

doi:10.3969/j.issn.1001-3539.2020.04.027

水凝胶海洋防污材料研究进展

董磊,刘永志,贾宁,李昌诚,赵海洲,于良民

(中国海洋大学化学化工学院,海洋化学理论与工程技术教育部重点实验室,山东青岛 266100)

摘要:对有望成为第三代污损可脱附型海洋防污材料的水凝胶防污材料进行了综述。从原材料的角度简述了聚乙二醇类、聚乙烯醇类、聚丙烯酰胺类、聚氨酯类、聚丙烯酸酯类等水凝胶的制备及国内外对其在防污材料中的应用研究。目前水凝胶防污材料存在着附着力和力学性能差、防污能力有待进一步加强等问题,提出了解决上述问题的方法。当前主要通过改变水凝胶网络结构、交联以及添加纳米材料等方式来提高水凝胶防污材料的力学性能、自修复能力和粘附性能;将具有防污能力或特殊功能的单体接枝或共聚到水凝胶高分子上提高其防污性能。

关键词:水凝胶;防污材料;海洋生物污损;仿生

中图分类号: TQ050.4+25 **文献标识码:** A **文章编号:** 1001-3539(2020)04-0155-04

Research Progress on Hydrogel Marine Antifouling Materials

Dong Lei, Liu Yongzhi, Jia Ning, Li Changcheng, Zhao Haizhou, Yu Liangmin

(Key Laboratory of Marine Chemistry Theory and Technology, Ministry of Education,

Institute of Chemistry and Chemical Engineering, Ocean University of China, Qingdao 266100, China)

Abstract : The hydrogel antifouling materials that are expected to be the third generation of fouling release marine antifouling materials were reviewed. The preparation of polyethylene glycol, polyvinyl alcohol, polyacrylamide, polyurethane, polyacrylate and their application in antifouling materials at home and abroad were briefly reviewed from the perspective of raw materials. At present, the hydrogel antifouling materials have problems such as poor adhesion and mechanical properties, and the antifouling ability needs to be further strengthened. The solutions to the above problems were proposed. The mechanical properties, self-healing ability, and adhesion properties of hydrogel antifouling materials were mainly improved by changing the hydrogel network structure, cross-linking and adding nano-materials. Grafting or copolymerization of monomers with antisoiling ability or special functions onto the hydrogel polymer to improve the antifouling performance.

Keywords : hydrogel ; antifouling material ; marine biofouling ; bionic

海洋防污涂料是防止海洋污损生物在海洋设施、海洋装备表面有害附着的重要材料。传统防污涂料在应用过程中释放出大量有毒成分,对生态环境造成了巨大危害^[1],并通过食物链间接影响到人们的身体健康。因此,具有环境友好特性的仿生防污材料成为当前防污材料领域的研究热点之一。

水凝胶是由具有三维互连网络结构、可以在水中溶胀却不溶于水的亲水性高分子与水分子形成的凝胶体系^[2-4]。1993 年, Cook 在研究水凝胶材料与人体的生物相容性时,发现聚甲基丙烯酸羟乙酯水凝胶能有效降低铜绿假单胞菌

在其表面的吸附。随后,人们又发现水凝胶类材料不仅能够抑制细菌的附着^[5],还能有效降低蛋白、多糖、海洋微藻等在其表面的吸附^[6-7]。有机化合物、细菌及海洋微藻在水凝胶表面的吸附过程是海洋设施表面发生污损的关键步骤,有机分子层及生物粘膜的形成有相当的相似性和相关性^[8-9],而水凝胶材料可以从根源上很好地阻断这一污损现象。水凝胶材料表面致密的水分子层及该材料因低弹性模量而具有的不稳定表面赋予水凝胶良好的防污损能力。这与许多大型海洋生物,如鲸鱼、海豚等,通过体表分泌粘性蛋白而形成

基金项目: 国家自然科学基金委员会 - 山东省人民政府联合基金项目 (U1706225), 国家自然科学基金项目 (51102219), 青岛海洋科学与技术国家实验室“鳌山人才”培养计划项目 (2017ASTCP-OS02), 中央高校基本科研业务费专项资金项目 (201762029)

通讯作者: 于良民,教授,博士,长江学者,研究方向为环境友好型海洋功能材料与防护技术 E-mail : yuyan@ouc.edu.cn

收稿日期: 2020-01-14

引用格式: 董磊,刘永志,贾宁,等. 水凝胶海洋防污材料研究进展 [J]. 工程塑料应用, 2020, 48(4) : 155-158, 163.

Dong Lei, Liu Yongzhi, Jia Ning, et al. Research progress on hydrogel marine antifouling materials[J]. Engineering Plastics Application, 2020, 48(4) : 155-158, 163.

的水凝胶层来防除污损生物的防污机制相同^[10-11]。同时,高分子化合物易改性的特点,使水凝胶高分子主链能够悬挂具有趋避污损生物作用的防污剂,在海水中逐渐降解抛光及赋予材料表面特殊微形貌,而能综合仿生海洋生物其它的防污损机制。水凝胶防污材料非常有希望成为环境友好型防污材料领域新的“明星”材料。笔者对当前水凝胶防污材料的研究进展进行综述。

1 水凝胶的种类

根据材料的不同,水凝胶可分为天然高分子凝胶和合成高分子凝胶两大类。天然水凝胶主要由天然多糖或蛋白组成,常见的有海藻酸凝胶、琼脂凝胶和胶原蛋白凝胶。合成凝胶则是人工合成水溶性高分子通过物理或化学交联而形成,可分为可逆的物理水凝胶和稳定的化学水凝胶^[12]。物理水凝胶是通过高分子链缠绕以及离子、氢键作用等形成,其形成与分解可随物理条件改变而发生可逆性变化,该类凝胶易被破坏。化学水凝胶是高分子通过接枝或化学交联在分子间产生新化学键而形成的三维立体网络凝胶^[13-14]。化学水凝胶的交联结构是不可逆的稳定凝胶^[15],它只能溶胀而不能溶解。

2 防海洋生物污损水凝胶的研究

人工合成水凝胶主要由聚乙二醇(PEG)类、聚乙烯醇(PVAL)类、聚丙烯酰胺(PAM)类、聚氨酯(PUR)类和丙烯酸酯类聚合物等高分子构成。

2.1 PEG类水凝胶

PEG是一种以 $-(CH_2CH_2O)_n-$ 为结构单元的高分子聚合物。其防污性能主要靠PEG水凝胶薄层产生一种排斥力,抑制细菌的靠近,阻止蛋白质的非选择性吸附,并减少微生物和细菌的粘接。这使得聚PEG水凝胶具有优良的防污性能。P. Lundberg等^[16]研制出光固化PEG基的巯基水凝胶防污材料,并通过改变PEG链长、端乙炔基和巯基交联剂,令水凝胶具有不同结构;通过牛血清蛋白吸附实验、海科贝特氏菌和双眉藻生物的防污损实验证实,PEG水凝胶链不断增长,而具有更好的防污性能。PEG高分子也存在不耐高温的缺点,35℃以上即会发生构象改变,而使抗蛋白质吸附的效果减弱,这是限制PEG水凝胶防污材料应用的一大原因。刘琳等^[17]通过调整侧链聚乙二醇丙基醚的分子量、反应温度、催化剂用量和硅油含氢量,合成了水凝胶改性有机硅防污涂层,有效地阻止了污损生物的粘附,且静态下涂层的防污效果比动态下更好。P. M. Ashraf等^[18]将含0.004%氧化铜的甲基丙烯酸乙二醇酯水凝胶涂刷在尼龙渔网材料上,90 d后水凝胶表面的污损程度大幅降低。实验证明,氧化铜在基材中与亲水性水凝胶协同作用,对抑制污损生物的粘附起着重要的作用。

2.2 PVAL类水凝胶

PVAL水凝胶是PVAL通过辐射交联、化学交联或物理交联等方法得到的水凝胶。PVAL水凝胶可以通过反复多次地冷冻解冻改变分子链运动状态,而改变PVAL高分子内部的结晶结构,进而得到物理交联PVAL水凝胶。该方法制备物理交联PVAL水凝胶具有操作简单且不用引入其它有毒化学物质的优点,大大增加了PVAL水凝胶在医学等领域的应用前景。M. Haraguchi等^[19]创新性地引用粘土纳米片代替传统化学交联剂,制备出的纳米复合水凝胶拉伸强度是传统水凝胶拉伸强度的10倍以上。韩娇等^[20]制备了无机粘土/琼脂糖改性PVAL水凝胶,极大地改善了水凝胶的力学性能,且该凝胶具有相当的防污性能。K. Rasmussen等^[21]研究了藤壶在朊藻酸盐(强阴离子型)、壳聚糖(强阳离子型)、光敏性吡啶基团取代聚乙烯醇(PVAL-SbQ,弱阳离子型)和琼脂糖(中性)水凝胶上的附着,发现PVAL-SbQ的防污性能最好,可以有效抑制金黄色葡萄球菌、白色念珠菌及大肠杆菌。周学华等^[22]综合利用循环冷冻法和液氮冷冻干燥法制备高强度多孔PVAL水凝胶,以质量分数14%的PVAL水溶液经过3次循环冷冻过程和液氮冷冻冰干,再经溶胀平衡后得到PVAL水凝胶,其拉伸强度达5.74 MPa。黄晓迪^[23]以海藻酸钠和PVAL为主要材料,通过集成氧化亚铜-单宁酸(Cu_2O -TA)纳米粒子分别制备了PVAL纳米复合水凝胶和PVAL海藻酸钠双网络纳米复合水凝胶,二者均表现出良好的水下超疏油性,掺杂 Cu_2O -TA粒子可以将水凝胶的力学性能显著提高近20倍,小球藻在水凝胶表面的粘附量降低数量与纳米粒子含量呈正相关。

2.3 PAM类水凝胶

丙烯酸酰胺(AM)及其衍生物易通过自聚或与其它烯类单体共聚而得到不同结构和性能的聚丙烯酰胺(PAM)类水凝胶。PAM与有机硅树脂复配的树脂,在海水环境形成PAM微凝胶表面,且PAM在水的作用下不断迁出、溶解释放,可实现对鱼类表皮粘液分泌行为的模仿,该涂层具有优良的防污效果。相比于低表面能的有机硅材料,该复合材料对硅藻附着的抑制率较高,但PAM与有机硅的复合防污材料力学性能差,容易脱落、开裂;然而聚丙烯酸(PAA)与有机硅树脂物理混合所得水凝胶的防污材料具有较好的力学性能^[24-25],且能形成致密并具有一定自修能力的水凝胶层。PAM、PAA与有机硅物理复合所得的两种水凝胶防污材料性能差异很大的原因,可能是PAM遇水后,其发生的溶胀程度要远大于PAA。张秀玉^[26]以蜂窝状多孔膜为模板制备了图案化壳聚糖双网络水凝胶材料,并将纳米粘土掺杂进水凝胶材料,防污性能实验表明,纳米粘土掺杂及图案化可有效地防止小球藻在双网络水凝胶表面的附着与聚集。姜道义^[27]

通过硫炔加成反应合成含有六个硫醚的爪状单体,并成功引入到温敏性聚 *N*- 异丙基丙烯酰胺水凝胶体系中,测试结果显示,负载银纳米的水凝胶具有优异的灭菌性 (99% 以上) 和抗藻类粘附性能。通过银纳米粒子与含硫聚合物的螯合交联构筑的自修复银纳米粒子水凝胶,经过长达 6 个月的海挂板测试显示了较好的防污效果。

2.4 PUR 类水凝胶

PUR 水凝胶是指以氨基甲酸酯 (—NHCOO—) 为重复结构单元的一类水凝胶。PUR 水凝胶是通过在水性 PUR 溶液中加入聚醚多元醇等交联剂制得。PUR 分子量越大,其水凝胶的强度就越高。此外, PUR 水凝胶的拉伸强度随 $[\text{NCO}]/[\text{OH}]$ 的增加而增大,但其断裂伸长率则随之降低。因此,可通过调控 $[\text{NCO}]/[\text{OH}]$ 值制得不同类型的 PUR 水凝胶。彭志远等^[28]通过 PEG (PEG2000), 2,4- 甲苯二异氰酸酯 (TDI) 及双羟甲基丙酸 (DMPA), 合成了具有异氰酸根 (—NCO) 封端的 PUR 离子聚合物,然后选用乙酸木质素作为交联剂,合成了木质素-PUR 水凝胶材料。该木质素-PUR 水凝胶的溶胀率随乙酸木质素用量的增加先增大后降低。将木质素引入 PUR 水凝胶中,可以提高 PUR 水凝胶的热稳定性。在木质素-PUR 水凝胶对硫酸铵的吸附-释放实验中,表现出明显的缓释特征。PUR 水凝胶为水凝胶防污材料提供了更多的原料选项。为了提高水凝胶防污材料在基材上的粘附性, Y. Onuki 等^[29]通过光聚合的方法将甲基丙烯酸羟乙酯和丙烯酸羟乙酯接枝到 PAA 上,所得水凝胶带有的羧基赋予该水凝胶一定的粘接性能。陶希^[30]合成了一种新型的含芳香族酰胺键的端羟基扩链剂,通过 PUR 预聚体法,得到具有交联结构的自修复 PUR 水凝胶。该 PUR 水凝胶在 25℃ 下经冰乙酸催化修复 1 d 后,其拉伸强度和断裂伸长率与原始试样相当。水凝胶涂层中的双硫键具有动态可逆交换反应,可实现水凝胶不同深度、宽度裂纹的自愈合,提高了生物材料表面水凝胶功能涂层的损伤修复能力。

2.5 聚丙烯酸酯类水凝胶

张雨生^[31]用丙烯酸酯、丙烯酸羟丙酯、丙烯酸为反应单体,二甲基双丙烯酸酯为交联剂,采用水溶液法合成了丙烯酸系高吸水树脂。该树脂水凝胶吸水后具有一定程度的仿生“沟槽”结构和“微纳”米结构,其防污功能以及与液体的接触特性,是由多种微观(多尺度效应)结构共同作用的结果。由 *N*- 乙基吡咯烷酮 (NVP) 与丙烯酸 β - 羟丙酯共聚物 / PAA 所得的互穿网络水凝胶^[32]具有温度及 pH 值双重敏感特性。在酸性条件下,由于聚 *N*- 乙基吡咯烷酮与 PAA 间的络合作用,温度越高溶胀越快;在碱性条件下,水凝胶的溶胀率远大于酸性条件下的溶胀率,且随温度的升高而逐渐增大。A. A. Kavitha 等^[33]将聚甲基丙烯酸酯与

亲双烯体双马来酰亚胺在二氯甲烷中交联得到水凝胶,所得水凝胶表面的划痕可以在 120℃ 下自动修复,经过 4 h 左右可以恢复到原始状态。当前水凝胶材料的自修复过程大多需要一定特殊的条件,如 pH 值、较高等,相关研究还需要进一步深入。此外还可以借鉴自抛光防污材料的思路,将具有趋避性的功能基团接枝到水凝胶聚合物的侧链上,通过高分子的水解、抛光,以防除污损生物。侧链接枝辣素功能基团的丙烯酸树脂属于此类^[34]。J. Kajtna 等^[35]发现, AA 复合粘土水凝胶的粘接强度明显受到粘土加入量的影响。纳米粘土复合水凝胶能够强力粘附在混凝土表面,但水凝胶中的粘土能够加快海藻等污损生物在材料表面的附着。He Hongkun 等^[36]以聚二甲基丙烯酸酯为交联剂,制得季铵盐复合有机硅树脂水凝胶,具有抑制和降低污损的效果。季铵盐功能单体,如对乙烯基苄基三甲基氯化铵 (VBTMACI),通过聚合、交联得到的水凝胶薄膜显示了极高的抗菌效率(接近 100%),但目前季铵盐水凝胶防污涂层并没有应用实例,原因可能是:(1) 季铵盐抗菌/海藻行为属于触杀,其杀死的菌/藻残留物易附着于水凝胶表面,从而降低水凝胶的防污能力;(2) 水凝胶本身存在力学强度不高、附着力低等问题。Zhang Jing 等^[37]首先通过自由基聚合反应制备丙烯酸树脂,再通过逐步聚合反应制备线型有机硅树脂,最终将二者结合制备出半穿网络丙烯酸酯/有机硅水凝胶树脂。结果表明,互穿聚合网络水凝胶树脂具有稳定的水解性能,通过实海挂板证实,半穿网络丙烯酸酯/有机硅水凝胶树脂在短期内具有优良的防污性能。Wu Gang 等^[38]以丙烯酸丁酯为主要单体,引入具有抑菌性功能单体 *N*-(2- 羟基-3- 甲基丙烯酰氧基丙基)-3- 甲氧基硅烷以及交联剂,形成结构紧密的网络结构,该网络结构涂层表面与海水接触后形成一层动态柔软的水凝胶层,可以显著地阻止污损生物的附着,在污损生物生长旺季挂板 60 d 后仅有少量污损生物附着,证明水凝胶涂层的防污性能主要是由分子链中功能单体的特性和涂层表面的结构决定的。

3 结语

当前,纯粹的水凝胶海洋防污材料的相关研究基本停滞于实验室内,其商业化应用未见报道。其原因是:(1) 水凝胶与基材的结合力差,在严酷的海洋环境中易脱落。(2) 力学性能差,易破损。(3) 防污广谱性及持久性不好。当前水凝胶防污材料的研究也主要围绕解决这几个问题开展:(1) 提高水凝胶防污材料粘附性能,得到一种能够兼顾水凝胶在基材上的粘附性及材料防污能力的分子结构或方法,成为当前水凝胶防污材料开发的问题核心。(2) 提高水凝胶防污材料的力学性能及自修复性能。高强度水凝胶可以通过改变

水凝胶网络结构和交联方式来实现^[39]。将纳米材料、无机粘土加入到水凝胶中增加高分子链间的物理及化学交联,是提高水凝胶力学性能非常有效的方法。水凝胶防污材料的力学性能还可以通过提高材料的自修复性能来实现。(3) 提高水凝胶防污材料的防污性能,可以通过将具有防污能力或特殊功能的单体接枝或共聚到水凝胶高分子上实现。

仿生防污技术已表现出优异的防污性能和良好发展前景,但海洋环境复杂多样,污损生物种类多样,使得仅依靠仿生一种防污机制难以实现长效防污。水凝胶防污材料可实现对多种海洋生物防污机制的全面仿生,有望成为第三代污损可脱附型环境友好防污材料。然而,当前水凝胶防污材料仍然存在在基材上附着力差、力学性能有待提高、防污广谱性及长效性不足等缺点。水凝胶防污材料上述问题的解决必将推动无毒环境友好型防污材料的更新换代。

参考文献

- [1] Cima F, et al. *Chemosphere*, 2012, 89(1):19–29.
- [2] Ahmed E M. *Journal of Advanced Research*, 2015, 6(2):105–121.
- [3] Naahidi S, et al. *Biotechnology Advances*, 2017, 35(5):530–544.
- [4] Bittner S M, et al. *Materials Today*, 2018, 21(8):861–874.
- [5] Magin C M, et al. *Biomacromolecules*, 2011, 12(4):915–922.
- [6] Ciriminna R, et al. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 2015, 3:559–565.
- [7] Selim M S, et al. *Progress in Materials Science*, 2017, 87:1–32.
- [8] Lundberg P, et al. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2010, 2(3):903–912.
- [9] Sepantafar M, et al. *Trends in Biotechnology*, 2017, 35(11):1 074–1 087.
- [10] 张金伟,等. *中国材料进展*, 2014, 33(2):86–92.
Zhang Jinwei, et al. *Materials China*, 2014, 33(2):86–92.
- [11] 王建华,等. *中国科学:生命科学*, 2016, 46(9):1 079–1 084.
Wang Jianhua, et al. *Scientia Sinica Vitae*, 2016, 46(9):1 079–1 084.
- [12] Hamed H, et al. *Carbohydrate Polymers*, 2018, 199:445–460.
- [13] Hennink W F, et al. *Advanced Drug Delivery Reviews*, 2012, 64(1):223–236.
- [14] Kim B, et al. *Journal of Applied Polymer Science*, doi:10.1002/app.41026.
- [15] Toh W S, et al. *Materials Science and Engineering:C*, 2014, 45:690–697.
- [16] Lundbergs P, et al. *ACS Applied Material & Interfaces*, 2010, 2(3):903–912.
- [17] 刘琳,等. *化工新型材料*, 2018, 46(9):105–108.
Liu Lin, et al. *New Chemical Materials*, 2018, 46(9):105–108.
- [18] Ashraf P M, et al. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 2016, 115:39–48.
- [19] Haraguchi K, et al. *Biomacromolecules*, 2006, 7(11):3 267–3 275.
- [20] 韩娇. 改性聚乙烯醇水凝胶的制备与防污性能研究 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工程大学, 2014.
- [21] Rasmussen K, et al. *Water Research*, 2003, 37(3):519–524.
- [22] 周学华,等. *合成材料老化与应用*, 2016, 45(4):16–21.
Zhou Xuehua, et al. *Synthetic Materials Aging and Application*, 2016, 45(4):16–21.
- [23] 黄晓迪. 氧化亚铜-单宁酸粒子基复合水凝胶制备及防污性能研究 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2018.
Huang Xiaodi. Research on preparation and antibiofouling performance of nanocomposite hydrogels based on cuprous oxide-tannic acid submicroparticles [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2018.
- [24] 郑馨秋. 水凝胶仿生涂层的制备及抗海洋微藻黏附性能研究 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工程大学, 2014.
Zheng Xinqiu. Preparation of the biomimetic hydrogel coatings and study of the antifouling performance [D]. Harbin: Harbin Engineering University, 2014.
- [25] 张金伟. *中国材料进展*, 2014, 33(2):86–94.
Zhang Jinwei, et al. *Materials China*, 2014, 33(2):86–94.
- [26] 张秀玉. 图案化双网络水凝胶膜的制备及其水下疏油性能的研究 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2017.
Zhang Xiuyu. Research on underwater superoleophobicity of patterned double-network hydrogel films [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2017.
- [27] 姜道义. 抗生物污损水凝胶的设计与应用研究 [D]. 北京: 中国科学院大学, 2017.
Jiang Daoyi. Design and application of anti-biofouling hydrogels [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Science, 2017.
- [28] 彭志远,等. *功能高分子学报*, 2010, 23(4):405–408.
Peng Zhiyuan, et al. *Journal of Functional Polymer*, 2010, 23(4):405–408.
- [29] Onuki Y, et al. *International Journal of Pharmaceutics*, 2008, 349:47–52.
- [30] 陶希. 自愈合高分子水凝胶材料的制备及应用研究 [D]. 南京: 南京邮电大学, 2016.
Tao Xi. Fabrication and applications of self-healing polymeric hydrogel [D]. Nanjing: Nanjing University of Posts and Telecommunications, 2016.
- [31] 张羽生. 丙烯酸系仿生/低表面能海洋防污涂料的研究 [D]. 大连: 大连交通大学, 2014.
Zhang Yusheng. Research of acrylic bionic / low surface energy marine antifouling coatings [J]. Dalian: Dalian Jiaotong University, 2014.
- [32] 林殷雷. 新型自愈合高分子水凝胶的设计、制备与性能研究 [D]. 广州: 华南理工大学, 2014.
Lin Yinlei. Design, preparation and properties of novel self-healing

- [2] Arulappan C, et al. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 2014, 34(1):3–18.
- [3] Asadi A, et al. *eXPRESS Polymer Letters*, 2018, 12(9):781–789.
- [4] 李培旭,等. 玻璃钢 / 复合材料, 2016(8):99–104.
Li Peixu, et al. *Fiber Reinforced Plastics / Composites*, 2016(8):99–104.
- [5] 徐竹. 合成材料老化与应用, 2016, 45(2):83–86.
Xu Zhu. *Synthetic Materials Aging and Application*, 2016, 45(2):83–86.
- [6] Ben G, et al. *Science and Engineering of Composite Materials*, 2015, 22(6):633–641.
- [7] Mohamed M, et al. *Advanced Composite Materials*, 2015, 24(S1):13–31.
- [8] Dai Jinyue, et al. *Ind Eng Chem Res*, 2018, 57:3 091–3 102.
- [9] 田谋锋,等. 玻璃钢 / 复合材料, 2016, (11):46–50.
Tian Moufeng, et al. *FRP / CM*, 2016, (11):46–50.
- [10] 王宝春,等. 玻璃钢 / 复合材料, 2015(5):71–75.
Wang Baochun, et al. *Fiber Reinforced Plastics / Composites*, 2015(5):71–75.
- [11] Yalcinkaya M A, et al. *Composites Part A:Applied Science and Manufacturing*, 2017, 102:336–346.
- [12] Amirkhosravi M, et al. *Composites Part A:Applied Science and Manufacturing*, 2018, 114:398–406.
- [13] Yalcinkaya M A, et al. *Composites Part A:Applied Science and Manufacturing*, 2019, 121:353–364.
- [14] Yokozeki T, et al. *Advanced Composite Materials*, 2015, 24(6):495–507.
- [15] Chen Dingding, et al. *Polymer Composites*, 2016, 37(5):1 435–1 442.
- [16] Ghabezi P, et al. *J Fundam Appl Sci*, 2016, 8:925–940.
- [17] Chang Chih-Yuan. *J Polym Eng*, 2015, 35(5):493–501.
- [18] Yoon S, et al. *Polymer Composites*, 2017, 38(2):217–226.
- [19] Gajjar T, et al. *Fiber and Polymer*, 2020, 21(2):384–391.
- [20] Wang Changchun, et al. *Measurement*, 2016, 90:357–364.
- [21] Yalcinkaya M A, et al. *Polymer Composites*, 2019, 40(6):2 482–2 494.
- [22] 于然,等. 工程塑料应用, 2015, 43(6):58–61.
Yu Ran, et al. *Engineering Plastics Application*, 2015, 43(6):58–61.
- [23] Matsuzaki R, et al. *Composites Part A:Applied Science and Manufacturing*, 2016, 84:43–52.
- [24] Geng Yi, et al. *Composite Structures*, 2019, 208:517–524.
- [25] Nauheimer M, et al. *IFAC PapersOnline*, 2018, 51(15):383–388.
- [26] Loudad R, et al. *Journal of Composite Materials*, 2017, 51(24):3 441–3 452.
- [27] Rubino F, et al. *Polymers*, 2019, 11(1):doi:10.3390/polym11010020.
- [28] 叶乔丹. 真空灌注复合材料风电叶片工艺的模拟研究 [D]. 天津: 天津工业大学, 2018.
Ye Qiaodan. *Study on the simulation of wind turbine blade composites by VARTM process*[D]. Tianjin:Tianjin Polytechnic University, 2018.
- [29] 王科,等. 高分子材料科学与工程, 2015, 31(11):124–129.
Wang Ke, et al. *Polymer Materials Science and Engineering*, 2015, 31(11):124–129.
- [30] 余松标. 纤维增强复合材料 VARTM 工艺树脂固化过程中温度场的研究 [D]. 南昌: 南昌大学, 2016.
Yu Songbiao. *Study on temperature field in resin curing stage for fiber reinforced composites by VARTM process*[D]. Nanchang:Nanchang University, 2016.
- [31] Yu Qiyong, et al. *Composites Part B:Engineering*, 2018, 136:126–134.
- [32] Chen Qihui, et al. *Composites Science and Technology*, 2017, 114:202–207.
- [33] Siwowski T, et al. *Composite Structures*, 2018, 206:814–827.
- [34] 赵安安,等. 工程塑料应用, 2018, 46(4):145–149.
Zhao Anan, et al. *Engineering Plastics Application*, 2018, 46(4):145–149.
- [35] 包建文,等. 科技导报, 2018, 36(19):52–63.
Bao Jianwen, et al. *Science & Technology Review*, 2018, 36(19):52–63.
- [36] 梅启林,等. 玻璃钢 / 复合材料, 2014(9):52–62.
Mei Qilin, et al. *Fiber Reinforced Plastics / Composites*, 2014(9):52–62.
- [37] 陈卢松. 塑料, 2018, 47(2):93–96.
Chen Lusong. *Plastics*, 2018, 47(2):93–96.
- [38] 张曼曼. 真空辅助树脂注射成型技术的实验与模拟研究 [D]. 上海: 东华大学, 2014.
Zhang Manman. *Experimental and simulation study on vacuum assisted resin infusion process*[D]. Shanghai:Donghua University, 2014.

(上接第 158 页)

- polymer hydrogels[D]. Guangzhou:South China University of Technology, 2014.
- [33] Kavitha A A, et al. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2009, 1:1 427–1 436.
- [34] Keefe A J, et al. *Biomacromolecules*, 2012, 13(5):1 683–1 687.
- [35] Kajtna J, et al. *International Journal of Adhesion and Adhesives*, 2009, 29(5):543–550.
- [36] He Hongkun, et al. *Polym Chem*, 2014, 5:2 824–2 835.
- [37] Zhang Jing, et al. *Carbohydrate Polymers*, 2019, 225:doi:10.1016/j.carbpol.2019.115160.
- [38] Wu Gang, et al. *Journal of Applied Polymer Science*, 2016, doi:10.1002/app.44111.
- [39] Ye Bihua, et al. *Acta Polymerica Sinica*, 2016 (2):134–148.