

УДК 678.664:678.686:678.84

Н.В.Бабкина, Л.Н.Ященко, В.Н.Терещенко, Т.Т.Годосийчук

ВЯЗКОУПРУГИЕ И АДГЕЗИОННЫЕ СВОЙСТВА НАПОЛНЕННЫХ ЭПОКСИУРЕТАНОВЫХ ПОЛИМЕРОВ

Методом динамического механического анализа изучено влияние содержания полисилоксановых частиц на вязкоупругие и адгезионные свойства полученных золь–гель методом наполненных эпоксиуретановых полимеров при двух различных способах введения нанонаполнителя в полимерную матрицу. Показано, что вязкоупругие и адгезионные свойства в значительной мере определяются способом получения наполненных эпоксиуретановых полимеров и зависят от содержания в них полисилоксановых частиц. Однако структура с высокой плотностью сшивки и оптимальными характеристиками адгезионной прочности формируется уже при малом содержании SiO_2 (0.001—0.5 % мас.) независимо от способа получения наполненных эпоксиуретановых полимеров.

ВВЕДЕНИЕ. Полимерные композиты — это многокомпонентные материалы, состоящие из полимерной матрицы и наполнителя, образующие поверхность раздела фаз. В последнее время среди полимерных композитов стали выделять особый класс материалов — полимерные нанокомпозиты [1—6], которые условно характеризуются размером частиц наполнителя в наноразмерной области и обладают целым комплексом уникальных характеристик.

При уменьшении частиц наполнителя до столь малых размеров резко возрастает их удельная поверхность, соответственно на порядки увеличивается и поверхность раздела фаз, определяющая свойства материала, что позволяет при минимальных степенях наполнения получить продукт (нанокомпозит) с характеристиками, превосходящими традиционные высоконаполненные полимерные материалы [7]. Кроме того, в ряде работ [8, 9] отмечено взаимодействие нанонаполнителя с полимерной матрицей, что определяет конечные свойства материала и их зависимость от характера взаимодействия и вклада межфазных областей, доля которых в таких системах чрезвычайно велика [10].

Хорошо известно [11] влияние межфазных областей (слоев) на механические, вязкоупругие характеристики композиционных материалов, определяемые макро- и микрогетерогенностью системы и фазовыми взаимодействиями на границе раздела фаз полимер—наполнитель. В то

же время физикохимия процессов наполнения существенно зависит от процесса получения нанокомпозита, хотя во всех случаях определяющую роль играет межфазное взаимодействие на границе раздела наполнитель—полимер.

Нанокомпозиционные полимерные материалы нельзя получить по известным традиционным технологиям, что в первую очередь связано с проблемой распределения наполнителя в связующем. В настоящее время для создания новых нанокомпозитов обращаются к золь–гель технологиям [12—17], методу полимеризации *in situ*, когда наполнитель вводится в мономер на стадии синтеза полимера, соосаждение паров металла и активного мономера с последующей его полимеризацией [10].

Цель данной работы — изучение влияния содержания полисилоксановых частиц (ПСЧ), полученных кислотной гидролитической поликонденсацией тетраэтоксисилана, на вязкоупругие и адгезионные свойства наполненных эпоксиуретановых полимеров.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ. В качестве объектов исследования использовали эпоксиуретановые полимеры на основе наполненных эпоксиуретановых олигомеров (нЭУО). Синтез исходного эпоксиуретанового олигомера осуществляли в две стадии без использования катализатора: на первой стадии получали форполимер на основе толуилдиизоцианата (2,4-2,6 ТДИ) и полиоксипропиленгликоля (ПОПГ ММ 1052).

на второй в форполимер вводили расчетное количество эпоксидного олигомера ЭД-20. Реакцию проводили до образования эпоксиуретанового олигомера с содержанием NCO-групп, равным 0 %.

Синтез неорганической составляющей проводили по реакции гидролиз—конденсация тетраэтоксисилана (ТЭОС, $\rho = 0.933 \text{ г/см}^3$) при температуре 25 °С и постоянном перемешивании на протяжении 24 ч. Для гидролиза использовали воду и соляную кислоту в качестве катализатора.

Введение нанонаполнителя в ЭУО осуществляли через ПОПГ, в который SiO₂-частицы вносили двумя способами: синтезируя нано-SiO₂ непосредственно в среде ПОПГ (нЭУО-1) и вводя в ПОПГ уже сформированный золь-SiO₂ (нЭУО-2). В обоих случаях реакция проходила при соотношении ТЭОС : Н₂О = 1:4. Смеси вакуумировали в течение 5 ч при температуре 90 °С и вакууме 0.2 мм. рт.ст.

Для синтеза нЭУО в систему помещали расчетное количество 2.4—2.6 ТДИ и наполненного ПОПГ для синтеза форполимера и эпоксидный олигомер ЭД-20 — для получения эпоксиуретанового олигомера. Содержание полисилоксановых частиц (ПСЧ) в пересчете на SiO₂ варьировали от 0.001 до 2.0 % мас.

Наполненные эпоксиуретановые полимеры (нЭУ-1 и нЭУ-2) получали при смешении наполненных эпоксиуретановых олигомеров (нЭУО-1 и нЭУО-2 соответственно) с отвердителем при определенном соотношении. В качестве отвердителя использовали изо-метилтетрагидрофталевый ангидрид (изо-МТГФА), ускорителя отверждения — 2,4,6-трис-(N,N-диметиламинометил)фенол (УП-606/2). Отверждение композиций проводили по ступенчатому режиму: 1 ч – 80 °С + 2 ч – 100 °С + 2 ч – 125 °С. По данным малоуглового рассеивания рентгеновских лучей, размер полученных первичных полисилоксановых частиц составляет 5—80 нм.

Пленки эпоксиуретановых полимеров изучали методом динамического механического анализа (ДМА) на частотном релаксаторе с автоматическим измерением фазового угла [18]. Измерение вязкоупругих характеристик — динамического модуля упругости (E'), динамического модуля механических потерь (E'') и тангенса механических потерь ($\text{tg} \delta$) — проводили в ре-

жиме вынужденных синусоидальных колебаний с частотой 100 Гц в температурном диапазоне 20—200 °С при скорости нагрева 2 °С·мин⁻¹. Температуру стеклования (T_g) определяли по температурным зависимостям $\text{tg} \delta$ (по положению максимума).

Для расчета молекулярной массы отрезков цепей между узлами сшивок (M_c) использовали уравнение высокоэластичности:

$$M_c = \frac{3\rho RT}{E_{в.э}}$$

где ρ — плотность полимера; R — универсальная газовая постоянная; T — абсолютная температура; $E_{в.э}$ — значение равновесного модуля упругости в области плато высокоэластичности, которое определяли из температурных зависимостей динамического модуля упругости E' .

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ. На рис. 1 приведены температурные зависимости $\text{tg} \delta$ для исходного эпоксиуретанового полимера и нЭУ-1 с различным содержанием полисилоксановых частиц. Исходный эпоксиуретановый полимер имеет четко выраженный релаксационный переход с $T_g = 103$ °С (табл. 1). Анализ температурных зависимостей $\text{tg} \delta$ для нЭУ-1 показал, что при введении минимальной концентрации SiO₂ в количестве 0.001 % мас. температура стеклования полимера изменяется незначительно, однако при повышении содержания SiO₂ от 0.01 до 0.5 % мас.

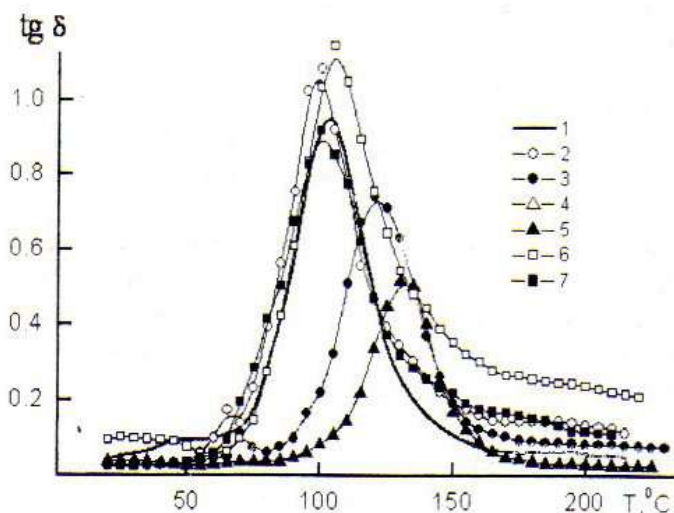


Рис. 1. Температурная зависимость тангенса механических потерь ($\text{tg} \delta$) для нЭУ-1 с содержанием SiO₂: 1 — 0; 2 — 0.001; 3 — 0.01; 4 — 0.1; 5 — 0.5; 6 — 1.0; 7 — 2.0 % мас.

Таблица 1

Параметры вязкоупругих характеристик, адгезионной прочности и значения M_c для нЭУ-1 при разном содержании ПСЧ

$w(\text{SiO}_2)$, % мас.	T_c , °C	$\text{tg}\delta_{\text{max}}$	$E_{\text{в.з}}$	σ_p	M_c
			МПа		
0	103	0.94	2.78	28.6	4300
0.001	98	1.04	3.77	43.2	3200
0.01	120	0.73	8.03	35.8	1500
0.1	120	0.88	7.56	35.0	1600
0.5	130	0.55	9.80	33.0	1240
1.0	105	1.10	1.92	35.0	6330
2.0	100	0.89	1.74	17.5	7020

наблюдается смещение максимума $\text{tg}\delta$ в область более высоких температур и одновременное уменьшение его высоты (рис. 1, табл. 1). Увеличение T_c и уменьшение $\text{tg}\delta_{\text{max}}$ связано с ограничением подвижности полимерных цепей в присутствии ПСЧ и может быть следствием сильного межфазного взаимодействия между частицами нанонаполнителя и полимерной матрицей, а возможно, и образования полисилоксановыми частицами дополнительных узлов сшивок в наполненных эпоксиуретановых полимерах.

Однако при дальнейшем увеличении содержания SiO_2 до 2.0 % мас. наблюдается снижение T_c и повышение $\text{tg}\delta_{\text{max}}$ (по сравнению с нЭУ-1 с 0.5 % мас. SiO_2). Такие изменения вязкоупругих параметров могут свидетельствовать о том, что при формировании нЭУ-1 с 1.0—2.0 % мас. SiO_2 в полимерной системе происходят структурные превращения, которые приводят к увеличению гибкости макромолекул, образующих полимерную матрицу. Ранее проведенные исследования по механизму формирования ЭУ-1 [19] подтверждают образование в системе органико-неорганической составляющей (кремнийорганического полиэфира).

Для нЭУ-1, содержащих 0.001—0.1 % мас. SiO_2 , на температурных зависимостях $\text{tg}\delta$ кроме основного релаксационного перехода, наблюдается также дополнительный переход в низкотемпературной области, проявляющийся в виде плеча вблизи основного максимума (рис. 1). Этот дополнительный переход более явно выражен на температурных зависимостях модуля потерь

E'' для нЭУ-1, содержащих 0.01 и 0.1 % мас. SiO_2 (рис. 2). Наличие такого дополнительного релаксационного перехода может указывать на то, что уже при очень малом содержании SiO_2 (0.01 и 0.1 % мас.) в системе формируется “фаза” с более высокой молекулярной подвижностью по сравнению с сегментальной подвижностью основной матрицы. Принимая во внимание, что при получении нЭУ-1 синтез ПСЧ происходит в среде ПОПГ, можно предположить, что такая “фаза” представляет собой переходную область между полисилоксановыми частицами и эпоксиуретановой матрицей. Учитывая наноразмерность ПСЧ, что подтверждается рентгеноструктурным анализом, и, следовательно, их высокую удельную поверхность, объем таких граничных областей может быть достаточным для проявления отдельного релаксационного перехода. Однако при концентрации SiO_2 0.5 % мас. этот дополнительный переход проявляется лишь незначительным повышением E'' вблизи 70 °C, а при более высоком содержании ПСЧ вырождается полностью, что, возможно, связано с агрегацией полисилоксановых частиц и существенном уменьшении при этом объема граничных областей. Общая тенденция смещения температуры основного релаксационного максимума при повышении содержания ПСЧ в нЭУ-1 на температурных зависимостях E'' (рис. 2) и $\text{tg}\delta$ (рис. 1) совпадают.

В области основного релаксационного пе-

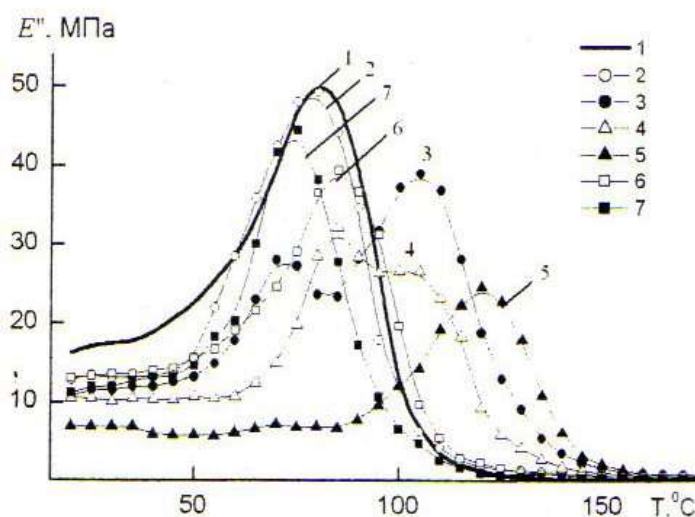


Рис. 2. Температурная зависимость модуля механических потерь (E'') для нЭУ-1 с содержанием SiO_2 : 1 — 0; 2 — 0.001; 3 — 0.01; 4 — 0.1; 5 — 0.5; 6 — 1.0; 7 — 2.0 мас.

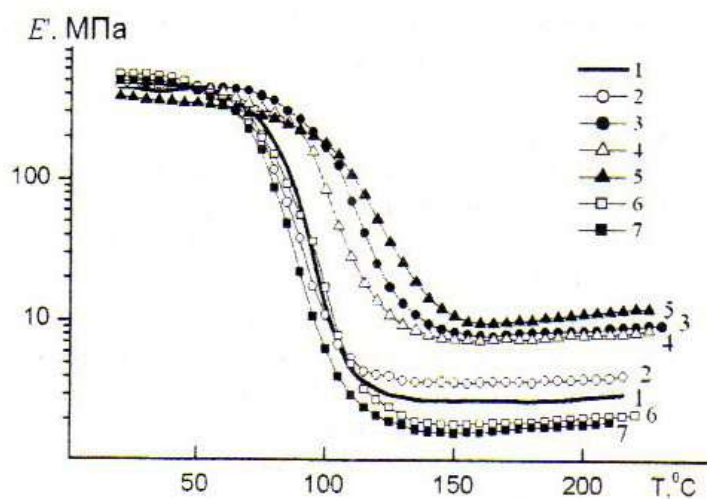


Рис. 3. Температурная зависимость динамического модуля упругости (E') для нЭУ-1 с содержанием SiO_2 : 1 — 0; 2 — 0.001; 3 — 0.01; 4 — 0.1; 5 — 0.5; 6 — 1.0; 7 — 2.0 % мас.

рехода для всех исследованных эпоксиуретанов нЭУ-1 наблюдается резкое падение модуля упругости (рис. 3). В области высокоэластичности кривая $E'(T)$ выходит на плато, что характерно для сшитых полимерных систем, и значение $E_{в,3}$ существенно зависит от содержания ПСЧ (табл. 1). Отмечается нелинейный характер зависимости $E_{в,3}$ и соответственно рассчитанных по уравнению высокоэластичности значений M_c от концентрации ПСЧ в нЭУ-1. Показано, что при формировании эпоксиуретанового полимера на основе нЭУО-1, то есть когда синтез полисилоксановых частиц происходит непосредственно в среде ПОПГ, повышение содержания ПСЧ приводит к постепенному уменьшению значений M_c , и, следовательно, к увеличению эффективной плотности сшивок в полимерной системе, вплоть до концентрации в ней SiO_2 0.5 % мас., при которой значение M_c уменьшается почти в 3.5 раза (табл. 1). Однако при увеличении концентрации SiO_2 до 1.0—2.0 % мас. значение M_c для нЭУ-1 возрастает приблизительно в 5—6 раз, что указывает на существенное уменьшение густоты сетки эпоксиуретанового полимера и подтверждает образование органо-неорганической составляющей, приводящее к пластификации системы. Нелинейность изменений T_c и M_c при увеличении содержания ПСЧ наблюдалась также для эпоксидно-силоксановых композитов, полученных золь-гель методом [16]. Уменьшение T_c и увеличение значений M_c при высоком содер-

жании ПСЧ в эпоксидно-силоксановых композитах авторы связывают с нарушением топологической структуры сетки и общей пластификацией полимера.

Таким образом, изменения вязкоупругих характеристик для нЭУ-1 отражают структурные превращения, которые происходят при формировании эпоксиуретанового полимера в присутствии нанонаполнителя. Так, при минимальной концентрации SiO_2 (0.001 % мас.) практически не изменяется T_c полимера, однако присутствие полисилоксановых частиц способствует образованию дополнительных узлов сшивок, что увеличивает густоту сетки в нЭУ-1. Дальнейшее повышение содержания ПСЧ до 0.5 % мас. SiO_2 приводит к значительному увеличению эффективной плотности сшивок в нЭУ-1, в результате чего повышается T_c полимера и уменьшается значение M_c (табл. 1). При этом в эпоксиуретановых полимерах с концентрацией SiO_2 0.01 и 0.1 % мас. между полисилоксановыми частицами и эпоксиуретановой матрицей формируются переходные области с более высокой молекулярной подвижностью по сравнению с сегментальной подвижностью основной матрицы, что отражается в появлении дополнительного релаксационного перехода (рис. 2). При концентрации SiO_2 выше 0.5 % мас., возможно, происходит агрегация полисилоксановых частиц и/или образование кремнийорганического полиэфира, что приводит к существенному уменьшению объема граничных областей между нанонаполнителем и матрицей, а также к увеличению молекулярной массы межузловых фрагментов полимерной сетки, в результате чего снижается T_c и увеличивается значение M_c (табл. 1).

Результаты динамических механических исследований для эпоксиуретановых полимеров, полученных вторым способом (нЭУ-2), когда формирование неорганической составляющей происходит вне среды полиоксипропиленгликоля, свидетельствуют об общих закономерностях изменения вязкоупругого поведения, характерного и для нЭУ-1. Как видно из рис. 4, уже при введении 0.001 % мас. SiO_2 почти на 30 °C смещается максимум $\text{tg}\delta$ в область более высоких температур и резко уменьшается $\text{tg}\delta_{\text{max}}$, что указывает на существенное ограничение подвижности полимерных цепей в присутствии даже такой минимальной концентрации ПСЧ, и может быть

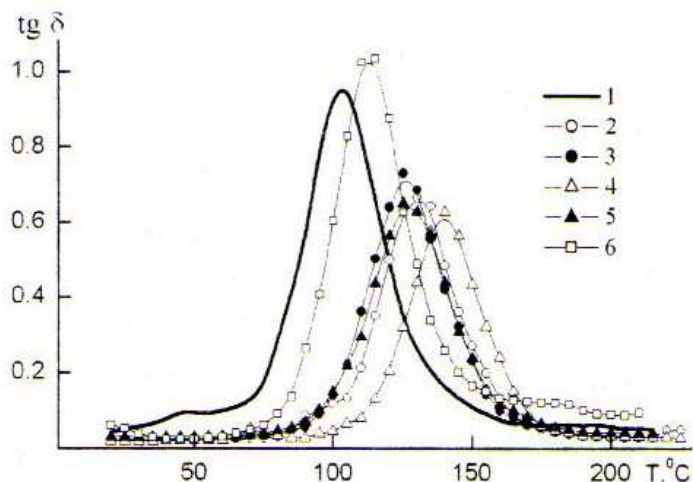


Рис. 4. Температурная зависимость тангенса механических потерь ($\text{tg} \delta$) для нЭУ-2 с содержанием SiO_2 : 1 — 0; 2 — 0.001; 3 — 0.01; 4 — 0.1; 5 — 0.5; 6 — 1.0 % мас.

Таблица 2

Параметры вязкоупругих характеристик, адгезионной прочности и значения M_c для нЭУ-2 при разном содержании ПСЧ

$w(\text{SiO}_2)$, % мас.	$T_c, ^\circ\text{C}$	$\text{tg} \delta_{\text{max}}$	$E_{\text{в.э}}$		M_c
			МПа		
0	103	0.94	2.78	28.6	4300
0.001	130	0.65	9.60	28.0	1270
0.01	125	0.70	7.07	32.0	1700
0.1	140	0.61	11.17	27.0	1100
0.5	127	0.63	6.60	27.0	1840
1.0	113	1.02	5.47	24.0	2220

следствием вклада в вязкоупругие свойства неорганической пространственной сетки, образованной полисилоксановыми частицами. Увеличение содержания SiO_2 до 0.5 % мас. оказывает незначительное влияние на T_c . Однако дальнейшее повышение концентрации SiO_2 в нЭУ-2 до 1.0 % мас. сопровождается уменьшением температуры стеклования и повышением $\text{tg} \delta_{\text{max}}$ (табл. 2).

Общая тенденция смещения основного релаксационного перехода при увеличении содержания ПСЧ в нЭУ-2 прослеживается и на температурных зависимостях E'' (рис. 5). Наличие дополнительного релаксационного перехода для нЭУ-2 при 0.001 % мас. SiO_2 , проявляющегося на зависимости $E''(T)$ в виде низкотемпературного плеча вблизи 100°C , а также при 0,1 % мас. SiO_2 ,

проявляющегося отдельным максимумом при 75°C , может указывать на то, что даже в том случае, когда формирование полисилоксановых частиц происходит не в среде ПОПГ, в результате межфазного взаимодействия между ними и полимерной матрицей могут образовываться переходные области с более высокой молекулярной подвижностью.

Изменение температурных зависимостей E' для нЭУ-2 с различным содержанием ПСЧ показано на рис. 6. Для нЭУ-2, так же как и для нЭУ-1, отмечается нелинейный характер зависимости $E_{\text{в.э}}$ и, соответственно, значений M_c , от концентрации ПСЧ (табл. 2). Однако, в отличие от

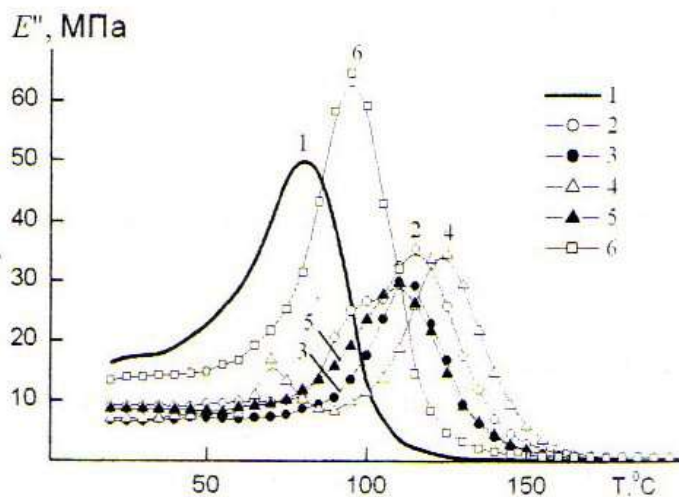


Рис. 5. Температурная зависимость модуля механических потерь (E'') для нЭУ-2 с содержанием SiO_2 : 1 — 0; 2 — 0.001; 3 — 0.01; 4 — 0.1; 5 — 0.5; 6 — 1.0 % мас.

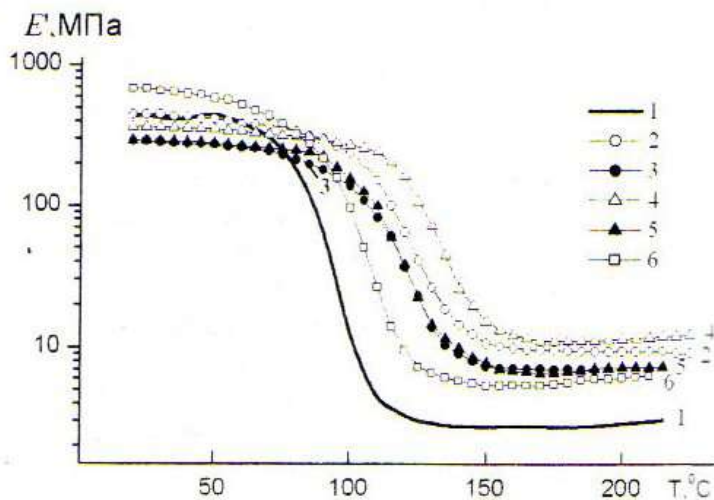


Рис. 6. Температурная зависимость динамического модуля упругости (E') для нЭУ-2 с содержанием SiO_2 : 1 — 0; 2 — 0.001; 3 — 0.01; 4 — 0.1; 5 — 0.5; 6 — 1.0 % мас.

эпоксиретановых полимеров, полученных первым способом, для нЭУ-2 уже при минимальной концентрации SiO_2 0.001 % мас. значение M_c уменьшается более, чем в 3 раза (табл. 2), в то время как при такой же концентрации нанонаполнителя в нЭУ-1 значение M_c уменьшается не более, чем в 1.5 раза (табл. 1). Увеличение концентрации ПСЧ в ЭУ-2 не приводит к резким изменениям значений M_c (табл. 2), но наблюдается некоторое повышение M_c для концентраций SiO_2 0.5—1.0 % мас.

Таким образом, для эпоксиретановых полимеров, полученных вторым способом, значительное возрастание густоты сетки происходит уже при минимальных концентрациях ПСЧ, и, в отличие от нЭУ-1, эффективная плотность сшивки остается высокой и при больших содержаниях ПСЧ, что может свидетельствовать о формировании пространственной неорганической сетки из полисилоксановых частиц в структуре эпоксиретановой матрицы, оказывающей упрочняющее действие на полимер в целом. Однако при концентрациях SiO_2 более 0.5 % мас. в нЭУ-2 также возможна некоторая агрегация ПСЧ, что приводит к увеличению молекулярной массы межузловых фрагментов и снижению T_c (табл. 2).

Более наглядно нелинейность изменения значений T_c и M_c для эпоксиретановых полимеров, формирующихся двумя различными способами, представлена на рис. 7. Показано, что, независимо от способа формирования наполненных нЭУ в области малых концентраций SiO_2 , наблюдается резкое повышение T_c (а) и уменьшение M_c (б), что свидетельствует о возрастании плотности сшивки в полимерной системе. Однако экс-

тремальные значения T_c и M_c для нЭУ-2 (кривая 2) наблюдаются при более низких концентрациях, чем для нЭУ-1 (кривая 1). Отличительной особенностью для эпоксиретановых полимеров, при формировании которых полисилоксановые частицы образуются в среде ПОПГ (нЭУ-1), является резкое увеличение значений M_c при содержании SiO_2 выше 0.5 % мас. (рис. 7, б, кривая 1), что может быть связано с уменьшением густоты сетки в результате образования кремнийорганического полиэфира в полимере при высоком содержании ПСЧ. В то же время для эпоксиретановых полимеров, при образовании которых неорганическая составляющая формировалась отдельно, и в среду ПОПГ вводился уже сформированный золь- SiO_2 (нЭУ-2), плотность сшивки полимера незначительно зависит от содержания ПСЧ. При таком способе получения эпоксиретановых полимеров в системе образуется прочная пространственная сетка из полисилоксановых частиц.

Упрочняющее действие неорганической составляющей ЭУ проявляется в повышении адгезионных свойств наполненных ЭУ. Так, для нЭУ-1 и нЭУ-2 показано, что наличие в сетчатых полимерах неорганической составляющей, образованной разными способами, способствует нелинейному изменению адгезионной прочности клеевых соединений (σ_p) для алюминия (табл. 1, 2). Максимум свойств достигается при содержании SiO_2 0.001—0.5 % мас. для обеих наполненных ЭУ систем, затем происходит снижение значений σ_p , что может быть связано с особенностями структурообразования эпоксиретанов при изменении содержания ПСЧ.

ВЫВОДЫ. Таким образом, в результате исследования вязкоупругих свойств установлено, что топологическая структура полученных золь-гель методом наполненных эпоксиретановых полимеров зависит от способа их получения. Однако независимо от способа формирования эпоксиретановых полимеров уже при малом содержании SiO_2 (0.001—0.5 % мас.) формируется структура с высокой плотностью сшивки и наблюдается нелинейная зависимость T_c и M_c от содержа-

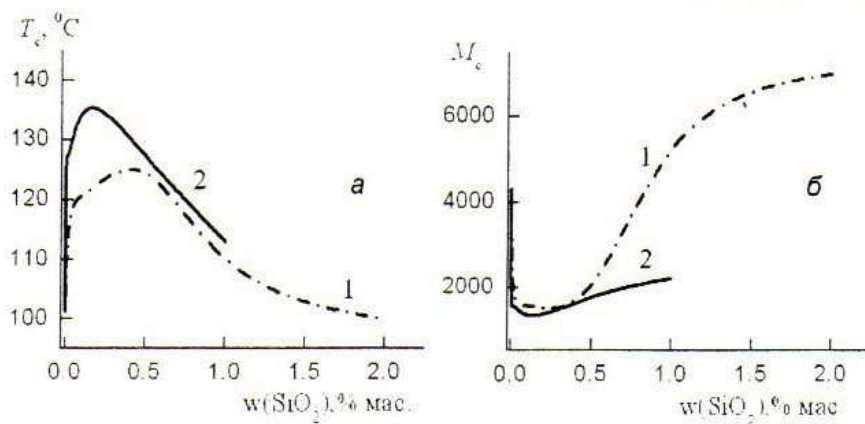


Рис. 7. Зависимость T_c (а) и M_c (б) от содержания SiO_2 для нЭУ-1 (1) и нЭУ-2 (2).

ния полисилоксановых частиц в полимере. Наличие в ЭУ полисилоксановых структур способствует увеличению адгезии к алюминию. Оптимальные характеристики адгезионной прочности имеют наполненные эпоксиуретаны с содержанием SiO_2 0.001—0.5 % мас.

РЕЗЮМЕ. Методом динамічного механічного аналізу вивчено вплив вмісту полісилоксанових частинок на в'язкопружні та адгезійні властивості наповнених эпоксиуретанових полімерів, одержаних зольгель методом, з використанням двох різних способів введення наповнювача в полімерну матрицю. Показано, що в'язкопружні та адгезійні властивості значною мірою визначаються способом одержання наповнених эпоксиуретанових полімерів і залежать від вмісту в них полісилоксанових частинок. Структура з високою густиною зшивки та оптимальними характеристиками адгезійної міцності формується вже при низькому вмісті SiO_2 (0.001—0.5 % мас.) незалежно від способу одержання наповнених эпоксиуретанових полімерів.

SUMMARY. Influence of content of polysiloxane particles, which introduced in epoxyurethane by different ways on its viscoelasticity and adhesion properties, was investigated by dynamic mechanical analysis. It was shown, that viscoelasticity and adhesion properties rather depends of concentration of polysiloxane particles and the way of its introduction. However structure with high cross-linking density and optimal adhesion characteristics forms with low SiO_2 content (0.001—0.5 % wt.) independent by the way of its introduction.

ЛИТЕРАТУРА

1. Xiang X.J., Qian J.W., Yang W.Y. et al. // J. Appl. Pol. Sci. -2006. -100. № 6. -P. 4333—4337.

2. Gao X., Zhu Y., Zhao X. et al. // Appl. Surface Science. -2011. -257, № 10. -P. 4719—4724.
3. Yim T.-J., Kim S. Y., Yoo K.-P. // Korean J. Chem. Eng. -2002. -19, № 1. -P. 159—166.
4. Mirabedini S.M., Sabzi M., Zohuriaan-Mehr J. et al. // Appl. Surface Science. -2011. -P. 4196—4203.
5. Armelao L.A., Barreca D., Moraru B. // Non-cryst. Solids. -2003. -316, № 2, 3. -P. 364—371.
6. Plocek J., Hutlova A., Niznansky D. et al. // Ibid. -2003. -315, № 1—2. -P. 70—76.
7. Жильцова С.В., Михальчук В.М., Бабкина Н.В. и др. // Клеи, герметики, технологии. -2011. -№ 5. -С. 6—13.
8. Гомза Ю. П., Кленко В.В., Жильцова С.В. и др. // Высокомолекул. соединения. Сер. А и Б. -2010. -52, № 6. -С. 963—968.
9. Yang S., Kim J. H., Jin J. H. et al. // J. Polymer Sci.: Pt B: Polymer Physics. -2009. -47, № 8. -P. 756—763.
10. Karim A., Liu D.W., Douglas J.F. et al. // Polymer. -2000. -41, № 23. -P. 8455—8458.
11. Лунатов Ю.С. Физико-химические основы наполнения полимеров. -М.: Химия. -1991. -С. 259.
12. Chen L., Shen H., Lu Z. et al. // Colloid and Polymer Sci. -2007. -285, № 13. -P. 1515—1520.
13. Ochi M., Takahashi R., Terauchi A. // Polymer. -2001. -42, № 2. -P. 5151—5158.
14. Ochi M., Matsumura T. // J. Polymer Sci. P-t B: Polymer Physics. -2005. -43, № 13. -P. 1631—1639.
15. Matejka L., Dusek K., Plestil J. et al. // Polymer. -1999. -40, № 1. -P. 171—174.
16. Жильцова С.В., Бабкина Н. В., Михальчук В. М. и др. // Полімерн. журн. -2010. -32, № 1. -С. 11—16.
17. Жильцова С.В., Михальчук В.М., Білошенко В.А. // Вопросы химии и хим. технол. -2010. -№ 1. -С. 46.
18. Росовицкий В.Ф., Шифрин В.В. Физические методы исследования полимеров. -Киев: Наук. думка, 1981. -С. 85—93.
19. Яценко Л.Н., Тодосийчук Т.Т., Терещенко В.Н. и др. // Полімер. журн. -2012. -34, № 4. -С. 377—381.

Институт химии высокомолекулярных соединений
НАН Украины, Киев

Поступила 15.02.2012