

# 硅凝胶包覆密胺甲醛树脂 微胶囊红磷的研究

程晨<sup>1</sup>,杜仕国<sup>1\*</sup>,鲁彦玲<sup>1</sup>,刘献杰<sup>2</sup>

(1.陆军工程大学石家庄校区三系,河北石家庄050000;2.预备役76师,山东烟台264000)

**摘要:**利用溶胶-凝胶法对密胺甲醛树脂微胶囊红磷(MRP)进行再包覆,制备硅凝胶-密胺甲醛树脂双层包覆红磷(Si-MRP)。通过傅里叶红外光谱、扫描电镜及X射线光电子能谱分析对MRP及Si-MRP进行形态表征。结果表明,通过溶胶-凝胶法在MRP表面包覆硅凝胶,包覆率达95.7%;Si-MRP表面形态相对于MRP更为光滑,样品表面存在少量二氧化硅微球结构。对MRP及Si-MRP进行吸湿性、热稳定性及感度表征,结果表明,硅凝胶包覆后的Si-MRP产物吸湿性下降,90%湿度条件下,10 d后的吸湿率为7.5%,而MRP的10 d后吸湿率为12%;Si-MRP热稳定性提高,着火点约为450℃,较MRP提升75℃;MRP的摩擦感度为34%,经硅凝胶包覆后,Si-MRP的摩擦感度下降至16%。

**关键词:**微胶囊化;溶胶-凝胶法;硅凝胶;红磷;安定性

中图分类号:O633

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2019)06-0182-05

DOI:10.16606/j.cnki.issn 0253-4320.2019.06.038

## Microencapsulation of melamine-formaldehyde resin microcapsule red phosphorus with silica gel

CHENG Chen<sup>1</sup>, DU Shi-guo<sup>1\*</sup>, LU Yan-ling<sup>1</sup>, LIU Xian-jie<sup>2</sup>

(1.The Third Department, Army Engineering University, Shijiazhuang 050000, China;

2.Reserve Division No.76, Yantai 264000, China)

**Abstract:** Silica-gel/melamine-formaldehyde microencapsulation phosphorus (Si-MRP) is prepared through re-coating silica-gel onto melamine-formaldehyde resin microencapsulation phosphorus (MRP) by sol-gel method. Morphologies and structure of MRP and Si-MRP are tested by FT-IR, SEM and XPS. The results indicate that silica gel has successfully coated onto the surface of MRP, with a coating ratio of 95.7%. Si-MRP exhibits smoother surface morphology than MRP. There exists a small amount of silica microspheres on the surfaces of Si-MRP samples. The water absorption ability, the thermal stability and the mechanical sensitivity of both MRP and Si-MRP are also characterized. The results show that the water absorption ability of Si-MRP drops than before coated by silica gel, staying 7.5% after having been exposed to the moisture environment of 90% humidity for ten days, while that is 12% for MRP. The thermal stability of Si-MRP is also enhanced, with an ignition temperature reaching 450℃, an increase of 75℃ compared with MRP. The friction sensitivity of MRP is 34% and that of Si-MRP falls to 16%.

**Key words:** microencapsulation; sol-gel method; silica gel; red phosphorus; stability

红磷是一种常用的军事发烟剂,因成烟迅速且自身无毒,逐步取代白磷成为磷系发烟剂的主要装药。红磷烟幕对可见光及特定波长的红外光有着较高的吸收效能,在现代战场上可在一定程度上限制精确制导武器的使用,是一种廉价高效的防御手段<sup>[1-3]</sup>。然而红磷在实际使用中容易吸湿并释放PH<sub>3</sub>剧毒气体,对存储环境要求较高;摩擦感度较高且着火点低,在运输过程中容易造成事故。针对以上问题,各国学者利用微胶囊技术在红磷表面附着一层有机或无机材料,将红磷与外界环境隔离,提高了红磷的使用性能<sup>[4]</sup>。密胺甲醛树脂是一种常用

的囊壳材料,经密胺甲醛树脂包覆的红磷的抗吸湿性能及安定性都有了一定改善。但密胺甲醛树脂质地较脆,且作为有机材料耐热耐腐蚀性能较差,需要进一步包覆或改性来达到实际应用的要求<sup>[5-8]</sup>。

笔者以正硅酸乙酯(TEOS)为前驱体,采用溶胶-凝胶法在MRP表面包覆一层二氧化硅凝胶,实现红磷的硅凝胶-树脂双层包覆。并对硅溶胶包覆后的产物进行红外光谱扫描、XPS分析及扫描电镜表征,进一步研究其吸湿性、热稳定性及安定性,以期对硅凝胶-树脂双层包覆微胶囊红磷的实际应用提供参考。

收稿日期:2018-04-10;修回日期:2018-11-15

作者简介:程晨(1994-),男,硕士研究生,研究方向为军事化学与烟火技术,17603239058@163.com;杜仕国(1961-),男,博士,教授,博士生导师,研究方向为军事化学与烟火技术,通讯联系人,c331445205@126.com。

## 1 实验材料和方法

### 1.1 仪器和试剂

傅里叶红外光谱仪, TENSOR II 型, 德国布鲁克公司生产; 热重分析仪, SDTQ600 型, 美国 TA 电子生产; 扫描电子显微镜, JSM-7001F 型, 日本电子生产; X 射线能谱仪, PHI Quantera II 型, 日本 Ulvac-Phi Inc 生产; 落锤式撞击感度仪, HGZ-1 型, 湖北天力敏科技有限公司生产; 摩擦感度仪, MGY-1 型, 湖北天力敏科技有限公司生产。

红磷, 纯度 >99%, 天津市永大化学试剂有限公司生产; 三聚氰胺, 分析纯, 天津市恒兴化学试剂制造有限公司生产; 37% 甲醛溶液, 分析纯, 天津市百世化工有限公司生产; 碳酸氢钠, 分析纯, 天津市博迪化工有限公司生产; 柠檬酸, 分析纯, 天津市博迪化工有限公司生产; 十二烷基苯磺酸钠 (SDBS), 分析纯, 天津市博迪化工有限公司生产; OP-10, 分析纯, 天津市红岩化学试剂厂生产; 浓氨水, 分析纯, 石家庄市试剂厂生产; 无水乙醇, 分析纯, 天津市恒兴化学试剂制造有限公司生产; 正硅酸乙酯, 分析纯, 天津市致远化学试剂有限公司生产。

### 1.2 样品制备

采用原位聚合法制备密胺甲醛树脂 (MF) 微胶囊红磷:

(1) 红磷预处理: 取 10 g 红磷于烧杯中, 加入 100 mL 水, 高速剪切乳化 1 h; 加入 0.25 g SDBS, 磁力搅拌 1 h, 待用。

(2) 制备 MF 预聚物: 圆底烧瓶中依次加入 4.2 g 三聚氰胺、9 mL 37% 甲醛溶液及蒸馏水, 滴加 10% 碳酸氢钠溶液调节 pH = 8.5, 70°C 下反应 30 min, 得透明 MF 预聚物。

(3) 红磷包覆: 将预聚物加入红磷分散液中, 滴加 10% 柠檬酸溶液调节 pH = 4.5, 于 70°C 反应 2 h。所得样品抽滤并用蒸馏水洗涤, 于 108°C 恒温干燥 24 h, 制得 MRP。

硅凝胶包覆微胶囊红磷的制备:

(1) 量取 10 mL 蒸馏水、20 mL 无水乙醇于烧杯中, 滴加浓氨水至 pH = 9, 磁力搅拌 10 min。

(2) 称量 5 g MRP 样品, 加入醇水混合液中, 滴加 0.2 mL OP-10 乳化剂, 于 45°C 下水浴加热搅拌 15 min。

(3) 将 2 g TEOS 与 10 mL 无水乙醇混合, 以 1~2 滴/s 的速度持续滴加至 MRP 分散液中, 45°C 保温反应 4 h, 室温陈化 12 h, 80°C 烘干 24 h, 得硅溶胶包覆 Si-MRP。

### 1.3 测试与表征

傅里叶红外光谱 (FT-IR) 测试: 将制备的 MRP 及 Si-MRP 溴化钾压片, 设置扫描波数范围 4 000~

(上接第 181 页)

- [7] Suljo Linic, Mark A Barteau. Formation of a stable surface oxametallacycle that produces ethylene oxide [J]. *J Am Chem Soc*, 2002, 124 (2): 310-317.
- [8] Podgornov E A, Prosvirin I P, Bukhtiyarov V I. XPS, TPD and TPR studies of Cs-O complexes on silver; Their role in ethylene epoxidation [J]. *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, 2000, 158 (1): 337-343.
- [9] Stegelmann C, Schiødt N C, Campbell C T, et al. Microkinetic modeling of ethylene oxidation over silver [J]. *Journal of Catalysis*, 2004, 221 (2): 630-649.
- [10] Piao H, Enever M C N, Adib K, et al. High resolution X-ray photoelectron spectroscopy of styrene oxide adsorption and reaction on Ag (111) [J]. *Surface Science*, 2004, 571 (1-3): 139-145.
- [11] Siriphong Rojluetchai, Sumaeth Chavadej, Johannes W Schwank, et al. Activity of ethylene epoxidation over high surface area alumina support Au-Ag catalysts [J]. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 2006, 39 (3): 321-326.
- [12] Enever M, Linic S, Uffalussy K, et al. Synthesis, structure, and reactions of stable oxametallacycles from styrene oxide on Ag (111) [J]. *J Phys Chem B*, 2005, 109 (6): 2227-2233.
- [13] Suljo Linic, Mark A Barteau. Control of ethylene epoxidation selectivity by surface oxametallacycles [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2003, 125 (14): 4034-4035.
- [14] Lauritzen, Ann M. Ethylene oxide catalyst and process for preparing the catalyst; US, 4761394 [P]. 1988-08-02.
- [15] Lauritzen, Ann M. Ethylene oxide catalyst and process for preparing the catalyst; US, 4766105 [P]. 1988-08-23.
- [16] 周允红, 周晓龙, 曹建春, 等. 负载银催化剂的制备与应用的研究进展 [J]. *石油化工*, 2014, 43 (6): 721-728.
- [17] Nabil Rizkalla, Andrzej Rokicki. Carrier treatment to improve catalytic performance of an ethylene oxide catalyst; US, 2017/0369460A1 [P]. 2017-12-28.
- [18] Dellamorte J C, Lauterbach J, Barteau M A. Promoter-induced morphological changes of Ag catalysts for ethylene epoxidation [J]. *Ind Eng Chem Res*, 2009, 48 (13): 5943-5953.
- [19] 皇环环, 王倩, 吴丽, 等. 低温燃烧合成法制备的氧化铝陶瓷粉体的发光特性 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2018, 38 (9): 2676-2680.
- [20] 刘峰, 何德东, 陆继长, 等. 尿素研磨燃烧法合成 Ce<sub>0.8</sub>Zr<sub>0.2</sub>O<sub>2</sub> 固溶体对乙醇催化分解的研究 [J]. *中国稀土学报*, 2018, 36 (1): 53-60. ■

400  $\text{cm}^{-1}$ , 测定样品红外透射光谱。

扫描电子显微镜 (SEM) 分析: 将 MRP 及 Si-MRP 表面喷铂处理, 进行样品形貌分析。

XPS 分析: 对样品表面元素进行定性及半定量分析。并采用灵敏度因子法计算原子浓度, 以此分析包覆效果。

吸湿性测试: 样品的吸湿性依据 GBT 16913—2008 中所述方法进行测定, 在 90% 湿度条件下绘制吸湿率曲线。

热稳定性测试: 取  $(5 \pm 0.5)$  mg MRP 及 Si-MRP 样品进行热重分析。升温速度设置为  $15^\circ\text{C}/\text{min}$ , 温度范围为  $15 \sim 600^\circ\text{C}$ , 氮气流速为  $100 \text{ mL}/\text{min}$ ; 分别取 1 g MRP 及 1 g Si-MRP 于陶瓷坩埚中, 放置于马弗炉, 以  $5^\circ\text{C}/\text{min}$  升温速率测定样品着火点温度。

感度测试: 样品的撞击感度及摩擦感度依据 GJB 772A—1997 中所述的方法进行测试。

## 2 实验结果及分析

### 2.1 FT-IR 光谱分析

MRP 与 Si-MRP 的红外谱图如图 1 所示。

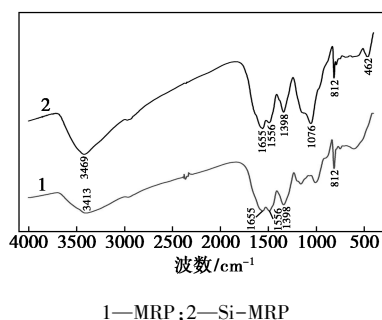


图 1 MRP 与 Si-MRP 红外光谱图

由图 1 中谱线 1 可以看出, 在  $3413 \text{ cm}^{-1}$  处存在仲胺特征峰,  $1655 \text{ cm}^{-1}$  处存在  $\text{C}=\text{O}$  伸缩振动特征峰,  $1556 \text{ cm}^{-1}$  及  $812 \text{ cm}^{-1}$  处的特征吸收峰是由三嗪环振动产生,  $1398 \text{ cm}^{-1}$  处为酰胺  $\text{C}-\text{N}$  伸缩振动吸收峰。MRP 红外谱图表明, 红磷表面已存在 MF 树脂结构。

由图 1 中谱线 2 可以看出, Si-MRP 红外光谱中  $3469 \text{ cm}^{-1}$  处特征峰相较于 MRP  $3413 \text{ cm}^{-1}$  处特征峰出现漂移, 且强度加强。这是由于  $\text{Si}-\text{OH}$  反对称伸缩振动产生的特征峰与仲胺特征峰叠加造成的; 除此之外, Si-MRP 在  $1076 \text{ cm}^{-1}$  处出现  $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$  反对称吸收峰,  $462 \text{ cm}^{-1}$  处出现  $\text{Si}-\text{O}$  伸缩振动吸收峰<sup>[9]</sup>。Si-MRP 红外谱图表明, 经 TEOS 处理后的微胶囊红磷已经出现硅凝胶结构。

### 2.2 SEM 分析

MRP 与 Si-MRP 样品扫描电镜图如图 2 所示。

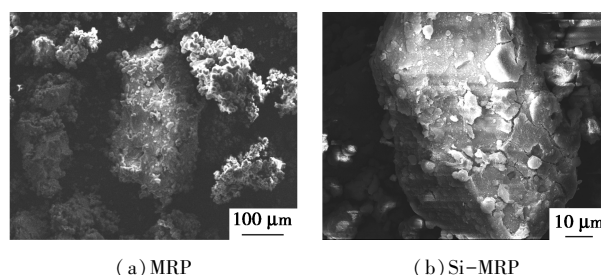


图 2 MRP 与 Si-MRP 扫描电镜图

从图 2(a) 中可以看出, MRP 样品表面粗糙, 囊壳结构由球形颗粒堆积而成。而经过硅溶胶再包覆形成的 Si-MRP 样品表面相对光滑, 呈片层结构, 表面嵌有少量纳米二氧化硅颗粒。这是由于 MF 树脂与硅凝胶囊壳性质不同造成的, MF 树脂预聚物在酸性条件下自聚合成球形树脂颗粒, 该颗粒的黏性较大、流动性差, 在红磷表面杂乱堆积后形成树脂囊壳; 硅凝胶在 TEOS 浓度较低条件下不易形成二氧化硅颗粒, 分子聚合度低, 硅凝胶在样品表面聚集后, 相邻凝胶分子进一步交联聚合形成表面光滑的片层结构<sup>[10]</sup>。

### 2.3 XPS 分析

MRP 与 Si-MRP 样品 XPS 全谱扫描图如图 3 所示。

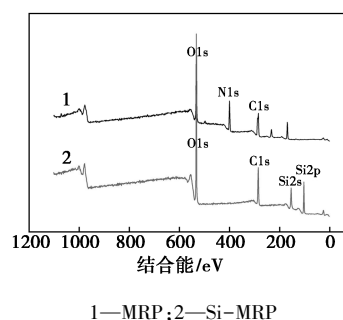


图 3 MRP 与 Si-MRP 样品 XPS 全谱扫描图

由图 3 中可以看出, MRP 样品中,  $\text{O}1\text{s}$  峰、 $\text{C}1\text{s}$  峰及  $\text{N}1\text{s}$  峰是由于 MF 树脂囊壳键能分裂产生。在 Si-MRP 样品中, 属于 MF 树脂囊壳的  $\text{N}1\text{s}$  峰消失, 新出现了  $\text{Si}2\text{s}$  峰与  $\text{Si}2\text{p}$  峰, 说明 MRP 样品表面已包覆有硅囊壳结构。

对硅囊壳结构进行进一步分析的结果如图 4 所示。从图 4 可以看到, MRP 在  $532.8 \text{ eV}$  与  $532.0 \text{ eV}$  分别存在  $\text{O}1\text{s}$  A 峰与  $\text{O}1\text{s}$  B 峰。其中  $\text{O}1\text{s}$  A 峰是由三聚氰胺囊壳  $\text{C}-\text{O}-\text{C}$  键能级分裂引起,  $\text{O}1\text{s}$  B 峰是由囊壳残存的  $-\text{OH}$  键能级分裂产生。与之

相比, Si-MRP 仅存在 1 个 O1s 峰, 且向高能级出现轻微偏移, 这主要是由于 Si—O 键能级分裂引起的。Si-MRP 样品的 Si2p 峰位于 103 eV, 是由 Si—O 键能分裂产生。由此可知, 在 Si-MRP 表面形成了硅凝胶结构, 构成该凝胶的化学键为 Si—O—Si。

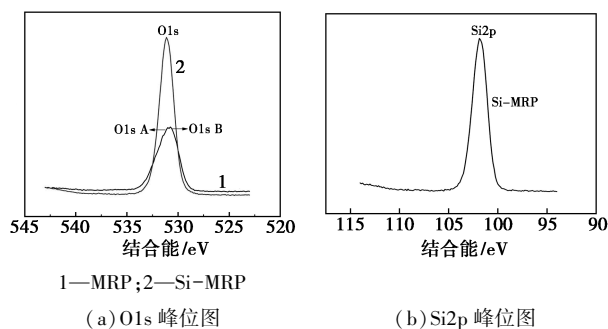


图 4 MRP 与 Si-MRP 样品峰位图

根据灵敏度因子法测定的样品表面原子质量分数如表 1 所示。

表 1 MRP 与 Si-MRP 样品原子质量分数

样品	原子质量分数/%			
	C	N	O	Si
MRP	41.94	20.95	37.12	—
Si-MRP	43.82	0.90	41.92	13.36

N 元素是 MF 树脂特征元素, 原始红磷与硅凝胶结构理论上不存在 N 元素, 因此可根据 N 元素包覆前后的原子质量分数计算硅凝胶的包覆率。在本实验工艺条件下, 硅溶胶包覆率达 95.7%, 包覆效果良好。

#### 2.4 吸湿性分析

MRP 与 Si-MRP 样品吸湿率曲线如图 5 所示。

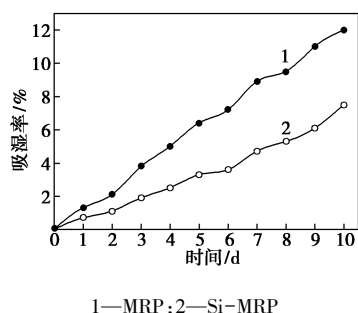


图 5 MRP 与 Si-MRP 样品吸湿率曲线

由图 5 可以看到, 10 d 后 MRP 的吸湿率约为 12%, 而 Si-MRP 样品 10 d 后吸湿率为 7.5%, 抗湿性能得到提高。这是由于相对于 MRP 样品表面不规则的堆积结构, Si-MRP 的光滑表面显著降低了

样品的吸湿面积, 使得吸湿率下降; 同时 Si-MRP 样品表面存在的少许二氧化硅颗粒与硅凝胶壳形成乳突结构, 使其具有荷叶效应, 疏水性能进一步提升<sup>[11]</sup>。

#### 2.5 热稳定性分析

MRP 与 Si-MRP 样品的 TG/DTG 曲线如图 6 所示。

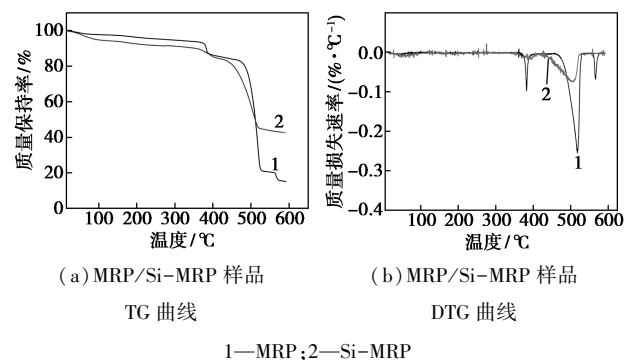


图 6 MRP 与 Si-MRP 样品热分析曲线

从图 6(a) 中可以看出, MRP/Si-MRP 的热降解主要分为以下 3 个阶段: 第 1 阶段 15~100℃, 失重主要是由于样品水分蒸发造成的。其中 Si-MRP 的失重率略大于 MRP, 这是由于硅凝胶分子内含结合水, 较高温度下水分子逸出, 导致失重率略高; 350~450℃ 是样品热失重的第 2 阶段, 在此温度范围内, MRP 质量保持率下降明显, 约为 7%, 主要是由于有机树脂囊壳在高温下剧烈分解造成的。Si-MRP 质量保持率虽有下降, 但趋势较为平缓, 这是由于表面硅凝胶有效地对内层有机囊壳进行了保护; 第 3 阶段温度范围是 450~550℃, 样品质量下降均是由于红磷高温升华造成的。此外, MRP 在 550~600℃ 范围内仍存在失重现象, 主要由于残碳分解造成。

由图 6(b) 可以看出, MRP 的 DTG 曲线中前 2 个热失重峰的峰值分别为 0.12%/℃ 及 0.28%/℃, 第 3 个热失重峰约为 0.07%/℃; 而 Si-MRP 样品在整个过程中仅在 500℃ 处有 1 个明显的热失重峰, 约为 0.08%/℃。Si-MRP 的热稳定性较 MRP 有着明显提高。

对样品进行着火点测定, 结果如表 2 所示。

表 2 MRP 与 Si-MRP 样品着火点温度

样品	MRP	Si-MRP
着火点/℃	375	450

由表 2 可以看出, 相对于未处理的微胶囊红磷,

硅凝胶包覆后的样品着火点提高约 75℃。这是由于硅凝胶结构中存在大量 Si—O—Si 键,其键能为 452 kJ/mol;而 MF 树脂的三嗪环结构主要依靠 N—O (201 kJ/mol)、C—O (358 kJ/mol) 及 C—C (346 kJ/mol) 相连,化学键受热更易断裂,造成囊壳结构被破坏,使得红磷裸露后燃烧,因此着火点较 Si-MRP 样品低。

## 2.6 感度测试结果

对样品进行撞击感度与摩擦感度测试,以此反映 MRP 与 Si-MRP 在撞击和摩擦条件下发生燃烧的难易程度,评估其在实际使用过程中的安全性能。在撞击感度测试中,MRP 与 Si-MRP 均未发生燃烧,说明样品对撞击不敏感。MRP 与 Si-MRP 摩擦感度测试结果如表 3 所示。

表 3 MRP 与 Si-MRP 样品摩擦感度

样品	MRP	Si-MRP
摩擦感度/%	34	16

在每个样品进行的 2 组平行实验(每组 25 发)中,MRP 样品分别有 8 发、9 发产生燃烧,计算得摩擦感度为 34%;Si-MRP 的 2 组实验均只有 4 发产生燃烧,计算摩擦感度为 16%。Si-MRP 摩擦感度较 MRP 降低。这是由于二氧化硅凝胶结构较 MF 树脂囊壳更具韧性,在机械冲击下囊壳结构不易破坏<sup>[12-13]</sup>;且 Si-MRP 样品表面更为光滑,囊壳耐热性强,根据热点学说,摩擦产生的热量很难在样品表面聚集造成燃烧,表现为摩擦感度降低<sup>[14]</sup>。

## 3 结论

(1)以 TEOS 为前驱体,采用溶胶-凝胶法再包覆 MRP 制备的 Si-MRP 样品硅凝胶包覆率为 95.7%,且囊壳为 Si—O—Si 结构。

(2)硅凝胶具有良好热稳定性,Si-MRP 的着火点较 MRP 明显提升,有助于减少红磷在运输、存储过程中发生自燃的风险。

(3)硅凝胶包覆后的产物表面树脂微球堆积结构消失,取而代之的是更为光滑的片层结构,因此,Si-MRP 的吸湿面积显著降低,且纳米二氧化硅微球形成的荷叶结构增加了 Si-MRP 的疏水性,使得 Si-MRP 10 d 后吸水率仅为 7.5%。

(4)硅凝胶结构强度较 MF 树脂明显提升,在外

力作用下不易被破坏,且其形态及化学特性使得摩擦热点不易形成,因此,Si-MRP 的摩擦感度较 MRP 进一步降低,有助于提高红磷在存储、运输过程中的安全性。

## 参考文献

- [1] 王玄玉,潘功配.红磷与纳米氧化铝组合烟幕对 10.6 μm 激光的消光系数研究[J].含能材料,2007,15(6):612-615.
- [2] 王玄玉,潘功配.几种烟幕对 CO<sub>2</sub> 激光的衰减性能研究[J].激光与红外,2006,36(2):144-146.
- [3] 郑付兴,王玄玉,宋黎,等.氧化剂对红磷烟幕抗 10.6 μm 激光性能的影响研究[J].含能材料,2007,15(2):155-157.
- [4] Cao Zhijie, Dong Xue, Fu Teng, *et al.* Coated vs. naked red phosphorus: A comparative study on their fire retardancy and smoke suppression for rigid polyurethane foams[J]. Polymer Degradation and Stability, 2017, (136): 103-111.
- [5] 马千,刘增杰,梁轶,等.二元醇改性密胺甲醛树脂包覆红磷[J].应用化学,2015,32(10):1153-1158.
- [6] Wang Haitao, Meng Xiangfu, Wen Bin, *et al.* A simple route for the preparation of red phosphorus microcapsule with fine particle distribution[J]. Materials Letters, 2008, 62: 3745-3747.
- [7] 刘晓艳,楼樱红.溶胶-凝胶法改性原位法制备的相变微胶囊[J].棉纺织技术,2015,43(2):16-20.
- [8] Chang Shaokun, Zeng Chao, Yuan Weizhong, *et al.* Preparation and characterization of double-layered microencapsulated red phosphorus and its flame retardance in poly(lactic acid) [J]. Journal of Applied Polymer Science, 2012, 125: 3014-3022.
- [9] 倪健雄.核-壳型聚磷酸铵阻燃剂的制备及其阻燃聚氨酯性能和机理的研究[D].合肥:中国科技大学,2009.
- [10] Ni Jianxiong, Chen Lijuan, Zhao Kuiming, *et al.* Preparation of gel-silica/ammonium polyphosphate core-shell-flame retardant and properties of polyurethane composites[J]. Polymers for advanced technologies, 2009, 22: 1824-1831.
- [11] 李慧,崔永岩,范晨曦.纳米二氧化硅微球对 ABS 塑料表面改性的研究[J].塑料科技,2016,44(3):50-53.
- [12] Li Guoliang, Shi Qin, Yuan S J, *et al.* Alternating silica/polymer multilayer hybrid microspheres templates for double-shelled polymer and inorganic hollow microstructures[J]. Chemistry of Materials, 2010, 22: 1309-1317.
- [13] Li Rui, Zhou Tianshu, Pei Jianzhong. Design, preparation and properties of microcapsules containing rejuvenator for asphalt[J]. Construction and Building Materials, 2015, 99: 143-149.
- [14] 鲁涛,赵雁,欧阳的华.含能材料表面分形维数计算及其对摩擦感度影响[J].计算机与应用化学,2014,31(2):226-230. ■