

老化对 PP/SSFs 导电复合材料结构及应力松弛性能的影响¹⁾

朱振华* 邵柏军* 王 俊* 邵 宇* 陈建康* 张明华*,†,2)

*(宁波大学机械工程与力学学院, 浙江宁波 315000)

†(西安交通大学机械结构强度与振动国家重点实验室, 西安 710000)

摘要 导电高聚物复合材料具有柔性好、导电性可调、容易成型及生产成本低等优点, 并具有抗静电、电磁屏蔽/吸波、压力/温度敏感性等特点, 可以作为功能材料在诸多领域应用. 但是在加工、储运和使用过程中, 由于多种因素综合影响, 不可避免发生老化并导致其性能劣化. 通过熔融共混、注塑成型的方法制备不锈钢短纤维 (SSFs) 填充聚丙烯 (PP) 导电复合材料, 将其进行加速湿热老化和紫外老化, 测定应力松弛曲线以及松弛条件下电阻率变化规律, 通过 X 射线粉末衍射仪分析老化前后结晶度的变化, 借助扫描电子显微镜 (SEM) 观察研究老化前后材料的微观形貌, 并进行能谱 (EDS) 分析. 研究表明, 应力松弛曲线有明显的三阶段特征, 且湿热老化材料松弛后的应力水平降低. 材料的初始电阻率随填料含量的增加而降低, 老化使材料的初始电阻率增大. 由于导电高聚物的压阻效应, 使得达到应力松弛起始应力前, 即材料在获得特定应力的加载阶段, 电阻率随载荷增加显著降低, 而在随后的松弛阶段, 材料电阻率则趋于一个稳定值并在较小的范围内波动. SEM/EDS 分析结果表明, 随着老化时间的延长, 试样表面氧元素含量增加, 且氧元素含量随距表面深度的增加而减小. XRD 分析结果表明, 材料的结晶度随填料含量的增加而减小, 随老化时间的延长也呈减小趋势. 研究结果可为研究导电高聚物复合材料的老化性能提供实验依据.

关键词 导电复合材料, 老化, 应力松弛, SEM/EDS, XRD, 结晶度

中图分类号: TB125, TB324 文献标识码: A doi: 10.6052/0459-1879-18-080

EFFECT OF AGING ON STRUCTURE AND STRESS RELAXATION OF PP/SSFs COMPOSITES¹⁾

Zhu Zhenhua* Shao Baijun* Wang Jun* Shao Yu* Chen Jiankang* Zhang Minghua*,†,2)

*(Faculty of Mechanical Engineering & Mechanics, Ningbo University, Ningbo 315000, Zhejiang, China)

†(State Key Laboratory for Strength and Vibration of Mechanical Structures, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710000, China)

Abstract Conductive polymer composites, with good flexibility, adjustable conductivity, easy forming and low production cost, can be used as functional material in many fields for its antistatic properties, electromagnetic shielding/microwave absorbing properties, and pressure/temperature sensitivity. However, in the process of processing, storage and use, due to comprehensive influence of many factors, aging will inevitably occur which will lead to deterioration

2018-03-19 收稿, 2018-03-21 录用, 2018-03-21 网络版发表.

1) 国家自然科学基金 (11202110, 11472141, U1330101) 和宁波市自然科学基金 (2017A610046) 资助项目.

2) 张明华, 教授, 主要研究方向: 导电复合材料. E-mail: zhangminghua@nbu.edu.cn

引用格式: 朱振华, 邵柏军, 王俊, 邵宇, 陈建康, 张明华. 老化对 PP/SSFs 导电复合材料结构及应力松弛性能的影响. 力学学报, 2018, 50(3): 517-526

Zhu Zhenhua, Shao Baijun, Wang Jun, Shao Yu, Chen Jiankang, Zhang Minghua. Effect of aging on structure and stress relaxation of PP/SSFs composites. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2018, 50(3): 517-526

of the properties. In this paper, PP/SSFs (stainless steel fibers) conductive composites were prepared by melt-blending and injection molding. The specimens were subjected to accelerated hygrothermal aging and UV aging. Stress relaxation curves, resistivity and crystallinity were experimentally measured. Micromorphology and elemental distribution of specimens before and after aging have been observed and detected by scanning electron microscope (SEM) and energy spectrometer (EDS). The results show that the stress relaxation curves display three-stages in characteristics. And the stress reduces after hygrothermal aging due to the breaking and cross-linking of molecular chain caused by aging. The initial resistivity of PP/SSFs composites decreases with the increase of filler content, while it will increase with aging time. Due to the piezoresistive effect of the conductive polymer, the resistivity of the specimens decreases significantly with the increase of initial load, and then it tends to a stable value and fluctuation in a smaller range. The results of SEM/EDS analysis show that with the increase of aging time, the oxygen content on the specimens surface increases, and it will decrease with distance (depth) to the surface of specimen. XRD results show that the crystallinity of composites decreased with the increase of SSFs content and aging time. The present research will provide an experimental basis for the study of aging properties of conductive polymer composites.

Key words conductive composites, aging, stress relaxation, SEM/EDS, XRD, crystallinity

引言

复合型导电高聚物是由高分子材料与导电填料混合而成的材料,在温度、压力、电场等外场作用下,体系电阻往往会发生敏感变化.材料受压缩载荷作用形变时所伴随的电阻变化称为压阻行为^[1-3].对导电高聚物复合材料压阻行为的研究已经相当广泛^[4-7].Wang和Ding^[8]对炭黑填充高聚物复合材料的压阻行为进行了研究,发现炭黑填料的尺寸、浓度以及基体材料的性能都会对复合材料的电阻变化产生影响.高聚物材料的应力松弛行为是其基本特性,对于导电高聚物复合材料应力松弛的研究也非常广泛^[9-12].Zheng等^[13]对短碳纤维填充的高密度聚乙烯复合材料的压阻行为以及应力松弛进行了研究,发现材料的电阻对时间有很强的依赖性.Wang等^[14-15]对碳系填料填充的硅橡胶复合材料的应力松弛行为进行了研究,发现复合材料的电阻变化情况与应力松弛相似.Zhai等^[16]对碳纳米管填料填充的聚氨酯复合材料的电阻松弛与应力松弛行为进行了研究.陈明等^[17]对鱼尾鳍进行了松弛实验,并用分数Zener模型拟合实验数据,发现鱼鳍具有高聚物的黏弹性.彭凡等^[18]对热环境下复合材料松弛模量的预测进行了深入的探究.

在加工、储运和使用过程中,由于多种因素综合影响,聚丙烯复合材料不可避免发生老化并导致其性能劣化.对于聚丙烯复合材料老化性能的研究非常广泛^[19-22],Grabmayer等^[23]对聚丙烯材料的热老

化特性进行了研究,发现聚丙烯材料的厚度以及材料中抗氧剂的添加都会对材料的老化性能产生影响.Wanasekara等^[24]对聚丙烯复合材料的紫外老化与热降解进行了研究,发现不同老化时间对材料的性能产生影响结果不同,老化后材料有C=O形成.Yano等^[25]通过化学发光的方法对聚丙烯材料的热氧老化进行了研究,发现热氧老化的温度与时间均会对老化效果产生影响.Lü等^[26]对聚丙烯材料在自然环境老化与实验室加速老化进行了研究,结果表明随着聚丙烯老化时间的延长羰基的含量逐渐增加,聚丙烯的实验室老化能够比较准确地模拟自然环境老化.付云伟等^[27]建立了一种夹杂相互作用的界面裂纹开裂模型,徐业守等^[28]研究了微观结构对黏弹性材料性能的影响,张作启和刘彬^[29]推导出了一个柔度标定公式,用能量释放率来表征材料的断裂性能.这些学者的研究给本文探究高聚物的老化问题提供了很好的参考借鉴作用.

唐景等^[30]研究了湿热老化、紫外辐照老化模式下光伏背板力学性能和PET结晶度的变化,结果表明湿热老化下背板断裂伸长率下降较快,PET层结晶为主导因素,紫外辐照老化时结晶度基本保持不变.周韞捷等^[31]研究了加速热老化对XLPE电缆绝缘力学性能和介电性能的影响,结果表明低温热老化有利于XLPE结晶形态的完善,而高温热老化对XLPE结晶形态有显著的破坏作用.徐俊等^[32]研究了热老化对交联聚乙烯电缆绝缘理化结构的影响,结果表明聚乙烯电缆绝缘材料在热老化过程中分子

链中的含氧基团急剧增加, 羰基指数增大。

但是, 现有的关于导电复合材料的研究大多是将材料的电阻变化与物理老化分别进行研究, 对导电复合材料老化后力学及电学性能的研究较少, 因此本文以不锈钢短纤维 (SSFs) 填充聚丙烯 (PP) 复合材料为研究对象, 研究加速老化后材料的力学与电学行为的变化规律, 以及紫外老化和湿热老化后微观形貌和结晶度的变化。

1 实验部分

1.1 原料及仪器

(1) 主要原料

PP: 通用级, 南京德尔隆公司; SSFs: 湖南惠同新材料股份有限公司。

(2) 主要仪器及设备

单螺杆挤出机: SJ-30 型, 南京杰恩特机电设备有限公司; 注塑机: UN120SJ 型, 广东伊之密精密机械有限公司; 材料老化四元测试系统: CCX400 型, 美国 Atlas 公司; 紫外灯耐气候试验箱: ZN-3 型, 淮安中亚试验设备有限公司; 场发射扫描电子显微镜: S-4800 型, 日本日立公司; X 射线粉末衍射仪: D8 discover 型, 德国布鲁克 (AXS) 公司; 万能材料试验机: MTS-810 型, 美国 MTS 系统公司。

1.2 材料准备

将 PP 以及 SSFs 通过单螺杆挤出机熔融共混, 通过注射成型制备 PP/SSFs 导电复合材料标准的拉伸实验试件, SSFs 的质量分数分别为: 0%, 2%, 4%, 6%, 7%, 8%, 9%, 加工成直径 9 mm、厚度为 3 mm 的圆柱体试件。

将加工好的试件分组放入紫外灯耐气候试验箱和材料老化四元测试系统内进行加速老化试验。紫外灯耐气候试验温度设定为 70°C, 老化时间分别为 300 h, 600 h, 900 h。材料老化四元测试温度控制在 65°C, 相对湿度控制在 70%, 老化时间分别为 20 d 和 40 d。

1.3 测试

松弛实验应用 MTS 万能材料试验机在室温下完成, 以 10^{-3} 应变率加载达到 20% 应变, 实现预加载过程, 之后保持应变不变, 整个过程可实现时间、应力、应变以及电压的同步测量, 实验装夹方式如图 1 所示。

实验测量电信号的电路图如图 2 所示, 实验电



图 1 单轴压缩实验装置

Fig. 1 The device of uniaxial compression experiment

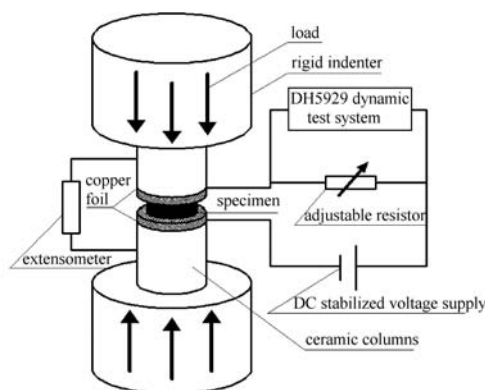


图 2 电信号测量示意图

Fig. 2 Schematic diagram of electrical circuit

路是采用直流电源、实验试件以及电阻箱串联, 动态信号测试分析系统与电阻箱并联的方式。用动态信号测试分析系统来采集电阻箱电压信号, 换算出 PP/SSFs 导电复合材料实验试件的电压信号, 计算出试样电阻率; 直流电源提供稳定电压; 用引伸计来测量试样应变。

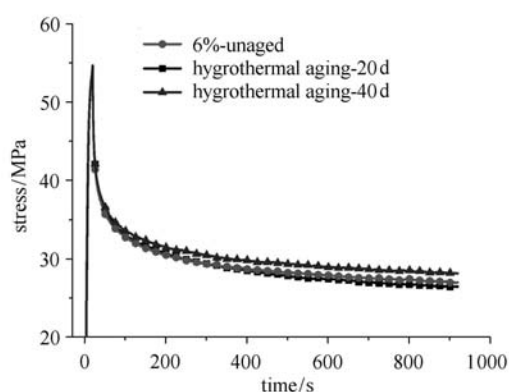
进行了 SEM 分析以及 EDS 能谱分析, 观察老化前后试样的微观形貌变化和元素含量变化。使用 X 射线粉末衍射仪测得未老化试样和湿热老化、紫外老化不同阶段以及不同填料含量的各试样的 XRD 图谱, 然后运用 MDI Jade 6 分析软件对得到的图谱进行后处理, 计算出不同老化阶段的试样的结晶度。

2 结果与讨论

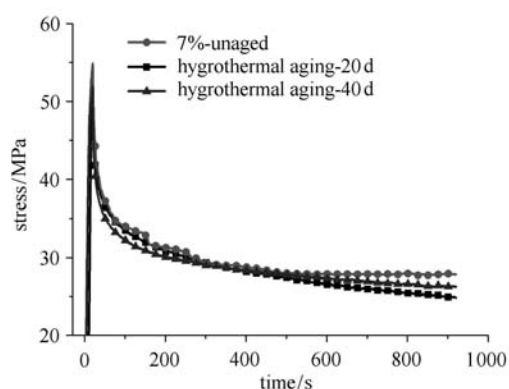
2.1 湿热老化前后的应力松弛实验

图 3 是 PP/SSFs 复合材料老化前后应力松弛曲线, 从图中可以看出应力松弛有明显的三阶段特征, 松弛初期应力随时间迅速下降 (快速松弛), 第二阶段应力下降速度减缓 (减速松弛), 最后阶段应力趋于平稳 (稳定松弛)。在刚发生应变时的很短时间内, 分子没有足够的时间进行大范围的调整, 只能是分

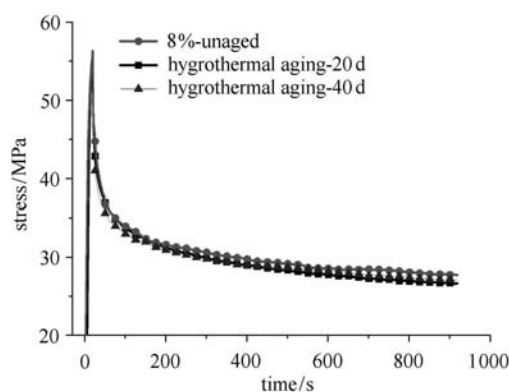
子间距离的改变,这一改变需要相当高的能量,所需要的应力最大,此时处于玻璃态;随着时间延长,链段可以重新进行调整,使局部应力得以松弛,从而模量下降几个数量级,材料趋于变软,此时是黏弹态.应力随时间的延长而降低,在足够长的时间内,应力会衰减到一个有限值,所需要的时间即为松弛时间.在松弛过后,链受到拉伸,缠结链的平均末端距增大,阻止远程运动的远程相互作用使其保持着一伸长,此时模量又进入一个平台,这是橡胶态^[9,11-12].



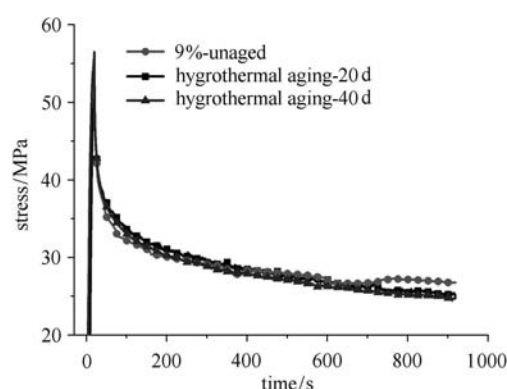
(a)



(b)



(c)



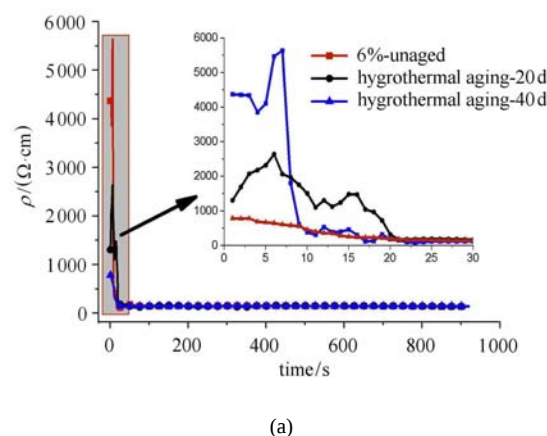
(d)

图3 老化前后应力松弛结果对比

Fig.3 Comparison of stress relaxation results before and after aging

湿热老化与未老化的材料相比,松弛后的应力水平呈现先降低后增加的趋势.相同SSFs含量的复合材料老化20d时应力水平最低,这是由于材料中的分子链断裂所致,而老化40d后的应力水平较20d有所升高甚至高于未老化试样,分析认为这是由于材料分子链发生了交联使其应力水平反而有所回升.

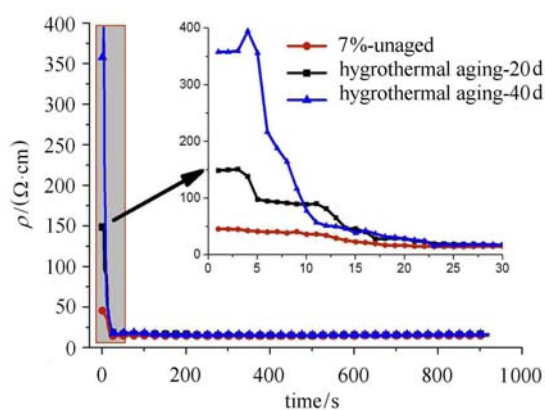
图4是应力松弛过程中复合材料电阻率随时间的变化,从图中可以看出在加载至初始应力的过程中材料的电阻率迅速降低,随后在松弛阶段下降速度趋于平稳并在很小的范围内波动.并且从图中可以看出,该体系材料的初始电阻率随着湿热老化时间的延长而增大,在预加载阶段SSFs含量为6%和7%的复合材料的电阻率出现了较为明显的波动,这是由于材料导电填料含量相对较低,并且SSFs含量为6%的复合材料电阻率波动比7%含量更加明显,另



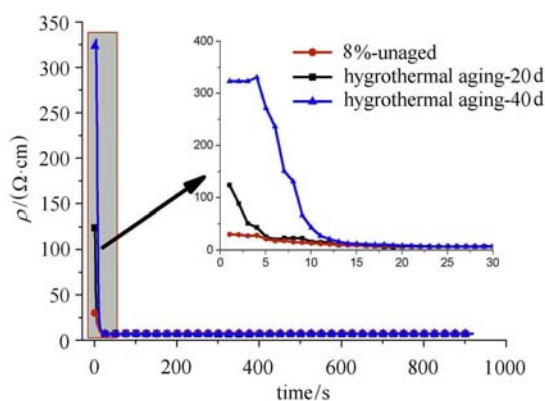
(a)

图4 应力松弛过程中材料电阻率变化

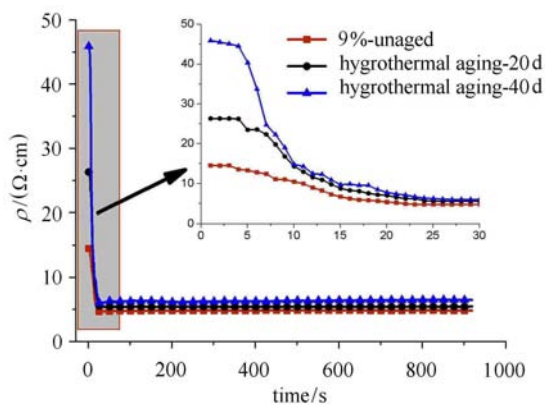
Fig.4 Comparison of resistivity during stress relaxation for specimens before and after aging



(b)



(c)



(d)

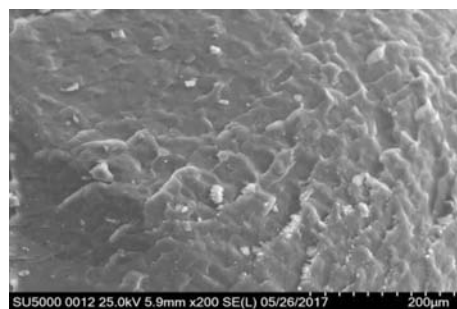
图 4 应力松弛过程中材料电阻率变化 (续)

Fig. 4 Comparison of resistivity during stress relaxation for specimens before and after aging (continued)

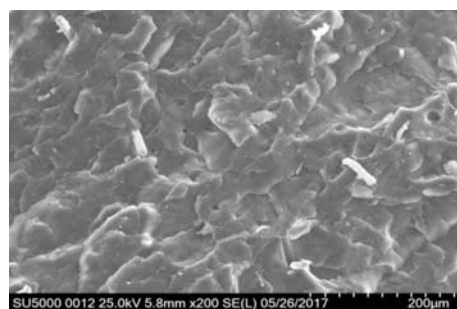
外湿热老化对材料松弛阶段电阻率影响不大。

2.2 老化前后试样的微观形貌分析

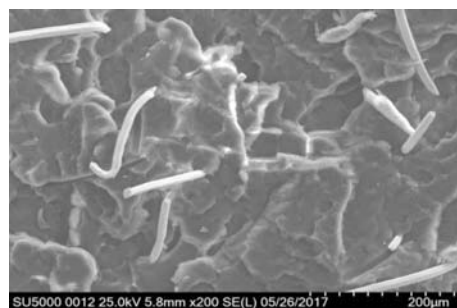
未老化试样的微观形貌如图 5 所示。从图 5 中可以看出 SSFs 在 PP 基体中分布的比较均匀, 随着导电填料含量增加单位面积内出现 SSFs 的数量也



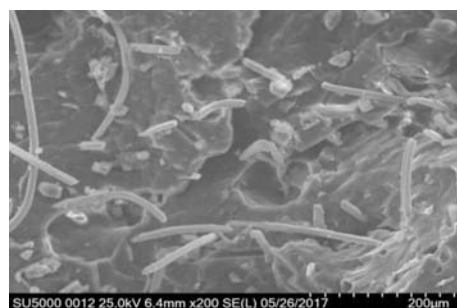
(a) SSFs-0%



(b) SSFs-2%



(c) SSFs-6%



(d) SSFs-10%

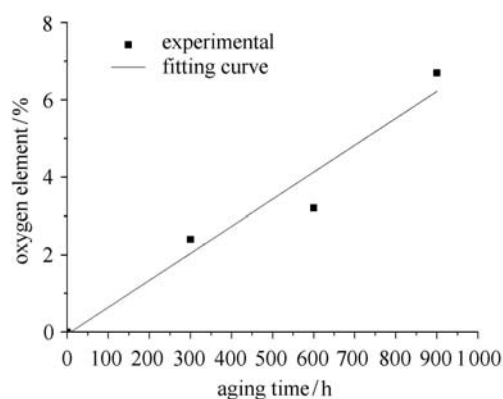
图 5 不同 SSFs 含量的 PP/SSFs 复合材料的微观形貌图

Fig. 5 Microstructure of PP/SSFs composites with different SSFs content

随之增多, 形成导电通路的几率随之增大。

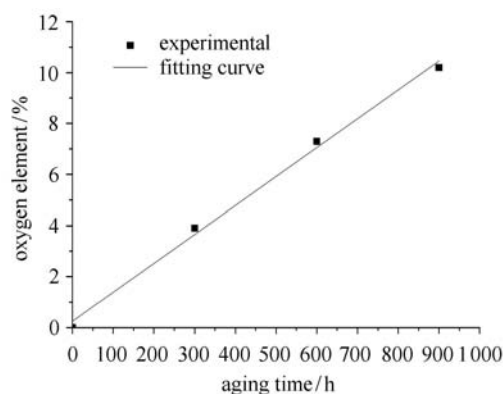
经能谱分析仪测得湿热老化和紫外老化 300 h, 600 h, 900 h 的试样表面的氧元素含量 (质量百分

比),如图6所示.从图中可以看出试样表面氧元素含量经湿热和紫外老化后均明显增加,且在相同老化时间下紫外老化的试样比湿热老化试样的氧元素含量增加更多.聚丙烯在紫外光照射和湿热条件下容易发生氧化反应,生成含氧的羰基和羟基等^[33],且羰基和羟基随老化时间的延长而增长.分析认为,试样中氧元素含量的增加主要是因为试样中羰基、羟基等含氧官能团的增加.



(a) 湿热老化

(a) Hydrothermal aging



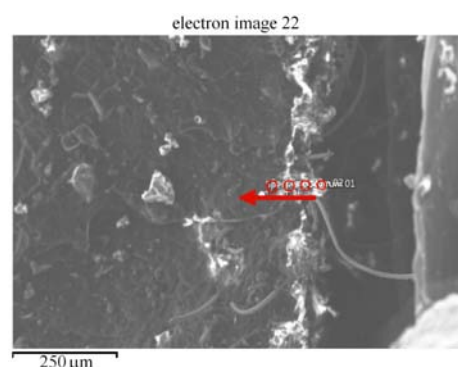
(b) 紫外老化

(b) UV aging

图6 试样表面氧元素含量变化

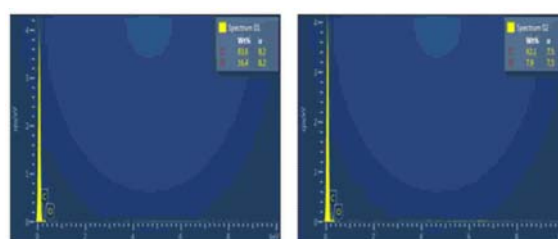
Fig. 6 Changes of oxygen content on the surface of the specimens

图7是老化试样中氧元素含量随试样深度的变化规律,图7(b)和图7(e)中的(1)~(4)分别是图9(a)和图9(d)脆断面SEM图中按箭头方向(从试样表层指向试样心部)的4个点的能谱,从图中可以看出,氧元素含量随老化层深度的增加而明显减小直至减为零,图7(c)和图7(f)即为试样中氧元素含量随距试样表层距离的变化规律,从图中可以看出,氧元素含量随距表面距离增加而单调降低,即老化程度



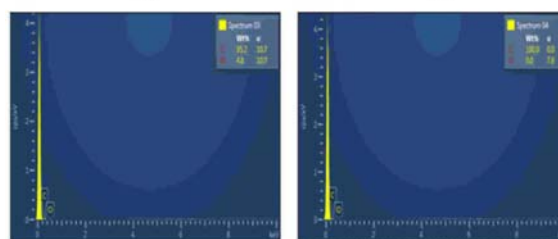
(a) 湿热老化 900 h 试样淬断面 SEM 图

(a) SEM diagram of quenching section of 900 h specimen with hydrothermal aging



(1)

(2)

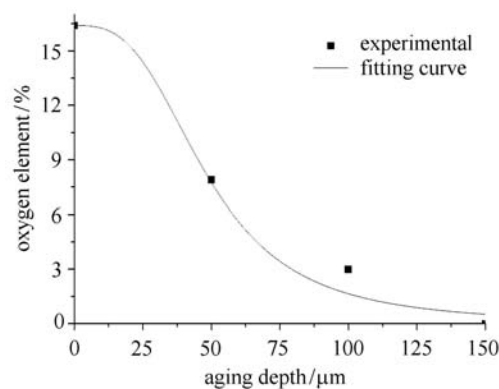


(3)

(4)

(b) 能谱图

(b) Spectrum



(c) 湿热老化

(c) Hydrothermal aging

图7 氧元素含量随老化深度的变化

Fig. 7 Changes of oxygen content with aging depth

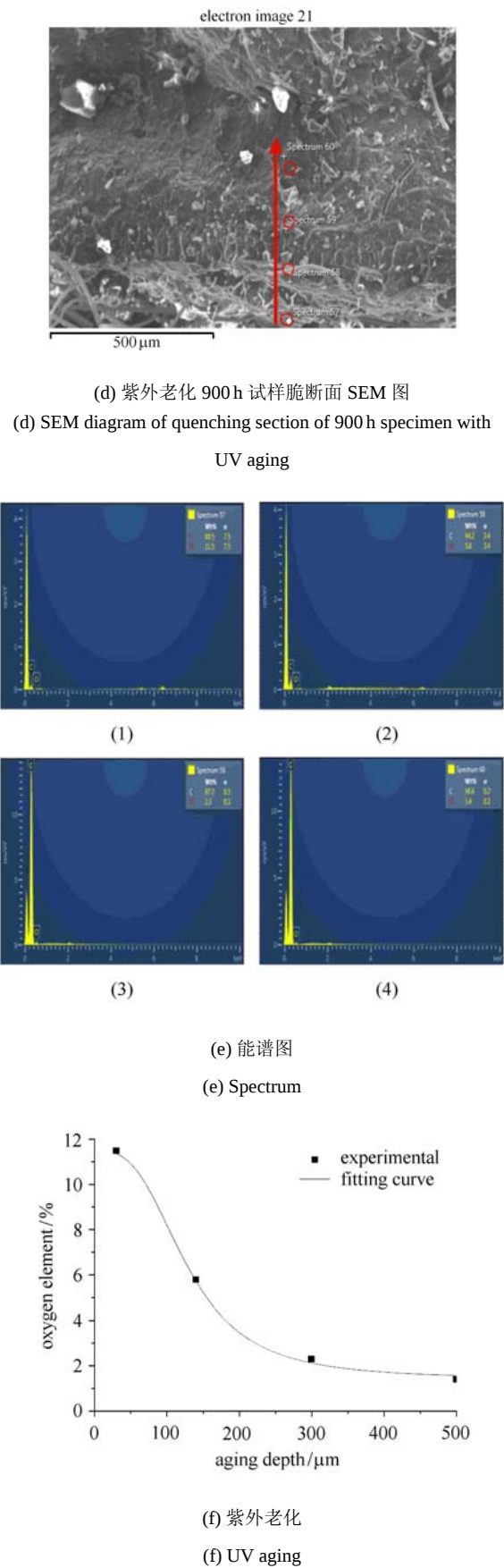


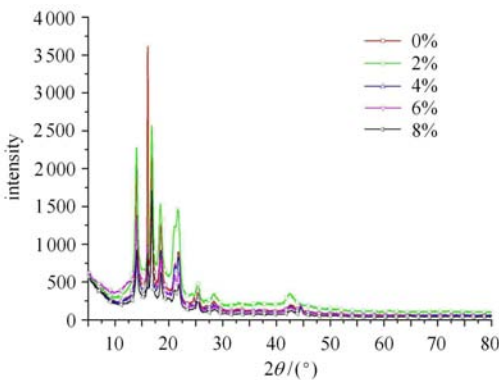
图 7 氧元素含量随老化深度的变化 (续)

Fig. 7 Changes of oxygen content with aging depth (continued)

减弱. 图中还可以看出湿热老化 900 h 后的深度约为 150 μm, 紫外老化 900 h 的深度约为 500 μm. 分析认为, 聚丙烯试样在强紫外光长时间照射下, 试样表层分子链率先发生断裂, 然后发生降解最终导致粉化, 试样表层粉化后进一步促进了试样深层的氧化作用, 而湿热老化 900 h 后试样表面仍未出现粉化现象.

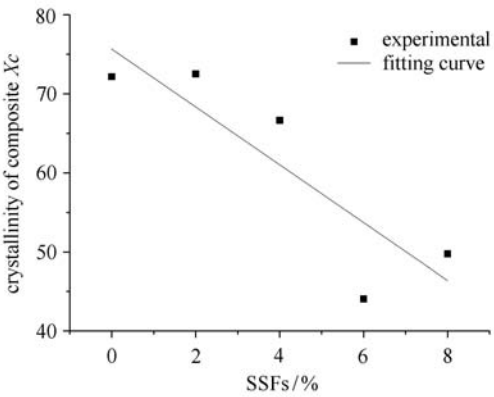
2.3 老化前后试样的 XRD 分析

未老化试样的 XRD 图谱如图 8(a) 所示, 经 MDI Jade 6 分析软件计算出试样的结晶度, 其结晶度随 SSFs 含量的变化趋势如图 8(b) 所示. 从图 8(a) 中可以看出, 随着 SSFs 的加入, 第 2 个衍射峰强度明显减弱, 其他衍射峰强度也有所减小. 从图 8(b) 中可以看出, 结晶度随 SSFs 含量的增加而减小, 分析认为填料的加入对 PP 基体的结晶过程有阻碍作用, 填料含量越多复合材料的结晶度越小.



(a) SSFs/PP 复合材料的 XRD 图谱

(a) XRD patterns of SSFs/PP composites



(b) 结晶度随 SSFs 含量的的变化

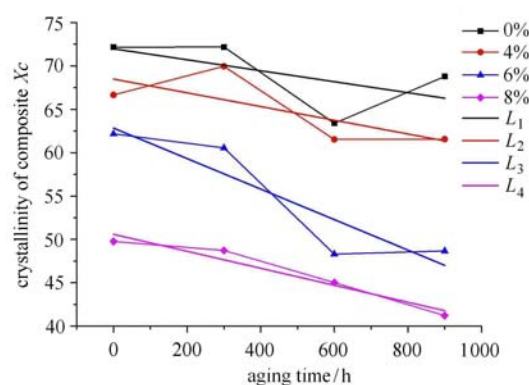
(b) Changes of crystallinity with the content of SSFs

图 8 未老化试样的 XRD 图谱及其结晶度变化

Fig. 8 XRD patterns and crystallinity changes of unaged samples

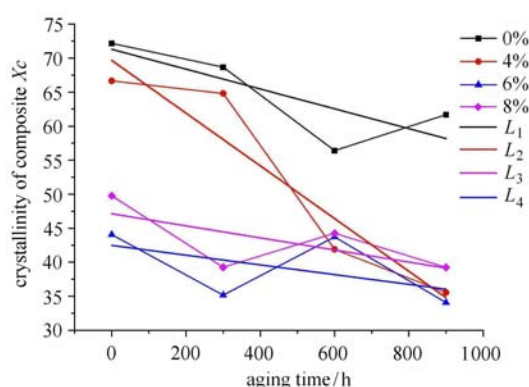
同理可测出导电填料含量为 0%, 4%, 6%, 8% 的试样的结晶度随老化时间的变化如图 9 所示. 从图中可以看出, 随填料含量增加, 复合材料结晶度降低, 且随老化时间延长结晶度呈减小趋势.

外界环境的温度、湿度、辐照强度以及老化时间等均会导致聚丙烯试样的分子结构发生支化、断链、交联及氧化等反应^[34]. 老化过程中的部分非晶链段在高温下会重新排列成有序的晶区结构^[35], 这会导致结晶度的增加; 但是随着老化时间的延长, 材料中分子链薄弱处易发生断裂, 形成自由基发生耦合作用, 导致交联反应的发生, 这会限制聚丙烯分子链的运动, 抑制结晶能力, 从而使复合材料结晶度下降. 所以在老化过程中重结晶反应和交联反应两个过程同时存在, 湿热老化初期重结晶反应占主导, 材料的结晶度会有所增加, 当老化时间延长交联反应占主导时, 材料的结晶度会呈下降趋势.



(a) 湿热老化

(a) Hygrothermal aging



(b) 紫外老化

(b) UV aging

图9 试样的结晶度随老化时间的变化

Fig.9 Changes of the crystallinity of the specimen with the aging time

3 结论

(1) 松弛实验中, 达到初始应力前的恒工程应变率加载过程中, 应力迅速增加, 材料的电阻率迅速降低. 松弛阶段应力有明显的三阶段特征, 电阻率在松弛初期稍有下降, 在松弛后续阶段, 电阻率趋于恒定, 只在很小范围内波动.

(2) 湿热老化后与未老化的试样相比, 松弛后的应力水平呈现先降低后增加的趋势. 对相同导电填料含量的试样, 老化 20 d 后材料分子链发生断裂使应力衰减较明显, 而老化 40 d 的材料由于分子链的交联现象使其应力水平反而有所回升. 另外湿热老化使材料初始电阻率增加, 并且老化时间越长, 材料的初始电阻率越高, 但对松弛阶段的电阻率变化规律影响不大.

(3) 随着湿热老化和紫外老化时间的延长, 复合材料会发生氧化产生羰基和羟基等含氧官能团, 导致复合材料外表面的氧元素含量增加. 从试样脆断面的能谱分析得出, 氧元素含量随距试样表面距离的增加而减小, 在本实验条件下老化时间相同时, 紫外老化深度比湿热老化深度大得多.

(4) PP/SSFs 复合材料的结晶度随填料含量的增加而减小, 且在老化过程中复合材料的重结晶过程和交联过程同时存在. 湿热老化初期重结晶反应占主导, 材料的结晶度有所增加, 随着湿热老化和紫外老化时间的延长交联反应占主导复合材料的结晶度呈减小趋势.

参 考 文 献

- Wang S, Chung DDL. Negative piezoresistivity in continuous carbon fiber epoxy-matrix composite. *Journal of Materials Science*, 2007, 42(13): 4987-4995
- Qu S, Wong SC. Piezoresistive behavior of polymer reinforced by expanded graphite. *Composites Science & Technology*, 2007, 67(2): 231-237
- 周剑锋, 宋义虎, 郑强. 聚合物基导电复合材料的黏弹性电阻响应. 中国新技术新产品, 2015(21): 53-54 (Zhou Jianfeng, Song Yihu, Zheng Qiang. Viscoelastic resistance response of polymer based conductive composites. *New Technology & New Products in China*, 2015 (21): 53-54 (in Chinese))
- 刘虎. 柔性热塑性聚氨酯导电纳米复合材料的应激响应及其机理研究. [博士论文]. 郑州: 郑州大学, 2017 (Liu Hu. Stress response and mechanism of flexible thermoplastic polyurethane conductive nanocomposites. [PhD Thesis]. Zhengzhou: Zhengzhou University, 2017(in Chinese))
- 徐佩, 王小溪, 胡亚东等. 烯丙基离子液体修饰炭黑/硅橡胶复合材料的压阻特性. 高分子材料科学与工程, 2017, 33(6): 65-69 (Xu

- Pei, Wang Xiaoxi, Hu Yadong, et al. The piezoresistive properties of allyl ionic liquid modified carbon black / silicone rubber composites. *Polymeric Materials Science and Engineering*, 2017, 33(6): 65-69(in Chinese))
- 6 索倩倩. 以聚丁烯为基体发泡材料的制备与性能研究. [硕士论文]. 北京化工大学, 2016 (Suo Qianqian. Preparation and properties of polybutene-based foamed material. [Master Thesis]. Beijing: Beijing University of Chemical Technology, 2016 (in Chinese))
- 7 左哲伟, 夏志东, 聂京凯等. 碳纤维填充对导电硅橡胶压阻效应及电阻蠕变行为的影响. 材料导报, 2016, 30(s2): 440-443 (Zuo Zhewei, Xia Zhidong, Nie Jingkai, et al. Influence of carbon fiber filling on the piezoresistive effect and resistance creep behavior of conductive silicone rubber. *Materials Review*, 2016, 30(s2): 440-443 (in Chinese))
- 8 Wang P, Ding T. Conductivity and piezoresistivity of conductive carbon black filled polymer composite. *Journal of Applied Polymer Science*, 2010, 116(4): 2035-2039
- 9 张智枢, 顾欣, 杨云云等. 聚乙烯管材专用料 (PE-XRT70) 应力松弛和蠕变行为. 四川大学学报 (工程科学版), 2017, 49(2): 232-239 (Zhang Zhishu, Gu Xin, Yang Yunyun, et al. Stress relaxation and creep behavior of polyethylene pipe special material (PE-XRT70). *Journal of Sichuan University (Engineering Science)*, 2017, 49 (2): 232-239 (in Chinese))
- 10 张晓萌, 姚占勇, 张硕等. 应力松弛对 PET/炭黑/碳纤维复合材料影响规律分析. 工程塑料应用, 2017, 45(4): 99-103 (Zhang Xiaomeng, Yao Zhanyong, Zhang Shuo, et al. Analysis of the influence of stress relaxation on PET/carbon black/carbon fiber composites. *Engineering Plastics Application*, 2017, 45 (4): 99-103(in Chinese))
- 11 蔡利海, 张诚, 郭宝华等. 尼龙 1010 应力松弛行为研究. 高分子学报, 2016(3): 382-390 (Cai Lihai, Zhang Cheng, Guo Baohua, et al. Study on stress relaxation behavior of nylon 1010. *Acta Polymerica Sinica*, 2016 (3): 382-390(in Chinese))
- 12 许珊珊, 张营营, 张其林. PTFE 膜材的应力松弛性能及预测模型分析. 应用数学和力学, 2016, 37(3): 266-276 (Xu Shanshan, Zhang Yingying, Zhang Qilin. PTFE membrane material analysis of stress relaxation properties and prediction model of. *Applied Mathematics and Mechanics*, 2016, 37(3): 266-276 (in Chinese))
- 13 Zheng Q, Zhou JF, Song YH. Time-dependent uniaxial piezoresistive behavior of high-density polyethylene/short carbon fiber conductive composites. *Journal of Materials Research*, 2004, 19(9): 2625-2634
- 14 Wang L, Ding T, Wang P. Effects of instantaneous compression pressure on electrical resistance of carbon black filled silicone rubber composite during compressive stress relaxation. *Composites Science & Technology*, 2008, 68(15-16): 3448-3450
- 15 Wang L, Han Y. Compressive relaxation of the stress and resistance for carbon nanotube filled silicone rubber composite. *Composites Part Applied Science & Manufacturing*, 2013, 47(1): 63-71
- 16 Zhai T, Li D, Fei G, et al. Piezoresistive and compression resistance relaxation behavior of water blown carbon nanotube/polyurethane composite foam. *Composites Part Applied Science & Manufacturing*, 2015, 72: 108-114
- 17 陈明, 贾来兵, 尹协振. 描述鱼鳞材料松弛特性的分数 Zener 模型. 力学学报, 2011, 43(1): 217-220 (Chen Ming, Jia Laibing, Yin Xiezheng. Fractional Zener model describing the relaxation characteristics of fins. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2011, 43(1): 217-220 (in Chinese))
- 18 彭凡, 顾勇军, 马庆镇. 热环境中黏弹性功能梯度材料及其结构的蠕变. 力学学报, 2012, 44(2): 308-316 (Peng Fan, Gu Yongjun, Ma Qingzhen. Creep of viscoelastic functionally graded material structure in thermal environment. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2012, 44(2): 308-316 (in Chinese))
- 19 杜伯学, 侯兆豪, 徐航等. 高压直流电缆绝缘用聚丙烯及其纳米复合材料的研究进展. 高电压技术, 2017 (9): 2769-2780 (Du Boxue, Hou Zhaoxu, Xu Hang, et al. Research progress on polypropylene for high voltage DC cable insulation and its nanocomposites. *High Voltage Engineering*, 2017 (9): 2769-2780(in Chinese))
- 20 倪玲贵, 买买提江·依米提, 热依扎·别坎等. 不同老化方法对聚丙烯老化程度的影响. 塑料工业, 2017, 45(1): 93-96 (Ni Linggui, Maomatijiang Yimiti, Reizha Beikan, et al. Effect of different aging methods on polypropylene aging. *China Plastics Industry*, 2017, 45 (1): 93-96(in Chinese))
- 21 李洋, 李培耀, 郭兵等. 聚丙烯热氧加速老化评估和使用寿命的研究. 塑料工业, 2015, 43(11): 93-96 (Li Yang, Li Peiyao, Guo Bing, et al. Study on accelerated aging evaluation and service life of polypropylene thermal oxidation. *China Plastics Industry*, 2015, 43 (11): 93-96 (in Chinese))
- 22 田瑶君, 秦军, 陆之洋等. 聚丙烯户外自然光老化失效分析. 塑料, 2016(3): 97-99 (Tian Yaojun, Qin Jun, Lu Zhiyang, et al. Failure analysis of outdoor natural light aging of polypropylene. *Plastic*, 2016 (3): 97-99(in Chinese))
- 23 Grabmayer K, Beißmann S, Wallner GM, et al. Characterization of the influence of specimen thickness on the aging behavior of a polypropylene based model compound. *Polymer Degradation & Stability*, 2014, 111: 185-193
- 24 Wanasekara N, Chalivendra V, Calvert P, et al. Sub-micron scale mechanical properties of polypropylene fibers exposed to ultraviolet and thermal degradation. *Polymer Degradation & Stability*, 2011, 96(4): 432-437
- 25 Yano A, Akai N, Ishii H, et al. Thermal oxidative degradation of additive-free polypropylene pellets investigated by multichannel Fourier-transform chemiluminescence spectroscopy. *Polymer Degradation & Stability*, 2013, 98(12): 2679-2686
- 26 Lv Y, Huang Y, Yang J, et al. Outdoor and accelerated laboratory weathering of polypropylene: A comparison and correlation study. *Polymer Degradation & Stability*, 2015, 112: 145-159
- 27 付云伟, 张龙, 倪新华等. 考虑夹杂相互作用的复合陶瓷夹杂界面的断裂分析. 力学学报, 2016, 48(1): 154-162 (Fu Yunwei, Zhang Long, Ni Xinhua, et al. Interface cracking analysis with inclusions interaction in composite ceramic. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2016, 48(1): 154-162 (in Chinese))
- 28 徐业守, 徐赵东, 葛腾等. 黏弹性材料等效分数阶微观结构标准线性固体模型. 力学学报, 2017, 49(5): 1059-1069 (Xu Yeshou, Xu Zhaodong, Ge Teng, et al. Equivalent fractional order microstructure standard linear solid model for viscoelastic materials. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2017, 49(5): 1059-1069 (in Chinese))
- 29 张作启, 刘彬. 任意加载模式下含裂纹超弹性体的能量释放率. 力

- 学学报, 2013, 45(1): 129-133 (Zhang Zuoqi, Liu Bin. Energy release rate of cracked superelastic body under arbitrary loading mode. *Journal of Mechanics*, 2013, 45(1): 129-133 (in Chinese))
- 30 唐景, 彭丽霞, 张增明等. 不同老化模式对光伏背板中 PET 结晶度的影响. 合成材料老化与应用, 2011, 40(2): 40-46 (Tang Jing, Peng Lixia, Zhang Zengming, et al. Crystallinity of PET in photovoltaic backsheet under different ageing pattern. *Synthetic Materials Aging and Application*, 2011, 40(2): 40-46 (in Chinese))
- 31 周韞捷, 李红雷, 王琦梦等. 加速热老化对 XLPE 电缆绝缘力学性能和介电性能的影响研究. 华东电力, 2014, 42(8): 1606-1610 (Zhou Yunjie, Li Honglei, Wang Qimeng, et al. Effect of accelerated thermal aging on mechanical and dielectric properties of XLPE cable insulation. *East China Electric Power*, 2014, 42(8): 1606-1610 (in Chinese))
- 32 徐俊, 王晓东, 欧阳本红等. 热老化对交联聚乙烯电缆绝缘理化结构的影响. 绝缘材料, 2013(2): 33-37 (Xu Jun, Wang Xiaodong, Ouyang Benhong, et al. Effect of thermal aging on the physico-chemical structure of XLPE cable insulation. *Insulating Materials*, 2013(2): 33-37 (in Chinese))
- 33 姚培培, 李琛, 肖生苓. 紫外老化对聚苯乙烯泡沫性能的影响. 化工学报, 2014, 65(11): 4620-4626 (Yao Peipei, Li Chen, Xiao Shengling. Effect of ultraviolet aging on properties and structure of polystyrene. *Journal of Chemical Industry and Engineering(China)*, 2014, 65(11): 4620-4626 (in Chinese))
- 34 代军, 晏华, 郭骏骏等. 结晶度对高密度聚乙烯热氧老化特性的影响. 高分子材料科学与工程, 2016, 32(9): 65-71 (Dai Jun, Yan Hua, Guo Junjun, et al. Effect of crystallinity on thermal aging properties of high density Polyethylene. *Polymeric Materials Science and Engineering*, 2016, 32 (9): 65-71 (in Chinese))
- 35 刘一鸣, 胡贵, 吴智华. 抗氧剂对无规共聚聚丙烯抗紫外光老化性能的影响. 塑料科技, 2012, 40(12): 84-88 (Liu Yiming, Hu Gui, Wu Zhihua. Effect of antioxidants on the anti-ultraviolet aging behavior of polypropylene random copolymer. *Plastics Science and Technology*, 2012, 40(12): 84-88 (in Chinese))