度。当PESU和CNTs的添加量分别为10份、0.15份时,复合材料的缺口冲击强度及断裂韧性较EP有大幅提高且达到最大值,达212 J/m和5.29 MPa·m^{1/2}。

Cai等^[18]将PSF、纤维素纳米晶(CNC)以及PSF/CNC纳米纤维素膜分别加入到EP中,对EP/CNC, EP/PSF, EP/PSF/CNC三种复合材料分别进行了研究。结果表明,EP/CNC二元材料中,在CNC质量分数为0.1%~0.5%的范围内,材料拉伸、弯曲强度及模量随CNC添加量的增加而增加。当CNC质量分数为0.5%时,二元材料具有最佳力学性能,复合材料拉伸强度及拉伸弹性模量分别比纯EP提高了13%和18%。对于EP/PSF二元复合材料,PSF的加入提高了基体的断裂韧性,但弯曲和拉伸性能会受影响。CNC可改善PSF与EP之间的相容性,三元复合材料的拉伸、弯曲强度略有提升。

张萌等^[19]使用聚丙二醇(PPG)及2,4-甲苯二异氰酸酯(TDI)合成了不同结构的PUR,然后用其改性EP,研究了PUR用量对EP性能的影响。结果表明,选用分子量为1000的PPG,当改性EP体系中TDI与PPG物质的量之比为2:1时,改性EP的断裂伸长率最大,韧性最好。PUR预聚体加入量为EP质量的10%时,复合材料的断裂伸长率达到最大值84.70%,力学性能最优。

3 纳米颗粒增韧

纳米颗粒尺寸较小(1~100 nm)而表面积大,具有强界面作用。将其添加至EP中,纳米颗粒产生应力集中效应,降低材料整体内应力,从而吸收能量,使EP的断裂行为由脆性断裂转变为韧性断裂。此方法可在增韧的同时提高热变形温度、储能模量,而是否成功增韧的重点在于纳米颗粒是否能分散均匀以及是否能形成良好的界面作用^[20]。目前较多研究的无机纳米颗粒主要有石墨烯(GO)、二氧化硅(SiO₂)及CNTs等。

Ai等^[21]探讨了不同粒径的SiO₂颗粒对EP的增韧效果。SiO₂颗粒由溶胶-凝胶法制备,并使用三乙基四胺进行改性。研究表明,相对于300 nm及500 nm的粒径,100 nm的SiO₂增韧效果最佳,储能模量、 T_g 相对于EP也得到提升。SiO₂可有效提高材料的耐热及抗衰老、抗紫外线性能。

Li等^[22]将纳米SiO₂添加至EP/玄武岩纤维复合材料中,通过扫描电子显微镜观察了复合材料的界面形貌及纳米SiO₂的分散性,发现纳米SiO₂的表面吸附了大量EP分子,且纳米SiO₂均匀分散在EP基体中,提高了玄武岩纤维与EP间的界面强度。力学性能测试结果证明了复合材料缺口冲击强度及剪切强度的提升,为新型高性能聚合物-无机纤维复合材料的开发开辟了新途径。

徐辛^[23]将PESU和纳米SiO₂粒子同时加入EP,研究其协同增韧作用。发现加入少量SiO₂或PESU时,EP的断裂伸长率和拉伸强度得到一定程度的提高,当EP、PESU、SiO₂质量比为100:5:0.3时,三元体系的拉伸强度达到最大,为114.5 MPa。断裂伸长率达5.5%,此时体系拉伸弹性模量未受影响。加入PESU的EP材料 T_g 略有下降,相比二元体系,三元体系具有更好的耐热性, T_g 高于EP基体。

胡小雨^[24]通过控制氧化时间及氧化剂用量制备了五种不同氧化程度的GO,研究了EP/GO体系的固化行为,并考察了GO对体系力学性能的影响。结果表明,加入质量分数0.2%的不同氧化程度的GO均对EP基体的拉伸强度、拉伸弹性模量及断裂韧性起到了提高作用,增韧效果取决于GO在材料中的分散性。此外,二元复合材料在玻璃态区域的储能模量都得到了提升。

4 核壳粒子增韧

核壳粒子增韧法是将具有双层或多层核壳结构的聚合物复合粒子对EP进行增韧的方法。这类聚合物复合粒子一般由两种或多种单体通过乳液聚合得到。核壳粒子增韧法可降低EP内应力,提高EP冲击性能和粘接强度,在保持EP力学性能的同时达到增韧效果。核壳粒子具有独特的双层结构,粒子的组成成分、粒子在树脂中的分散状态、粒子尺寸等是影响增韧效果的几个重要因素。

Di等^[25]研究了核壳橡胶(CSR)纳米颗粒和纳米SiO₂改性EP的力学性能、热学性能、工艺性能等。一定添加量范围内,CSR颗粒提高了树脂的断裂伸长率和韧性, SiO₂提高了基体的强度和模量。制备的复合材料工艺简单,具有较低的体系黏度,使用寿命长。

Xu等^[26]制备了聚丙烯酸正丁酯/聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)-甲基丙烯酸缩水甘油酯核壳粒子(PBMG),然后将其对EP进行增韧,并加入氮化硼以提高材料的热导率。当PBMG、氮化硼质量分数分别为5%、7%时,复合材料获得最

优性能,热导率提高了98%,无缺口冲击强度提高了147%,弯曲强度提高了49.1%。

黄力等^[27]采用原位乳液聚合合法合成了聚丙烯酸丁酯(PBA)/PMMA核壳结构纳米粒子,将其加入EP中,通过120℃热处理后,核壳粒子呈现良好的分散性。添加质量分数为15%的核壳比为1:1.5的PBA/PMMA后,EP体系的冲击强度达23.2 kJ/m²,是原EP材料的2.7倍。

王婧等^[28]采用德国瓦克公司的GENIOPERL®P52(CSP-SP)、美国陶氏公司的Paraloid EXLT™2314(CSP-BM)和Paraloid EXL™2670(CSP-PP)三种不同粒径及组成的核壳橡胶粒子,通过不同分散方法制备了核壳橡胶粒子增韧EP体系,研究了这三种不同牌号的核壳橡胶粒子对EP基体的增韧效果,解决了纳米粒子的分散均匀性问题。结果表明,母液二步分散法处理后的纳米粒子无团聚现象,分散较均匀,明显优于直接分散法。核壳橡胶粒子添加量均为8份时,三种核壳橡胶粒子增韧EP体系均具有较高的热稳定性及耐热性,断裂韧性、弯曲强度、黏度得到提升,但均出现模量下降的现象。其中,添加CSP-PP的EP体系耐热性好于其它两种体系,韧性提升最大。

5 互穿网络增韧

互穿网络为两个或两个以上交联聚合物相互贯穿形成的网络,是物理混合过程。使用此种增韧方法,不仅树脂的耐热性、冲击强度有所提高,拉伸强度也不会降低。聚合物相互缠结,可以使不同组分稳定结合,性能互补。网络在结构中起支撑作用,分散相有助于吸收能量、减少裂纹扩展。

袁智慧等^[29]使用纳米SiO₂与环氧化苯乙烯-丁二烯-苯乙烯嵌段共聚物(ESBS)复合填充,形成互穿网络结构,达到增韧EP的效果。SiO₂的加入对复合材料的耐热性产生了正面影响。SiO₂-ESBS质量分数为0.4%时,复合材料的拉伸和冲击强度提高显著,分别提高10%、32%,此时互穿网络结构起到有效支撑增韧的效果,材料具有优秀的抗疲劳性。

邢国琳等^[30]使用同步法制备了开环EP(EP-OH)/PUR互穿网络聚合物注浆加固材料。EP-OH质量分数为30%时,材料的粘结强度和拉伸强度达到最大值,为10.4、74.3 MPa。当EP-OH质量分数为20%时,材料冲击强度达到最大值(10.3 kJ/m²),是原EP的1.77倍。

6 生物质增韧

目前,环境问题愈发成为世界关注的问题。因此,越来越多研究者考虑使用可持续生物原料制备合成材料,减少对化石资源的使用。生物质原料具有环保、绿色、可再生的优点^[31],其成本低、易获得,合成的复合材料具有相对较优异的性能。

Pham 等^[32]提出了以稻壳为原料,采用热处理法制备纳米 SiO₂ 增韧 EP 的新方法。结果表明,在 EP 中添加 0.07 份稻壳基纳米 SiO₂,可将 EP 的断裂韧性提高 16.3%,基体拉伸强度和拉伸弹性模量也随 SiO₂ 添加量的增加而提高, T_g 提升 140~147℃。

Huo 等^[33]以七甲基三硅氧烷和腰果酚醛树脂为原料,合成了有机硅接枝腰果酚醛 EP (SCNER),将其作为活性稀释剂及增韧剂对酸酐固化的 EP 体系进行改性。实验证明,合成的 SCNER 在 EP 中分散性较好,可起到有效的增韧固化作用。SCNER 质量分数为 10% 时,复合材料的冲击强度达到纯 EP 的两倍,拉伸强度及断裂伸长率也得到提高,证明了低成本、可再生腰果酚作为 EP 稀释剂及增韧剂的潜力。

宋禹泉等^[34]通过改变改性蓖麻油的配方及用量,研究了其对 EP 增韧效果的影响。采用大豆油对蓖麻油进行随机酯交换反应,改变了蓖麻油与 EP 的相容性,发现材料中的脂肪酸链可析出形成微相分离,达到增强材料界面性能、增韧 EP 的效果。采用大豆油与蓖麻油质量比为 35:100 制备而成的改性蓖麻油,在加入量为树脂质量的 10% 时,可使改性蓖麻油增韧 EP 体系达到最优增韧效果,冲击强度较纯 EP 提高 80.3%。

韩涛等^[35]通过生物基氢化香豆素 (DHC) 与聚乙二醇二缩水甘油醚 (PEGDE) 交替共聚,进而与 EP 单体固化交联构建双网络结构,实现 EP 的增韧。双网络结构 EP 的 T_g 随 DHC 网络 (DHC-net) 含量增加而降低。当 DHC-net 质量分数为 30% 时,材料的冲击强度较纯 EP 增大 1 倍,拉伸强度也获得提升。

7 超支化增韧

超支化聚合物是由枝化基元组成的高度枝化的聚合物,其分子之间无缠结并含有大量端基,表现出高化学反应活性、高溶解性等优良特性。超支化增韧的机理普遍被认为是离子空穴化和化学诱导相分离。超支化颗粒被固化时,会与基体产生相分离。受到外部应力作用时,粒子旁边产生空穴,导致应力集中,诱发基体造成剪切形变,从而吸收能量,达到增韧目的。

Lou 等^[36]合成了一种功能增韧固化剂,以枝状聚酯多元醇 (p1000) 为增韧段、咪唑封闭 TDI 为官能团对 EP 进行增韧,并对固化机理进行了分析。结果表明,复合材料的 T_g 随 p1000 的添加量增高而降低,当 p1000 物质的量分数为 1% 时获得最佳固化效果,材料的拉伸剪切强度、冲击强度最理想。

宋家乐等^[37]将合成的第三代端羧基超支化聚(胺-酯)(G3)应用于甲基四氢苯酐固化 EP 体系,结果表明,当 G3 添加量为 EP 质量的 3% 时,固化体系弯曲强度达到最大值,较

原 EP 提高了 6.1%。冲击强度在 G3 掺量为 5% 时达到最大,较原 EP 提高 53.3%。体系的玻璃态模量在掺量为 1%~5% 范围内较基体有所增加, T_g 随 G3 加入量的增加而降低,这是超支化聚合物加入带来的空穴效应的结果。

8 结语

EP 具有优异的粘接、力学性能,其耐化学溶剂、电器绝缘性强,因此被制作成涂料、粘合剂、变压器、电路板、绝缘材料等广泛应用到化学化工、建筑建材、航空航天、交通运输、武器装备等领域,发挥了巨大的作用。使用多种方法增韧后的 EP 可既保持原有特性,又拥有较高的韧性,应用更加广泛^[32,38-40]。目前,各应用领域对 EP 的要求越来越高,增韧仍是研究重点。传统增韧方式影响体系黏度,降低材料模量、电性能等,新型增韧方法可在保证耐热性能的同时提高力学性能,但同时也存在短板。多种材料及方法复合改性 EP,可在获得增韧效果的同时提升材料的其它性能,但复合体系反应机理复杂,过程较难把控,将成为今后的研究重点。

参考文献

- [1] Haque S M, et al. *Energies*, 2021, 14(10). DOI:10.3390/en14102758.
- [2] Saba N, et al. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 2015, 35(6):447-470.
- [3] Jia Puyou, et al. *Green Materials*, 2019, 8. DOI:10.1680/jgrma.19.00026.
- [4] Guo Liying, et al. *Advanced Materials Research*, 2012, 490-495:3 598-3 602.
- [5] 沈杰,等. *中国石油和化工标准与质量*, 2020, 40(6):211-212.
Shen Jie, et al. *China Petroleum and Chemical Standard and Quality*, 2020, 40(6):211-212.
- [6] 蔡小霞,等. *齐鲁工业大学学报*, 2019, 33(3):29-34.
Cai Xiaoxia, et al. *Journal of Qilu University of Technology*, 2019, 33(3):29-34.
- [7] Tian Nan, et al. *Polymer*, 2016, 99:376-385.
- [8] 杨国辉. *化工技术与开发*, 2020, 49(12):28-33.
Yang Guohui. *Technology & Development of Chemical Industry*, 2020, 49(12):28-33.
- [9] Bian Xiaoming, et al. *Polymers*, 2019, 11. DOI:10.3390/polym11101548.
- [10] 臧家庆,等. *工程塑料应用*, 2021, 49(6):153-156, 164.
Zang Jiaqing, et al. *Engineering Plastics Application*, 2021, 49(6):153-156, 164.
- [11] 谭珏,等. *宇航材料工艺*, 2018, 48(1):54-57.
Tan Jue, et al. *Aerospace Materials & Technology*, 2018, 48(1):54-57.
- [12] 刘大晨,等. *合成橡胶工业*, 2020, 43(1):43-47.
Liu Dachen, et al. *China Synthetic Rubber Industry*, 2020, 43(1):43-47.
- [13] 杨玉伟,等. *弹性体*, 2021, 31(1):71-76.

- Yang Yuwei, et al. China Elastomerics, 2021, 31(1):71–76.
- [14] 杨浩,等. 工程塑料应用, 2018, 46(12):148–152.
Yang Hao, et al. Engineering Plastics Application, 2018, 46(12):148–152.
- [15] 董慧民. 工程塑料应用, 2021, 49(4):147–152.
Dong Huimin. Engineering Plastics Application, 2021, 49(4):147–152.
- [16] Chen Zhengguo, et al. Composites Communications, 2020, 21(8). DOI:10.1016/j.coco.2020.100377.
- [17] 黄壮,等. 工程塑料应用, 2021, 49(3):7–13.
Huang Zhuang, et al. Engineering Plastics Application, 2021, 49(3):7–13.
- [18] Cai Shenming, et al. Composites Science and Technology, 2019, 181. DOI:10.1016/j.compscitech.2019.05.030.
- [19] 张萌,等. 应用化工, 2018, 47(9):1 850–1 853.
Zhang Meng, et al. Applied Chemical Industry, 2018, 47(9):1 850–1 853.
- [20] 赵珩,等. 化学与粘合, 2020, 42(4):288–293.
Zhao Heng, et al. Chemistry and Adhesion, 2020, 42(4):288–293.
- [21] Ai Jie, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2021, 138(18). DOI:10.1002/app.50331.
- [22] Li Xi, et al. Journal of Polymer Engineering, 2018, 39(1):10–15.
- [23] 徐辛. 塑料工业, 2017, 45(6):101–105.
Xu Xin. China Plastics Industry, 2017, 45(6):101–105.
- [24] 胡小雨. 氧化石墨烯增韧环氧树脂及其在碳纤维复合材料的应用[D]. 上海: 东华大学, 2018.
Hu Xiaoyu. Graphene oxide toughened epoxy resin and its application in carbon fiber composites[D]. Shanghai: Donghua University, 2018.
- [25] Di Chengrui, et al. Materials, 2019, 12(23):3 853–3 863.
- [26] Xu Chen, et al. Rsc Advances, 2019, 9(15):8 654–8 663.
- [27] 黄力,等. 高分子材料科学与工程, 2020, 36(10):36–43.
Huang Li, et al. Polymer Materials Science & Engineering, 2020, 36(10):36–43.
- [28] 王婧,等. 玻璃钢/复合材料, 2018(7):5–11.
Wang Jing, et al. Fiber Reinforced Plastics/Composites, 2018(7):5–11.
- [29] 袁智慧,等. 化工新型材料, 2021, 49(8):82–87.
Yuan Zhihui, et al. New Chemical Materials, 2021, 49(8):82–87.
- [30] 邢国琳,等. 应用化工, 2017, 46(1):14–18.
Xing Guolin, et al. Applied Chemical Industry, 2017, 46(1):14–18.
- [31] 王文博,等. 化学与粘合, 2020, 42(5):388–391.
Wang Wenbo, et al. Chemistry and Adhesion, 2020, 42(5):388–391.
- [32] Pham T D, et al. Polymer Science, Series A, 2017, 59(3):437–444.
- [33] Huo Shuping, et al. Acs Omega, 2018, 3(12):16 403–16 408.
- [34] 宋禹泉,等. 现代化工, 2021, 41(2):198–202.
Song Yuquan, et al. Modern Chemical Industry, 2021, 41(2):198–202.
- [35] 韩涛,等. 高等学校化学学报, 2019, 40(5):1 043–1 050.
Han Tao, et al. Chemical Journal of Chinese Universities, 2019, 40(5):1 043–1 050.
- [36] Lou Chunhua, et al. Composites Part B:Engineering, 2018, 136:20–27.
- [37] 宋家乐,等. 中国胶粘剂, 2018, 27(10):1–4, 9.
Song Jiale, et al. China Adhesives, 2018, 27(10):1–4, 9.
- [38] 白小燕. 粘接, 2019, 40(12):16–19.
Bai Xiaoyan. Adhesion, 2019, 40(12):16–19.
- [39] Sun Jinhao, et al. Polymer, 2021, 230. DOI:10.1016/j.polymer.2021.124045.
- [40] Lanna A, et al. Advances in Polymer Technology, 2020, 2020. DOI:10.1155/2020/2123836.

(上接第 158 页)

- [18] Fowkes F M. Determination of interfacial tensions, contact angles and dispersion forces in surfaces by assuming additivity of intermolecular interactions in surfaces[J]. The Journal of Physical Chemistry, 1962, 66(2):382.
- [19] Andrade J D, Ma S M, King R N, et al. Contact angles at the solid-water interface[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1979, 72(3):488–494.
- [20] Wu S. Polymer interface and adhesion[M]. New York:Mar-cel Dekker Inc, 1982.
- [21] Owens D, Wendt R. Estimation of the surface free energy of polymers[J]. Journal of Applied Polymer Science, 1969, 13(8):1 741–1 747.
- [22] Elias L, Fenouillot F, Majesté J C, et al. Morphology and rheology of immiscible polymer blends filled with silica nanoparticles[J]. Polymer, 2007, 48(20):6 029–6 040.