

doi:10.3969/j.issn.1001-3539.2013.06.023

PP/EPDM 共混体系增韧技术研究进展^{*}

李梦婷,杨斌,苗继斌,夏茹,钱家盛,陈鹏

(安徽大学化学化工学院,绿色高分子材料安徽省重点实验室,合肥 230601)

摘要:从乙烯/丙烯/二烯烃共聚物(EPDM)增韧、 β -PP 晶增韧以及刚性粒子增韧等方面对 PP/EPDM 共混体系的增韧技术进行综述,展望了 PP 增韧改性研究的发展趋势。

关键词: 乙烯/丙烯/二烯烃共聚物; β -PP; 刚性粒子; 增韧

中图分类号: TQ325.1+4

文献标识码: A

文章编号: 1001-3539(2013)06-0107-05

Research Progress of Toughening Technology in PP/EPDM Blends

Li Mengting, Yang Bin, Miao Jibin, Xia Ru, Qian Jiasheng, Chen Peng

(College of Chemistry and Chemical Engineering, Key Laboratory of Environment-Friendly Polymeric Materials of Anhui Province, Anhui University, Hefei 230601, China)

Abstract : Toughening technology of PP / EPDM blends were discussed from the aspects of ethylene-propylene-diene rubber(EPDM), β -PP crystal as well as rigid particles. The research prospect of PP toughening modification was also put forward.

Keywords : EPDM ; β -PP ; rigid particles ; toughening

聚合物材料在实际使用过程中不仅需要具有较高的强度,而且还应具有较高的韧性,有关塑料增韧的研究一直是高分子材料学科的重要课题之一。20 世纪 40 年代即出现橡胶改性刚性聚合物抗断裂性能的应用研究,自此橡胶增韧塑料随之蓬勃发展起来^[1]。聚丙烯(PP)是一种半晶聚合物,具有优良的力学和耐热性能,同时具有优良的电绝缘性能和化学稳定性,是通用塑料中最轻的一种,现已被广泛应用在汽车、机械、家电、包装等领域^[2-5]。然而 PP 的成型收缩率大、低温脆性大、耐磨性不高缺点使其不能很好地满足工程应用需要,这在很大程度上限制了 PP 的广泛应用^[6-7]。

近年来,国内外对 PP 高性能改性技术的研究非常活跃,所采用的方法包括合金化^[8]、复合化^[9-10]、交联^[11-12]、高结晶化^[13]以及形态控制等^[14]。其中,采用乙烯/丙烯/二烯烃共聚物(EPDM)对 PP 的改性是最常用、最有效的手段,EPDM 可以明显改善 PP 的韧性,克服 PP 韧性对温度和加载速率的依赖性^[15]。其中向 PP/EPDM 体系中加入成核剂、填充无机刚性粒子等方法受到广泛的关注。

1 EPDM 增韧

1.1 动态硫化

华东理工大学吴唯提出了“基体层厚度 τ ”(橡胶颗粒表面之间的距离)和“临界基体层厚度 τ_c ”(临界橡胶颗粒表面之间的距离)的概念,并将其作为橡塑共混材料“脆-韧转变”的依据。 τ_c 是决定共混物能否发生“脆-韧转变”的特性参数,只有当体系中 τ 小于 τ_c 时才有增韧的可能;反之,

如果体系 τ 高于 τ_c ,则材料表现为脆性。

金自游和 Wang Huijuan 等^[16-17]对简单共混以及动态硫化 PP/EPDM 的力学性能、形态结构、流动性能和“脆-韧转变”进行了研究,发现随着 EPDM 含量的增加,共混物的弯曲弹性模量降低,熔体流动速率(MFR)减小,其中动态硫化 PP/EPDM 改变最为显著。动态硫化共混物中 EPDM 颗粒更小, τ_c 值比简单共混时更大。这表明,动态硫化较之简单共混时的增韧效率更高。通过计算所得不同 EPDM 含量的 PP/EPDM 在动态硫化和简单共混时的 τ 如表 1 所示。

表 1 不同 EPDM 含量的 PP/EPDM 基体层厚度 μm

PP/EPDM(质量比)	动态硫化 τ	简单共混 τ
95 / 5	0.78	0.82
90 / 10	0.46	0.59
85 / 15	0.30	0.36
80 / 20	0.20	0.36
75 / 25	0.13	0.20

简单共混时 $\tau_c=0.2 \mu\text{m}$,而动态硫化时 $\tau_c=0.3 \mu\text{m}$ 。根据 A.Arostegui 等^[18-19]的研究结果, τ_c 与用于增韧的弹性体的模量有关,基体和增韧剂模量的差值是影响 τ_c 的一个重要因素。对于简单共混物和动态硫化物,经硫化的橡胶颗粒的模量要大于没有硫化的橡胶颗粒的模量,简单共混 PP/

^{*} 国家自然科学基金项目(51273001,51203002),安徽省教育厅重点研究项目(KJ2012A011)、教育部博士点基金项目(20113401110003)

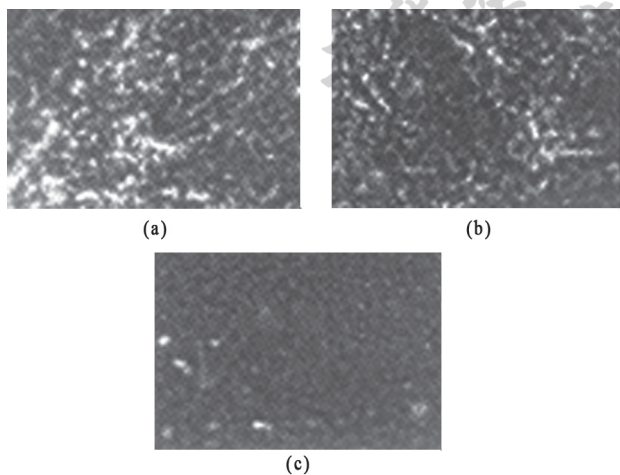
联系人: 杨斌,主要从事聚合物基复合材料制备及性能研究

收稿日期: 2013-03-17

EPDM 体系中 PP 基体和没有硫化的增韧剂 EPDM 模量值相差较大, τ_c 较小, 动态硫化 PP/EPDM 体系中 PP 基体和动态硫化的 EPDM 模量值相差小, τ_c 较大。

1.2 相容性

聚合物之间的相容性越好, 分散相在基体中的分散形态越细、分散越均匀, 增韧效果越好, 采用增容剂可以有效地改善 PP/EPDM 的相容性^[20-21]。田明等^[22]采用酚醛树脂 (PF) 接枝改性 PP (PP-g-PF) 和马来酸酐 (MAH) 接枝乙烯-辛烯共聚物 (POE) (POE-g-MAH) 作为增容剂, 利用动态硫化技术制备热塑性弹性体。图 1 是未增容及增容的 PP/EPDM (70/30) 的相差显微照片。从图 1 可以看出, 增容剂改善了 PP 与 EPDM 间的界面粘合, 使交联 EPDM 在动态硫化时被机械剪切破碎细化, 更均匀地分散在 PP 基体中, 提高了 PP 韧性。增容剂对 PP/EPDM 的增韧机理可以通过 PP 异相成核及晶粒细化来解释。通常 PP 均相成核时形成完善且尺寸较大的球晶结构, 异相成核时形成不完善且尺寸较小的球晶^[23-26]。在 PP/EPDM 体系中硫化后的 EPDM 分散在 PP 基体中充当晶核, 加入增容剂使得 EPDM 在 PP 基体中分布更精细、均匀, 晶核数目增多, PP 结晶速度增大, 最终形成更多、更细小的 PP 晶体, 从而使材料韧性提高。



a—未增容体系; b—PP-g-PF 增容; c—POE-g-MAH 增容

图 1 PP/EPDM (70/30) 共混体系相差显微照片

2 β -PP 晶增韧

等规聚丙烯 (iPP) 是一种多晶型聚合物, 在不同的结晶条件下可生成 α , β , γ , δ 以及拟六方态等多种晶型^[27-30], 其中 β -PP 晶尺寸较小, 晶粒较细, 具有良好的冲击性能和较高的热变形温度^[31]。另有研究表明^[32], β 晶增韧和 EPDM 增韧具有协同效应。因此, 在 PP/EPDM 体系中诱导生成 β -PP 晶可以更为有效地改善复合材料的冲击韧性。

2.1 成核剂

β 成核剂 (β -NA) 是目前获得高 β -PP 晶含量最直接有

效的方法。研究表明^[33-36], 向 PP/EPDM 体系中加入 β -NA 可以提高 β -PP 晶含量, 并提高共混物的韧性。当成核剂的用量达到一个最小临界值时, β -PP 晶开始生成, 随后 β -PP 晶的含量随着成核剂的含量增加而增加。但是当成核剂达到一个最高临界值时, β -PP 晶的含量几乎不再变化。在此过程中总晶型含量保持稳定, α , β 两相相互竞争, 随着 β -PP 晶含量的增加, β -PP 晶体尺寸变小, α -PP 晶则相反, 如图 2 所示^[33]。

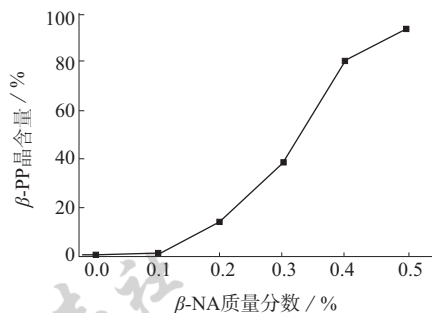


图 2 β -PP 晶含量与成核剂用量的关系

通过使用不同配比的 α 和 β 成核剂控制 β -PP 晶的含量, 其值可达到 79%。目前, β 成核机理主要基于异相成核中的附生结晶理论, 其具体解释尚存有争议。其中, Li Xiaojun 等^[37]认为 PP 熔融结晶过程中, 成核剂起“模板作用”诱导附生结晶的能力与成核剂化学结构无关, 而与成核剂某个表面上的晶胞参数是否匹配有关, 成核剂与 PP 之间的结构匹配性决定了其成核效果。T.Kawai 等^[38]研究了磁场作用下 N,N' -二环己基-2,6-萘二酰胺 (DCNDCA) 诱导 PP 结晶情况, 认为由于 PP 的 β 片晶 c 轴与成核剂的 b 轴平行, 并且 PP 螺旋链上的两个方向相同的甲基间距与 DCNDCA 的 (b , c) 晶面周期孔空穴相匹配, 使甲基正好进入孔穴中, 发生附生结晶。常用的 β 成核剂可以分为有机、无机两类^[39], 有机类包括稠环芳烃类 (染料类等)、有机酸及其盐类和酰胺类等, 无机类包括无机盐类、氧化物 (如表 2 所示)。

2.2 温度场

不同的温度场对于晶体的生长有着至关重要的作用, 采用温度梯度高达 $300^\circ\text{C}/\text{cm}$, 生长速率低至 $3\ \mu\text{m}/\text{min}$ 的区域固化方法, 发现 PP 的 α 相前沿很容易发生生长转变, 诱导形成 β 晶。Tang Xueguang 等^[40]通过差示扫描量热 (DSC) 法、广角 X 衍射 (XRD) 等方法研究不同厚度的 PP/EPDM 共混物试样, 发现共混物在保持总晶型不变情况下 β -PP 晶含量随试样厚度而增加。主要由于厚度较大的试样在厚度方向上存在较强的温度场。其机理在于 α -PP 晶比 β -PP 晶更稳定, 形成 α -PP 晶越过的能垒较低, 所需能量较低, 所以通常主要形成 α -PP 晶, 但在强温度场诱导下, 高分子链沿着温度场取向, 导致体系混乱度减少, 由 $\Delta G = \Delta H - T \Delta S$ 可知,

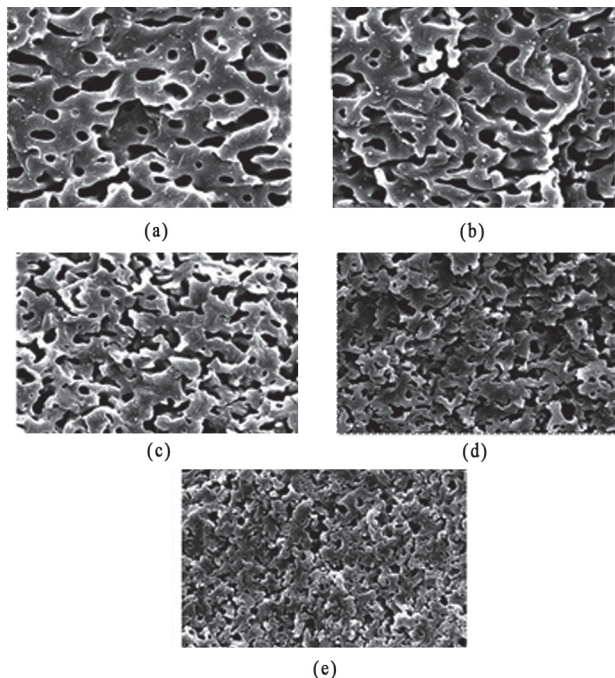
表 2 成核剂种类

分类		β 成核剂
稠环芳烃类 (染料、颜料类)	有机染料 (溶靛素金黄、灰、棕和紫红等)	γ - 喹吖啶酮
		三苯二噻嗪 (TPDT)
		δ - 喹吖啶酮
有机类	有机酸及其盐类	喹吖啶酮醌
		双白色染料 PE MB 偶氮黄
		邻苯二亚甲基氢二酸钠
有机类	有机酸及其盐类	邻苯二亚甲酸钙
		钙的化合物与庚二酸的复合物
		硬脂酸钙和庚二酸的复合物
有机类	有机酸及其盐类	多聚羧酸钙盐和锌盐
		己二酸肼和辛二酸
		辛二酸钙或庚二酸钙
有机类	有机酸及其盐类	稀土配合物
		二环己基对苯二甲酰胺 (DCHT)
		2,6- 苯二甲酸环己酰胺
无机类	无机盐类	硅酸钙
		碳酸钙
		硫酸钙
无机类	氧化物类	三氧化二铝

ΔG 增大,导致系统具有较高的能量并越过能垒,从而形成 β -PP 晶。

2.3 空间受限

以 PF 为固化剂,对动态硫化 PP/EPDM 体系进行研究,发现 EPDM 在 PP 基体中的分散形态发生了一系列变化^[41-42]。随着 PF 含量的增加,EPDM 先由分散态变为连续态,后又由连续态变为分散态。图 3 是不同 PF 含量时体系的扫描电子显微镜 (SEM) 照片。进一步研究^[41]发现共混物的形态结构对 β 相的生长有重要影响,当连续相 EPDM 为取



PF 质量分数: a—0%; b—1%; c—2%; d—4%; e—6%

图 3 不同 PF 含量的 PP/EPDM 共混物 SEM 照片

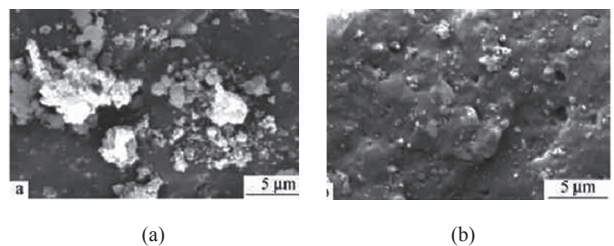
向结构体系时, β 相含量更高。PP 球晶的生长机理分别是: (a) 中心多向生长理论,即球晶晶片无明显扭曲,晶片由中心向四周发散呈辐射状生长,球晶中心晶片非球形对称排列,远离中心,晶片沿径向向外发散生长; (b) 约束单向生长理论,即球晶晶片沿径向以相同周期与位向扭转生长。 β -PP 的生长遵从约束单向生长理论,最终生成片状的 β 球晶。空间限制导致定向,在纤维增强复合材料中高分子晶体生长是沿着纤维通道进行的。在 PP/EPDM 体系中 EPDM 呈纤维状,形成狭缝,使 β -PP 晶的生长空间受到限制,只有当晶片沿着狭缝方向时才能生长,并由此导致了 β -PP 晶的定向生长。当体系中 EPDM 呈连续态分布时有利于 β -PP 晶的生成,从而有利于提高复合材料的韧性。

3 刚性粒子增韧

纳米级微粒尺寸小、比表面大、表面能高,位于表面的原子比例大,活性高,将其加入 PP/EPDM 共混体系中可以使聚合物间相界面的粘附强度提高,除了提高韧性,还能增加体系的刚性^[43]。例如将纳米 TiO_2 ^[44-45]、纳米有机粘土^[46-48]、纳米金刚石^[49]、纳米石墨^[50]、炭黑^[51-52]和莫来石^[53-54]等加入 PP/EPDM 体系形成三元复合材料已有研究,笔者着重介绍 CaCO_3 和 SiO_2 填料对 PP/EPDM 共混体系的影响及机理。

3.1 CaCO_3 填料

CaCO_3 既能发挥刚性粒子填充基体的增强作用,又能有效提高材料韧性,显示出独特的优越性^[55-56]。但 CaCO_3 粒子亲水疏油,易发生团聚,与 PP、EPDM 相容性较差,致使 CaCO_3 粒子优势难以得到发挥^[57]。然而研究表明, CaCO_3 粒子仍能在一定程度上增韧 PP/EPDM 共混物^[58-60],这主要由于加工流场诱导形成的特殊结构使体系在冲击作用下产生空穴化和纤维化。朱德钦等^[57]在 CaCO_3 表面化学键合上与 PP 基体性质相近的聚丙烯蜡来提高 CaCO_3 粒子与 PP/EPDM 体系的相容性。图 4 和图 5 分别是 PP/EPDM / 未改性 CaCO_3 和 PP/EPDM / 改性 CaCO_3 (100 / 10 / 15) 复合材料的冲击断面经二甲苯刻蚀前后的 SEM 照片。从图中可以看出,改性 CaCO_3 粒子与 PP 基体之间的界面趋于模糊,在基体中的分散性得到明显改善,大部分形成以 EPDM 为壳、以 CaCO_3 粒子为核的“核-壳”结构,仅有少量 CaCO_3 粒子分散在 PP 基体中 (图 5b)。



a—刻蚀前; b—刻蚀后

图 4 PP/EPDM / 未改性 CaCO_3 复合材料冲击断面 SEM 照片

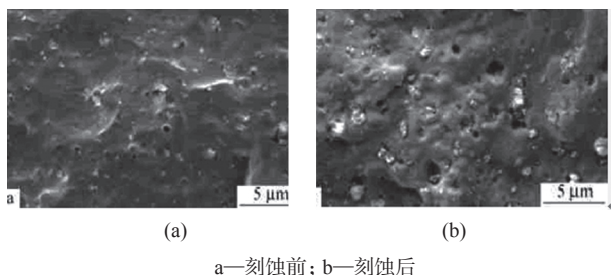


图5 PP/EPDM/改性 CaCO_3 复合材料冲击断面SEM照片

这种“核-壳”结构可以有效地提高弹性体的表观体积分数,它们与纯弹性体一样可以有效地产生应力集中释放对塑性变形的限制,诱发基体产生剪切变形,增强体系的冲击韧性。此外,用凹凸纳米碳棒掺杂PP/EPDM体系也可以得到类似的“核-壳”结构^[61]。

3.2 SiO_2 填料

纳米 SiO_2 由于其无机刚性及高比表面积的特点,可用于提高复合材料的硬度、耐刮伤性等性能^[62]。Yang Hong等^[63]分别通过一步法、两步法工艺向PP/EPDM共混体系中加入亲水性或亲油性 SiO_2 。通过SEM观察发现,当用两步法向体系中加入亲水性 SiO_2 时可以形成一种与 CaCO_3 加入体系时类似的“核-壳”结构,不同的是在PP/EPDM/ SiO_2 体系中,是以亲水性 SiO_2 为壳,以EPDM为核。图6是该“核-壳”结构的SEM照片。这种特殊的结构引起的EPDM和 SiO_2 之间应力体积的重叠使PP/EPDM冲击强度显著提高。图7为未加入及加入 SiO_2 对PP/EPDM共混体系形成“核-壳”结构后应力体积叠加的应力场示意图。可看出“核-壳”结构使得应力场增大,更高的应力场导致冲击性能提高。

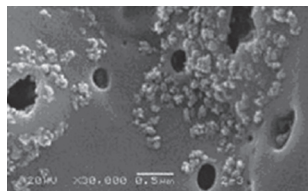


图6 以EPDM为核以亲水性 SiO_2 为壳的SEM照片

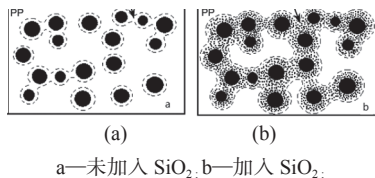


图7 形成“核-壳”结构的应力体积叠加应力场

4 展望

现阶段PP/EPDM的增韧可以通过使用动态硫化、增大体系中 β -PP晶的含量、向体系中加入刚性粒子等途径来实现。其中,提高 β -PP晶的含量已成为近年来的研究热点。由于PP中 β 晶具有较高的热变形温度以及良好的耐撕裂性能和延展性,可赋予体系更好的物理力学性能,但由于共混

体系中的 β -PP晶相对含量较低,对增韧改性的效果贡献有限。如果能够全面了解体系中 β 晶的形成机理,寻求更为可行的方法来提高 β 晶含量,则有望进一步扩展PP在汽车工业、管道板材行业、家电产品行业等各个领域的应用。

参考文献

- [1] 王荣伟. 合成树脂及塑料, 2012, 29(2): 69-74.
Wang Rongwei. China Synthetic Resin and Plastics, 2012, 29(2): 69-74.
- [2] Liu Guangyong, et al. Polymer Bulletin, 2013, 70(3): 849-857.
- [3] 马国玉, 等. 中国塑料, 2012, 26(5): 78-82.
Ma Guoyu, et al. China Plastics, 2012, 26(5): 78-82.
- [4] 韩明哲, 等. 合成树脂及塑料, 2011, 28(2): 39-42.
Han Mingzhe, et al. China Synthetic Resin and Plastics, 2011, 28(2): 39-42.
- [5] 卢晓英, 等. 高分子通报, 2012(4): 25-29.
Lu Xiaoying, et al. Polymer Bulletin, 2012(4): 25-29.
- [6] 杨勇, 等. 高分子材料科学与工程, 2006, 22(6): 130-133.
Yang Yong, et al. Polymeric Materials Science and Engineering, 2006, 22(6): 130-133.
- [7] 薛颜彬, 等. 塑料科技, 2007, 35(6): 102-107.
Xue Yanbin, et al. Plastics Science and Technology, 2007, 35(6): 102-107.
- [8] Yang Zhugen, et al. European Polymer Journal, 2008, 44(11): 3754-3763.
- [9] Jiang Xuiliang, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2006, 99(5): 2752-2758.
- [10] Kim Y H, et al. Macromolecular Research, 2009, 17(2): 110-115.
- [11] Maiti M, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2006, 102(6): 5463-5471.
- [12] Wang Zhengzhou, et al. Polymers for Advanced Technologies, 2009, 20(4): 393-403.
- [13] Weon J I, et al. Journal of Materials Science, 2006, 41(8): 2291-2300.
- [14] Li Yunyan, et al. Journal of Macromolecular Science, Part B: Physics, 2007, 46(3): 487-502.
- [15] 樊鹏鹏, 等. 中国塑料, 2010, 24(4): 21-26.
Fan Pengpeng, et al. China Plastics, 2006, 24(4): 21-26.
- [16] 金自游, 等. 中国塑料, 2006, 20(1): 25-30.
Jin Ziyu, et al. China Plastics, 2006, 20(1): 25-30.
- [17] Huang Huijuan, et al. Journal of Elastomers and Plastics, 2010, 42(1): 75-91.
- [18] Arostegui A, et al. Polymers for Advanced Technologies, 2003, 14(6): 400-408.
- [19] Arostegui A, et al. Polymer, 2003, 44(18): 5227-5237.
- [20] Wu Ningjing, et al. Acta Polymerica Sinica, 2010(3): 316-323.
- [21] Li Shucai, et al. Journal of Polymer Science, 2011, 121(5): 2614-2620.

- [22] 田明,等.合成橡胶工业,2003,26(3):144-147.
Tian Ming, et al. China Synthetic Rubber Industry, 2003, 26(3):144-147.
- [23] Xu Xiaodong, et al. Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics, 2004, 42(6):1 042-1 052.
- [24] Huang Hua, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2003, 90(3):824-829.
- [25] Cui Limei, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2007, 105(2):379-389.
- [26] Jiang Xueliang, et al. Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics, 2004, 42(7):1 181-1 191.
- [27] Busio V, et al. Progress in Polymer Science, 2001, 26(3):443-533.
- [28] Yamamoto Y, et al. Macromolecules, 2007, 40(8):2 745-2 750.
- [29] De R C, et al. Journal of the American Chemical Society, 2006, 128(34):11 024-11 025.
- [30] Jin Y, et al. Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics, 2006, 44(13):1 795-1 803.
- [31] 安峰,等.合成树脂及塑料,2003,20(3):44-48.
An Feng, et al. China Synthetic Resin and Plastics, 2003, 20(3):44-48.
- [32] 郭敏怡,等.中国塑料,2005,19(6):51-54.
Guo Minyi, et al. China Plastics, 2005, 19(6):51-54.
- [33] Tang Xueguang, et al. European Polymer Journal, 2009, 45(5):1 448-1 453.
- [34] Li Xiaoxi, et al. Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics, 2011, 49(12):898-906.
- [35] Bai Hongwei, et al. Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics, 2008, 46(17):1 853-1 867.
- [36] 王维康,等.高分子材料科学与工程,2011,27(2):159-162.
Wang Weikang, et al. Polymeric Materials Science and Engineering, 2011, 27(2):159-162.
- [37] Li Xiaojun, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2002, 86(3):633-638.
- [38] Kawai T, et al. Polymer, 2002, 43(16):7 301-7 306.
- [39] 何阳,等.高分子通报,2008(1):24-32.
He Yang, et al. Polymer Bulletin, 2008(1):24-32.
- [40] Tang Xueguang, et al. Colloid and Polymer Science, 2009, 287(10):1 237-1 241.
- [41] Tang Xueguang, et al. Polymer, 2009, 50(16):4 122-4 127.
- [42] Xiao Hanwen, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2004, 92(1):357-362.
- [43] 王民辉,等.材料研究与应用,2010,4(4):726-728.
Wang Minhui, et al. Materials Research and Application, 2010, 4(4):726-728.
- [44] Panda B P, et al. International Journal of Plastics Technology, 2012, 16(1):89-100.
- [45] 季光明,等.复合材料学报,2005,22(5):100-106.
Ji Guangming, et al. Acta Materiae Compositae Sinica, 2005, 22(5):100-106.
- [46] Braga F C F, et al. Polymeros Ciencia E: Tecnologia, 2012, 22(3):267-272.
- [47] Ferreira K R M, et al. Polymeros Ciencia E: Tecnologia, 2011, 21(5):421-428.
- [48] Khosrokhavar R, et al. International Polymer Processing, 2011, 26(2):212-218.
- [49] Jahromi F H, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2012, 125(3):1 942-1 950.
- [50] Ranjbar B, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2012, 123(1):32-40.
- [51] Yang Hong, et al. Polymers for Advanced Technologies, 2011, 22(6):857-862.
- [52] 杨波,等.复合材料学报,2007,24(3):78-83.
Yang Bo, et al. Acta Materiae Compositae Sinica, 2007, 24(3):78-83.
- [53] 刘琼琼,等.塑料科技,2009,37(1):43-47.
Liu Qiongqiong, et al. Plastics Science and Technology, 2009, 39(1):43-47.
- [54] 柳峰,等.现代塑料加工应用,2009,21(1):18-21.
Liu Feng, et al. Modern Plastics Processing and Applications, 2009, 21(1):18-21.
- [55] Zhang Lei, et al. Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics, 2005, 43(9):1 113-1 123.
- [56] Gong L, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2012, 123(1):510-519.
- [57] 朱德钦,等.高分子学报,2008(11):1 062-1 067.
Zhu Deqing, et al. Acta Polymerica Sinica, 2008(11):1 062-1 067.
- [58] Gong Lei, et al. Journal of Applied Polymer Science, 2012, 123(1):510-519.
- [59] 徐科杰,等.中国塑料,2009,23(6):45-49.
Xu Kejie, et al. China Plastics, 2009, 23(6):45-49.
- [60] 宫蕾,等.合成树脂及塑料,2010,27(3):65-68.
Gong Lei, et al. China Synthetic Resin and Plastics, 2010, 27(3):65-68.
- [61] 柳峰,等.工程塑料应用,2012,40(5):33-35.
Liu Feng, et al. Engineering Plastics Application, 2012, 40(5):33-35.
- [62] 王东波,等.材料科学与工艺,2008,16(3):330-334.
Wang Dongbo, et al. Material Science and Technology, 2008, 16(3):330-334.
- [63] Yang Hong, et al. Polymer, 2006, 47(6):2 106-2 115.