

Krzysztof Formela*¹, Magdalena Cysewska*

Charakterystyka sieciowania, statyczne i dynamiczne właściwości mechaniczne mieszanin kauczuk butadieno-styrenowy/regenerat gumowy**

Przedstawiono wyniki badań wpływu zawartości regeneratu gumowego na charakterystykę procesu wulkanizacji, prowadzonego z użyciem różnych ilości przyspieszaczy, oraz na statyczne i dynamiczne właściwości mechaniczne zwulkanizowanych mieszanin kauczuku butadieno-styrenowego i regeneratu gumowego. Regenerację miazgi gumowej prowadzono w wyciarkarce dwuślimakowej współbieżnej. Wzrost zawartości regeneratu gumowego (10-50 phr) w mieszance wpłynął korzystnie na właściwości mechaniczne otrzymanych wulkanizatów, bez względu na ilość użytych przyspieszaczy. Zastosowanie większej ilości przyspieszaczy wulkanizacji w mieszankach powodowało skrócenie czasu podwulkanizacji oraz optymalnego czasu wulkanizacji. Wulkanizaty mieszanin sieciowanych z dodatkiem mniejszej ilości przyspieszaczy charakteryzowały się niższą temperaturą zeszklenia oraz gorszymi właściwościami mechanicznymi.

Słowa kluczowe: recykling materiałowy, odpady gumowe, regeneracja, kauczuk butadieno-styrenowy, przyspieszacze wulkanizacji

Curing characteristics, static and dynamic mechanical properties of styrene-butadiene rubber/reclaimed rubber blends

The effect of reclaimed rubber and amount of vulcanization accelerators contents on curing characteristic, mechanical properties and dynamic mechanical properties of styrene-butadiene rubber/reclaimed rubber blends were determined. Ground tire rubber was reclaimed by using co-rotating twin screw extruder. Increasing content of reclaimed rubber (10-50 phr) has a positive influence on mechanical properties of obtained vulcanizates, regardless of amount of vulcanization accelerators. Using of higher amount of vulcanization accelerators increased of scorch time and optimal vulcanization time. Blends cured with reduced content of accelerators were characterized by lower glass transition temperature and deterioration of mechanical properties of vulcanizates.

Key words: material recycling, rubber waste, reclaiming, styrene-butadiene rubber, vulcanization accelerators

I. Wstęp

Produkty recyklingu materiałowego odpadów gumowych w postaci miazg oraz regeneratów gumowych są powszechnie stosowane w przemyśle jako nieaktywne napełniacze kompozycji polimerowych lub substytuty mieszanek kauczukowych. Prowadzone obecnie prace badawczo-rozwojowe mają na celu optymalizację składu umożliwiającą osiągnięcie odpowiedniego stosunku ceny do jakości otrzymywanych wyrobów. Efekt ten można osiągnąć poprzez zmniejszenie ilości materiałów pierwotnych stosowanych podczas produkcji oraz ich częściowe zastępowanie poprodukcyjnymi i poużytkowymi surowcami wtórnymi.

* Politechnika Gdańska, Wydział Chemiczny, Katedra Technologii Polimerów

** Konferencja „Elastomery 2013, Nauka i przemysł”, Warszawa 23-25 października 2013.

¹ Autor do korespondencji – e-mail: kformela.ktp@gmail.com

Ismail i współpr. [1] przedstawili wyniki badań wpływu mieszanin miazgi gumowej oraz sadzy (stosowanych jako napełniacze hybrydowe) na właściwości kauczuku naturalnego. Uzyskane wyniki wskazują, że częściowe zastąpienie napełniacza aktywnego miazgą gumową wpływa niekorzystnie na właściwości mechaniczne uzyskanych wulkanizatów.

Carli i współpr. [2, 3] badali wpływ zawartości miazgi gumowej na przebieg wulkanizacji oraz właściwości

Mgr inż. Krzysztof Formela w roku 2010 ukończył studia na Wydziale Chemicznym Politechniki Gdańskiej, gdzie kontynuuje pracę badawczą w ramach rozprawy doktorskiej pt. „Badania wpływu warunków wyciarkania dwuślimakowego na proces termomechanicznej regeneracji odpadów gumowych”. Specjalność – przetwórstwo materiałów polimerowych, technologie recyklingu odpadów polimerowych.



mechaniczne wulkanizatów kauczuku butadieno-styrenowego. Zastosowanie większych ilości miazły gumowej w mieszankach kauczuku SBR wpłynęło na skrócenie czasu podwulkanizacji oraz optymalnego czasu wulkanizacji. Uzyskane wyniki wskazują, że dodatek miazły gumowej w ilości do 50 cz. mas. wpływa nieznacznie na wytrzymałość na rozciąganie oraz wytrzymałość na rozdzieranie otrzymanych wulkanizatów.

Maridass [4] badał wpływ ilości dewulkanizatu na właściwości przetwórcze oraz mechaniczne mieszanin na bazie kauczuku naturalnego i dewulkanizatu gumowego, otrzymanego przy użyciu wyłaczarki dwuślimakowej przeciwbieżnej.

Parasiewicz i współpr. [5] przedstawili wyniki badań wpływu regeneratu gumowego otrzymanego w wyłaczarce dwuślimakowej współbieżnej, na właściwości kauczuku butadieno-styrenowego. Uzyskane wyniki wskazują, że dodatek uzyskanego regeneratu w ilości 17% mas. spowodował pogorszenie właściwości mechanicznych wulkanizatów jedynie o 10% w stosunku do próbki wzorcowej bez dodatku regeneratu gumowego.

De i współpr. badali wpływ regeneratów gumowych otrzymanych metodą mechanochemiczną w obecności przyspieszacza TMTD (disiarczku tetrametylioturamu) [6] na właściwości wulkanizatów na bazie kauczuku naturalnego [7], kauczuku butadieno-styrenowego [8] oraz mieszanin kauczuku naturalnego i butadienowego [9]. Otrzymane wyniki wskazują na korzystny wpływ regeneratów gumowych na właściwości ich mieszanin z elastomerami.

Rattanasom i współpr. [10] scharakteryzowali wpływ zespołów wulkanizujących na właściwości mechaniczne wulkanizatów kauczuku naturalnego, zawierających od 10 do 50 cz. mas. regeneratu gumowego. Podczas badań zastosowano dwa rodzaje zespołów sieciujących: konwencjonalny (stosunek siarki do przyspieszacza 1,75:0,75) oraz efektywny (stosunek siarki do przyspieszacza 0,75:1,75). Autorzy wskazują, że najkorzystniejsze właściwości mechaniczne wulkanizatów można uzyskać stosując system wulkanizujący konwencjonalny.

Guzmán i współpr. [11] badali możliwość zastosowania miazły gumowej jako aktywatora wulkanizacji, w celu zmniejszenia ilości tlenku cynku w mieszance kauczukowej. Na podstawie uzyskanych wyników autorzy pracy sugerują dalsze badania oddziaływań pomiędzy związkami obecnymi w miale gumowym a składnikami dodawanymi do elastomeru.

Prezentowana praca stanowi kontynuację badań własnych w zakresie recyklingu materiałowego odpadów gumowych [12-16]. Celem pracy było określenie wpływu zawartości regeneratu gumowego oraz przyspieszaczy wulkanizacji na przebieg procesu wulkanizacji oraz statyczne i dynamiczne właściwości mechaniczne wulkanizatów mieszanek kauczuku butadieno-styrenowego z regeneratem gumowym. Określenie ww. zależności pozwala na lepsze poznanie zjawiska migracji zespołu sieciującego między osnową elastomerową a regeneratem gumowym.

2. Część doświadczalna

2.1. Materiały

Miazła gumowej (GTR) o wielkości ziaren do 1,5 mm, otrzymany z firmy ABC Recykling z Krosna Odrzańskiego, poddano termomechanicznej dewulkanizacji w wyłaczarce dwuślimakowej współbieżnej EHP 2x20 Sline firmy Zamak Mercator Sp. z o.o. Proces dewulkanizacji termomechanicznej miazły gumowej prowadzono w temperaturze 180°C, przy prędkości obrotowej ślimaków 500 min⁻¹. Charakterystykę miazły gumowej oraz uzyskanego z niego regeneratu gumowego (rGTR) przedstawiono w tabelach 1 i 2. Kauczuk butadieno-styrenowy (SBR) KER 1502 otrzymano z firmy Synthos S.A. Rozpuszczalniki oraz środki sieciujące pochodziły z firmy POCh S.A. oraz z Standard Sp. z o.o.

Tabela 1. Charakterystyka miazły gumowej

Table 1. Characteristics of ground tire rubber

Składnik	Zawartość, % mas.	Metoda oznaczenia
Ekstrakt acetonowy	8,7	PN-92/C04219
Substancje pomocnicze	15,3	TGA
Kauczuki (SBR, NR)	48,7	TGA
Sadza	32,7	TGA

Tabela 2. Charakterystyka miazły gumowej i otrzymanego regeneratu gumowego

Table 2. Characteristics of ground tire rubber and obtained reclaimed rubber

Parametr	GTR	rGTR
Fracja zolu, %	2,3	21,5
Gęstość usieciowania, mol/cm ³ × 10 ⁻⁴	7,94	2,38
Stopień dewulkanizacji, %	-	70
Lepkość Mooneya ML 1+4 (100°C)	-	53

Tabela 3. Mieszaniny SBR/regenerat gumowy o różnej zawartości przyspieszaczy wulkanizacji

Table 3. SBR/reclaimed rubber blends with different vulcanization accelerators contents

Składnik	Skład, phr*							
	100	90	70	50	100	90	70	50
KER 1502	100	90	70	50	100	90	70	50
rGTR	0	10	30	50	0	10	30	50
MBT	0,3	0,3	0,3	0,3	0,6	0,6	0,6	0,6
DPG	0,2	0,2	0,2	0,2	0,4	0,4	0,4	0,4
Charakterystyka wulkanizacji w 160°C								
t ₂ , min	4,0	4,0	4,1	4,0	2,1	2,0	2,8	2,2
t ₉₀ , min	19,8	17,5	17,6	15,5	9,9	9,7	11,1	9,4
ΔM	16,8	15,6	13,9	12,5	18,2	17,5	15,5	14,9
CRI, min ⁻¹	6,3	7,4	7,4	8,7	12,8	13,0	12,0	13,9

* W skład systemu sieciującego wchodziły ponadto, phr: kwas stearynowy 3,0; tlenek cynku 5,0; siarka 2,0

W celu porównania wpływu ilości zastosowanych przyspieszaczy: difenyloguanidyny (DTG) i dimerkaptobenzotiazolu (MBT) oraz otrzymanego regeneratu gumowego na właściwości mieszanin kauczuku butadieno-styrenowego, sporządzono mieszanki gumowe, których skład przedstawiono w tabeli 3. Testowane mieszanki gumowe poddano wulkanizacji w temperaturze 160°C pod ciśnieniem 4,9 MPa w wyznaczonym uprzednio optymalnym czasie wulkanizacji.

2.2. Metodyka badań

Gęstość usieciowania, stopień regeneracji (dewulkanizacji) oraz frakcja zolu

Gęstość usieciowania miążu gumowego oraz regeneratu gumowego oznaczono metodą pęcznienia równowagowego w toluenie (temperatura pokojowa), na podstawie równania Flory'ego-Rehnera [17] (bazując na normie ASTM D 6814, podczas obliczeń pominięto korektę Krausa) (1):

$$v_e = \frac{-[\ln(1-V_r) + V_r + \chi V_r^2]}{[V_1(V_r^{1/3} - V_r)/2]} \quad (1)$$

gdzie: v_e – gęstość usieciowania, mol/cm³; V_r – objętość żelu w spęcznianej próbce; V_1 – objętość molowa rozpuszczalnika, cm³/mol; χ – parametr oddziaływania polimer-rozpuszczalnik, do obliczeń przyjęto $\chi = 0,391$ [18]

Stopień dewulkanizacji określono na podstawie zmian gęstości usieciowania regeneratu gumowego (v_1) w stosunku do miążu gumowego niepoddanego regeneracji termomechanicznej (v_2), zgodnie ze wzorem (2):

$$SD = \frac{v_2 - v_1}{v_2} \times 100 \quad (2)$$

Procentową zawartość frakcji zolu wyznaczono z różnicy mas próbek przed pęcznieniem (W_1) i po usunięciu rozpuszczalnika (W_2), zgodnie ze wzorem (3):

$$\text{Frakcja zolu} = \frac{W_1 - W_2}{W_1} \times 100\% \quad (3)$$

Charakterystyka wulkanizacji

Przebieg wulkanizacji badano w temperaturze 160°C zgodnie z normą PN-ISO 3417:1994. Pomiary prowadzono za pomocą wulkametry z oscylującym rotorem typu R100S firmy Monsanto. Kąt oscylacji rotora wynosił 3°, a zakres momentu skrętnego 0-100 dNm.

Właściwości mechaniczne statyczne

Wytrzymałość na rozciąganie i wydłużenie względne przy zerwaniu otrzymanych wulkanizatów badano zgodnie z normą PN-ISO 37 za pomocą maszyny wytrzymałościowej firmy Zwick model Z020. Twardość Shore'a A oznaczono twardościomierzem firmy Zwick model 3130, zgodnie z normą ISO 7619-1. Pomiar odporności na ścieranie wykonano zgodnie z ISO 4649 za pomocą urządzenia firmy Gibitre Instruments. Elastyczność przy odbiciu metodą Schoba określono zgodnie z ISO 4662,

do pomiarów wykorzystano urządzenie firmy Gibitre Instruments.

Właściwości mechaniczne dynamiczne

Analizę dynamicznych właściwości mechanicznych wykonano za pomocą urządzenia firmy TA Instruments, model DMA Q800. Próbki (o wymiarach 40 × 10 × 2 mm) poddano sinusoidalnie zmiennemu odkształcaniu w trybie jednoosiowego zginania o częstotliwości 1 Hz i przy szybkości narastania temperatury 4°C/min, w przedziale temperatury od -70°C do 40°C.

2.3. Wyniki badań i dyskusja

Charakterystyka regeneratu gumowego

Wyniki badań frakcji zolu, gęstości usieciowania, stopnia dewulkanizacji oraz lepkości Mooneya otrzymanego regeneratu gumowego przedstawiono w tabeli 2. Obniżenie gęstości usieciowania oraz lepkości Mooneya, a także wzrost frakcji zolu i stopnia dewulkanizacji otrzymanego regeneratu gumowego świadczą o zrywaniu wiązań sieciujących podczas dewulkanizacji termomechanicznej miążu gumowego.

Charakterystyka wulkanizacji

Na rys. 1 oraz w tabeli 3 pokazano wpływ zawartości przyspieszaczy wulkanizacji na charakterystykę wulkanizacji mieszanek SBR/regenerat gumowy. Zmniejszenie o połowę ilości przyspieszaczy użytych do wulkanizacji spowodowało dwukrotne wydłużenie czasu podwulkanizacji oraz optymalnego czasu wulkanizacji. Zmniejszenie ilości zastosowanych przyspieszaczy, podobnie jak wzrost zawartości regeneratu gumowego w mieszankach, spowodowały spadek różnicy maksymalnego i minimalnego momentu skrętnego (wartość ΔM), która odpowiada zmianom gęstości usieciowania otrzymanych wulkanizatów [19].

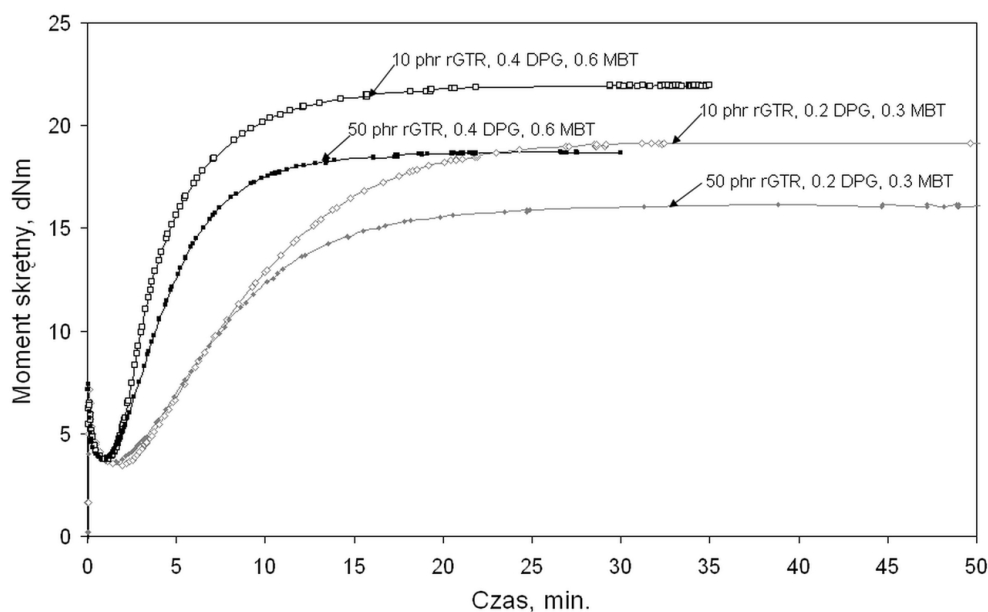
Efektywność zastosowanych systemów sieciujących oceniano na podstawie wskaźnika szybkości wulkanizacji (CRI) wyznaczonego zgodnie ze wzorem [20] (4):

$$CRI = \frac{100}{t_{90} - t_2} \quad (4)$$

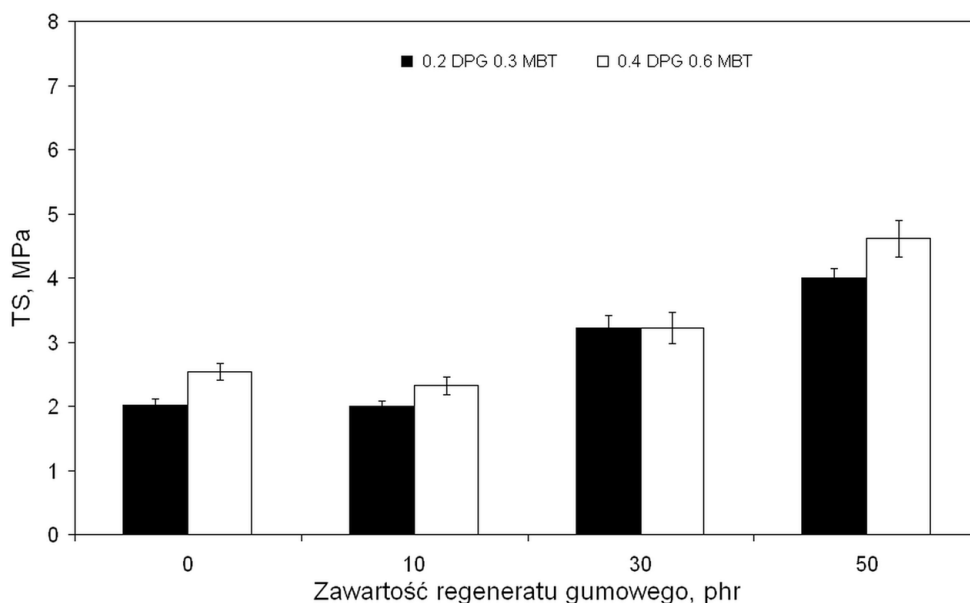
w którym symbole t_{90} i t_2 oznaczają kolejno optymalny czas wulkanizacji oraz czas podwulkanizacji. Jak można było przypuszczać, zastosowanie mniejszych ilości przyspieszaczy wpłynęło na obniżenie wartości CRI. Mieszanki kauczukowe zawierające 50 phr regeneratu gumowego rGTR charakteryzowały się wyższymi wartościami CRI, bez względu na ilość użytego zespołu sieciującego. Efekt ten można tłumaczyć aktywnością pozostałości przyspieszaczy i aktywatorów wulkanizacji [21, 22] oraz obecnością napełniacza aktywnego (sady) w regeneracie gumowym [23].

Właściwości mechaniczne statyczne

Na rys. 2-6 zaprezentowano wyniki badań statycznych właściwości mechanicznych wulkanizatów mieszanek SBR/regenerat gumowy. Wzrost zawartości regeneratu gumowego w mieszankach kauczukowych wpłynął na wzrost wartości wytrzymałości na rozciąganie, wydłużenia przy zerwaniu oraz zużycie ścierne. Wulkani-



Rys. 1. Krzywe wulkametryczne mieszanek gumowych o różnej zawartości regeneratu i przyspieszaczy wulkanizacji
Fig. 1. Vulcammetric curves of rubber compounds with different amount of reclaimed rubber and vulcanization accelerators



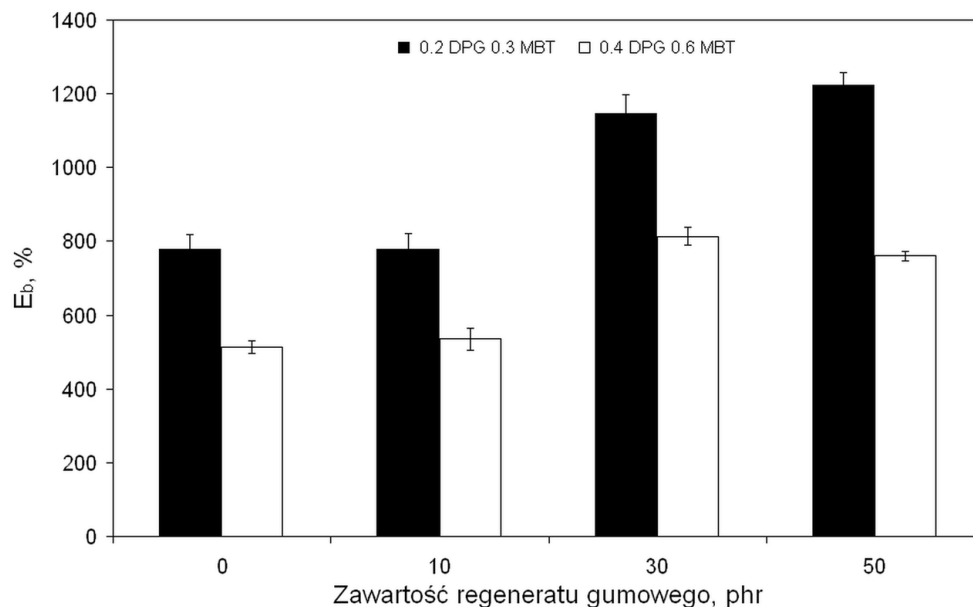
Rys. 2. Wytrzymałość na rozciąganie wulkanizatów kauczuk butadienowo-styrenowy/regenerat gumowy
Fig. 2. Tensile strength of the styrene-butadiene rubber/reclaimed rubber vulcanizates

zaty z większą ilością regeneratu gumowego charakteryzowały się mniejszą twardością oraz mniejszą elastycznością przy odbiciu, co odpowiada obniżeniu ich gęstości usieciowania. Siarkowe zespoły sieciujące o zmniejszonej ilości przyspieszaczy wpłynęły na nieznaczny spadek wytrzymałości na rozciąganie, twardości oraz odbojności otrzymanych wulkanizatów. Zaobserwowano natomiast istotny wpływ zawartości użytych przyspieszaczy na zmiany wydłużenia przy zerwaniu oraz zużycia ściernego. Wartości wydłużenia przy zerwaniu oraz zużycia ściernego wzrastały wraz ze wzrostem zawartości

regeneratu gumowego, co świadczy o niedosieciowaniu wulkanizatów w przypadku zastosowania mniejszej ilości przyspieszaczy. Potwierdzają to również wartości ΔM odczytane z krzywych wulkametrycznych.

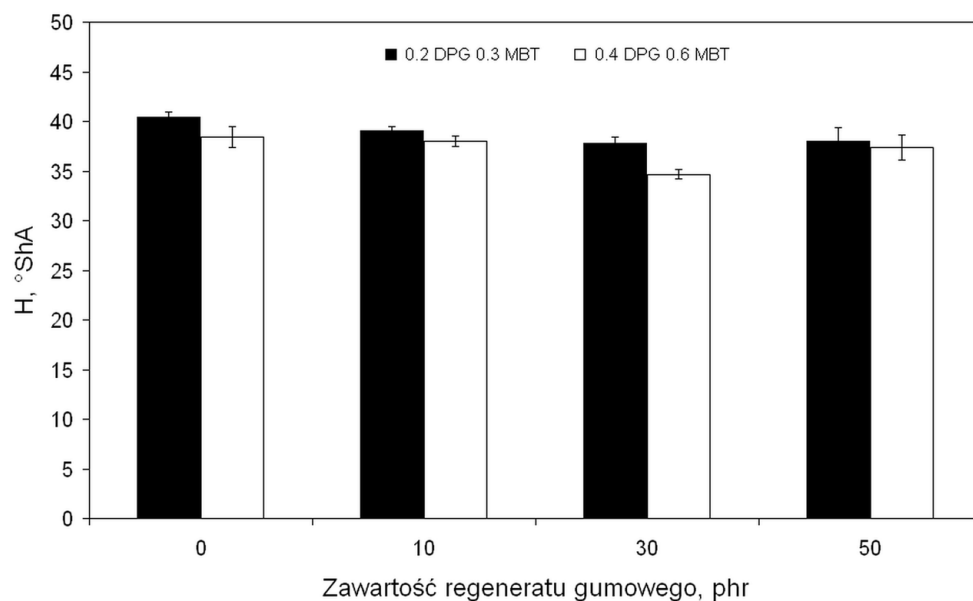
Właściwości mechaniczne dynamiczne

Na rys. 7 przedstawiono wpływ zawartości przyspieszaczy oraz regeneratu gumowego w otrzymanych wulkanizatach na zmiany tangensa stratności w funkcji temperatury. Zwiększenie zawartości regeneratu gumowego powodowało przesunięcie maksimum na krzywych zależności temperaturowych tangensa kąta stratności



Rys. 3. Wydłużenie przy zerwaniu otrzymanych wulkanizatów

Fig. 3. Elongation at break of the vulcanizates



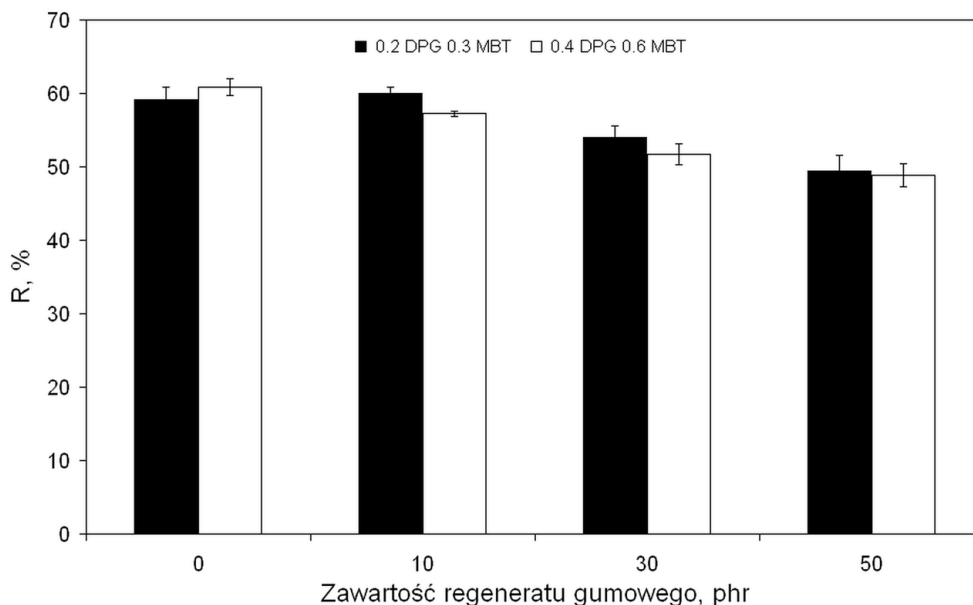
Rys. 4. Twardość otrzymanych wulkanizatów

Fig. 4. Hardness of the vulcanizates

w kierunku niższych temperatur, co wynika z obecności kauczuku naturalnego w miale gumowym [24]. Zaobserwowano również obniżenie pików maksimum na krzywych tangensa kąta stratności, co może być tłumaczone obecnością sadzy, charakteryzującej się małym kątem stratności [25].

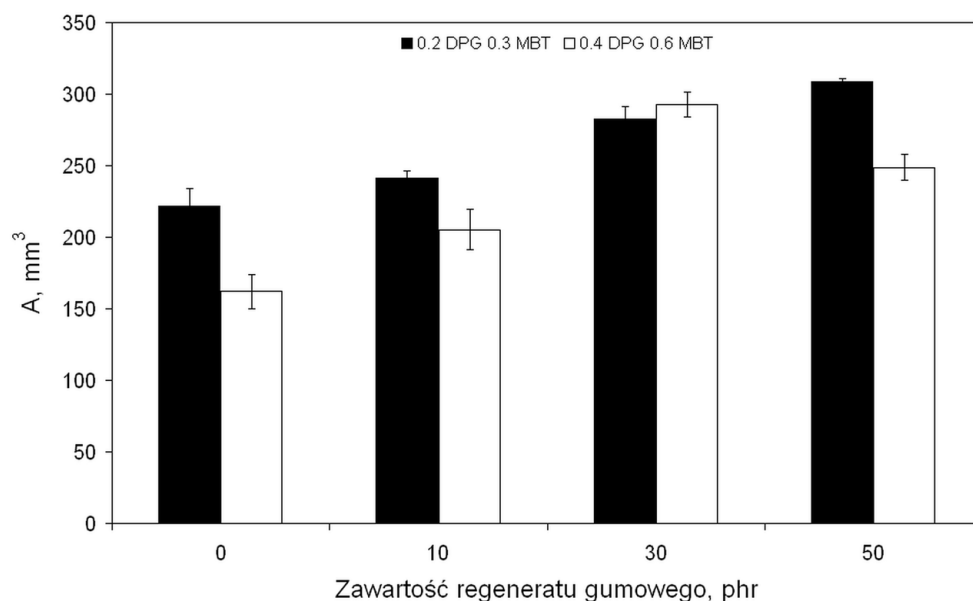
Mniejsza ilość zastosowanych przyspieszczy wpłynęła na przesunięcie maksimum na krzywych zależności temperaturowych tangensa kąta stratności w kierunku niższych temperatur, co świadczy o niedosiecowaniu otrzymanych wulkanizatów. Zaobserwowano, że przesunięcie maksimum było dużo mniejsze (o ok. 2°C) w przy-

padku próbek z 50 phr regeneratu gumowego. Krzywa wulkanizatu kauczuku butadienowego zawierającego 50 phr regeneratu gumowego sieciowanego mniejszą ilością przyspieszczy uległa znacznemu poszerzeniu. Efekt ten może wynikać z mniejszej gęstości usieciowania obu próbek zawierających 50 phr regeneratu (zbyt mała ilość zastosowanych przyspieszczy w stosunku do ilości użytego regeneratu gumowego) w porównaniu z próbkami zawierającymi 10 phr regeneratu. Wnioski te zostały potwierdzone również przez różnice w wartościach parametrów ΔM odczytanych z krzywych wulkametrycznych oraz pomiarów wydłużenia przy zerwaniu.



Rys. 5. Elastyczność przy odbiciu otrzymanych wulkanizatów

Fig. 5. Rebound resilience of the vulcanizates



Rys. 6. Zużycie ścierne otrzymanych wulkanizatów

Fig. 6. Abrasion resistance of the vulcanizates

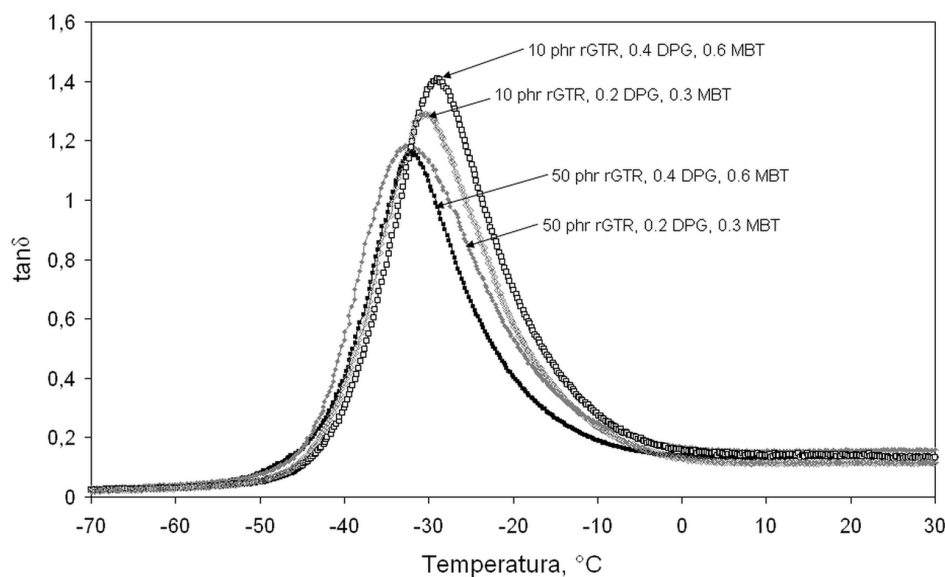
3. Podsumowanie

Uwzględnianie korelacji między zawartością regeneratu gumowego a stosowaną ilością przyspieszaczy wulkanizacji podczas opracowywania receptur mieszanek kauczukowych, oprócz obniżenia kosztów materiałowych umożliwia poprawę jakości otrzymanych produktów, co stanowi istotny czynnik podczas planowania produkcji nowych wyrobów.

Regenerat gumowy, otrzymany metodą termomechaniczną przy użyciu wyłuszczarki dwuślimakowej współ-

bieżnej, wpłynął korzystnie na właściwości przetwórcze oraz mechaniczne mieszanek kauczuku butadieno-styrenowego. Zwiększenie zawartości regeneratu gumowego w mieszankach powodowało wzrost wytrzymałości na rozciąganie, wydłużenia przy zerwaniu, zużycia ściernego oraz spadek twardości i odbojności otrzymanych wulkanizatów.

Zastosowanie o połowę mniejszej ilości przyspieszaczy wulkanizacji spowodowało dwukrotne wydłużenie czasu podwulkanizacji oraz optymalnego czasu wulkanizacji. Zmniejszenie ilości zastosowanych przyspieszaczy wpłynęło również na spadek wartości ΔM , tempera-



Rys. 7. Wpływ zawartości regeneratu oraz przyspieszaczy wulkanizacji na tangens stratności w funkcji temperatury dla otrzymanych wulkanizatów

Fig. 7. Effect of reclaimed rubber and vulcanization accelerators contents on loss tangent as a function of temperature for obtained vulcanizates

tury zeszklenia oraz wzrost wydłużenia przy zerwaniu i zużycia ściernego, co odpowiada obniżeniu gęstości usieciowania otrzymanych wulkanizatów. Mniejsza ilość przyspieszaczy w zespole sieciującym wpłynęła na nieznaczny spadek wytrzymałości na rozciąganie, twardości oraz odbojności otrzymanych wulkanizatów.

Otrzymane rezultaty sugerują potrzebę dalszych badań mających na celu zwiększenie efektywności zespołu sieciującego (ilości użytych środków sieciujących, stosunku siarki do przyspieszaczy) w celu osiągnięcia lepszych właściwości mieszanek zawierających regenerat, co stanowić będzie kontynuację przedstawionych badań.

Praca została wykonana w ramach projektu badawczo-rozwojowego RX-03/46/2011 dofinansowanego przez WFOŚiGW w Gdańsku

Literatura

- Ismail H., Omar N.F., Othman N., *J. Appl. Polym. Sci.* 2011, **121**, 1143.
- Carli L.N., Boniatii R., Teixeira C.E., Nunes R.C.R., Crespo J.S., *Mater. Sci. Eng. C* 2009, **29**, 383.
- Carli L.N., Bianchi O., Mauler R.S., Crespo J.S., *Polym. Bull.* 2011, **67**, 1621.
- Maridass B., *J. Polymer Res.* 2009, **16**, 133.
- Parasiewicz W., Mężyński J., Niciński K., Ostaszewska U., *Elastomery* 2011, **15**, 1, 16.
- De D., Das A., De D., Dey B., Debnath S.C., Roy B.C., *Eur. Polym. J.* 2006, **42**, 917.
- De D., De D., Singharoy G.M., *Polym. Eng. Sci.* 2007, **47**, 1091.
- De D., De D., *Mater. Sci. Appl.* 2011, **2**, 486.
- De D., Panda P.K., Roy M., Bhunia S., *Mater. Design* 2013, **46**, 142.
- Rattanasom N., Poonsuk A., Makmoon T., *Polym. Test.* 2005, **24**, 728.
- Guzmán M., Agulló N., Giese U., Borrós S., *J. Appl. Polym. Sci.* 2013, **130**, 2809.
- Formela K., Haponiuk J., Piszczczyk Ł., Cicholewska P., *Elastomery* 2012, **16**, 15.
- Formela K., Stankiewicz P., Kołacka K., Piszczczyk Ł., Haponiuk J., *Przem. Chem.* 2012, **91**, 1762.
- Formela K., Korol J., Cysewska M., Haponiuk J., *Przem. Chem.* 2013, **92**, 512.
- Formela K., Bogucki M., Stasiak A., Cysewska M., Haponiuk J., *Przem. Chem.* 2013, **92**, 342.
- Formela K., Haponiuk J., Stankiewicz P., Cysewska M., Chojnacka M., *Przem. Chem.* 2012, **91**, 2403.
- Flory P.J., Rehner J., *J. Chem. Phys.* 1943, **11**, 512.
- Marzocca A.J., *Eur. Polymer J.* 2007, **43**, 2682.
- Kim S.W., Park H.Y., Lim J.C., Jeon I.R., Seo K.H., *J. Appl. Polym. Sci.* 2007, **105**, 2396.
- Menon A.R.R., Pillai C.K.S., Nando G.B., *Polymer* 1998, **39**, 4033.
- Gibala D., Hamed G.R., *Rubber Chem. Tech.* 1994, **67**, 636.
- Gibala D., Laohapisitpanich K., Thomas D., Hamed G.R., *Rubber Chem. Tech.* 1996, **69**, 115.
- Formela K., Kołacka K., Stankiewicz P., Haponiuk J., Stasiak A., *Przem. Chem.* 2012, **91**, 1767.
- Lamminmäki J., Li S., Hanhi K., *J. Mater. Sci.* 2006, **41**, 8301.
- Kumnuantip C., Sombatsompop N., *Mater. Lett.* 2003, **57**, 3167.