

Dr. Nikolai I. Šut, Dr. Sergej V. Bagl'juk, Dr. Michail V. Lazorenko und Prof. Dr. Georgij M. Bartenev

## Über zwei Gruppen von Relaxationsübergängen im Polybutadien und seinen Copolymeren oberhalb der Glasstemperatur

Mitteilung aus dem Kiewer staatlichen Pädagogischen Institut „A. M. Gorki“ und dem Institut für physikalische Chemie der Akademie der Wissenschaften der UdSSR/Moskau

*Werte der Konstanten  $c_i$  in der Gleichung für das Maximum der mechanischen Verluste ( $2\pi\nu\tau_i = c_i$ ) werden in der vorliegenden Arbeit für die Relaxationsübergänge zwischen dem  $\alpha$ -Maximum und chemischen Relaxationsprozessen aus Messungen kontinuierlicher und diskreter Relaxationszeitspektren, aus Messungen innerer Reibungsspektren und der Temperaturabhängigkeit der Wärmekapazität bestimmt.*

*Die Relaxationsübergänge werden identifiziert.*

*Aus den Ergebnissen können zwei Gruppen von Relaxationsprozessen abgeleitet werden. Für eine Gruppe beträgt  $c_i \approx 1$ , für die andere  $c_i \sim 10$ ; erstgenannte gehört zu den Prozessen geringer Ausbreitung, die andere zu Prozessen, die in größerem Maßstab ablaufen.*

Relaxationsprozesse in Polymeren werden in Prozesse kleiner und großer Ausdehnung unterteilt [1, 2, 3]. Zum Beispiel ist der  $\beta$ -Relaxationsübergang unterhalb der Glasstemperatur ein Relaxationsübergang geringer Ausbreitung. Er wird mit der Beweglichkeit eines kleinen Abschnitts der Polymerkette

(1 bis 2 Glieder der Kette) erklärt. Der  $\alpha$ -Relaxationsprozeß (Glasübergang) gehört zu den Relaxationsübergängen größerer Ausdehnung, da hierbei das Segment, das 5 bis 10 Glieder der Polymerkette umfaßt, die kinetische Einheit ist. Ein weiterer Unterschied zwischen den beschriebenen Vor-

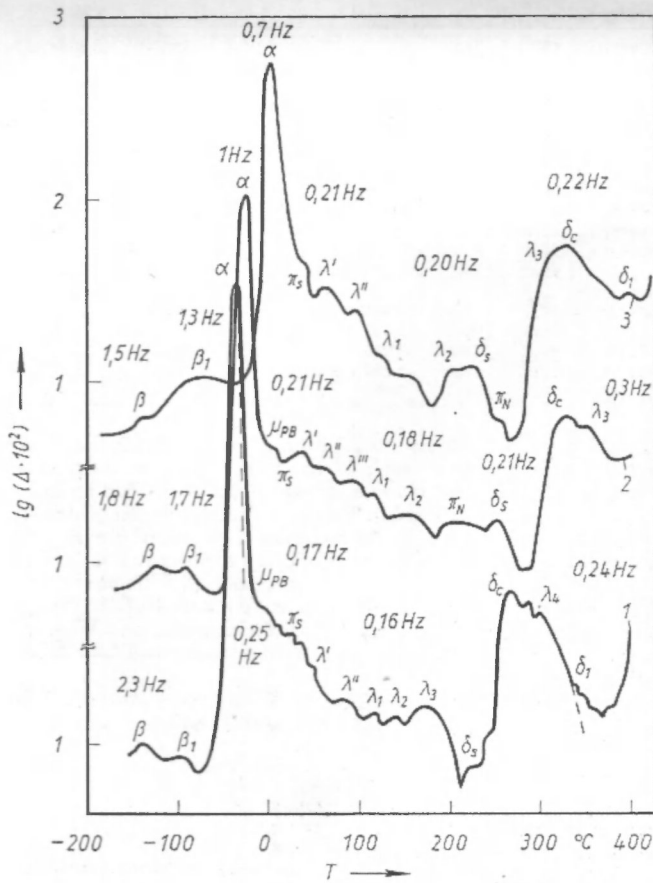


Bild 1. Spektren der inneren Reibung, die mit Hilfe eines Vertikaltorsionspendels an vernetzten Elastomeren gemessen wurden (1 ataktisches Polybutadien SKB, 2 Copolymer SKN-26, 3 Copolymer SKN-50, Die Frequenzen sind an den Kurven vermerkt)

gängen besteht darin, daß beim  $\beta$ -Prozeß eine Elementarbewegung eines Makromolekülabschnitts erfolgt, beim  $\alpha$ -Prozeß dagegen eine kompliziertere kooperative Bewegung eines Makromolekülabschnitts.

Oberhalb der Glastemperatur werden Relaxationsprozesse, die an den fluktuativen Zerfall chemischer Bindungen und den Zerfall lokaler intermolekularer physikalischer Netzpunkte gebunden sind, als Relaxationsprozesse kleiner Ausdehnung bezeichnet. Relaxationsprozesse großer Ausdehnung sind die  $\lambda$ - und  $\delta_1$ -Relaxationsübergänge.

Wenn die Parameter des Relaxationsvorgangs (Aktivierungsenergie  $U_i$  und der Koeffizient  $B_i$ ) in der Boltzmann-Arrhenius-Gleichung für die Relaxationszeit

$$\tau_i = B_i \exp\left(\frac{U_i}{R \cdot T}\right) \quad (1)$$

bekannt sind, können die entsprechenden Temperaturen  $T_i$  des Maximums der mechanischen Verluste in den Spektren der inneren Reibung berechnet werden. Dafür muß der Wert der Konstante  $c_i$  bekannt sein, die die bekannte Bedingung für das Maximum der mechanischen Verluste darstellt:

$$2\pi \nu \tau_i = c_i \quad (2)$$

Aus Gleichung (1) und (2) kann die Temperatur  $T_i$  bei gegebener Frequenz  $\nu$  berechnet werden:

$$T_i = \frac{U_i}{2,3 K} \left| \lg\left(\frac{c_i}{2\pi \nu B_i}\right) \right| \quad (3)$$

Da die Konstante  $c_i$  bisher nur für den  $\alpha$ -Prozeß und für chemische Relaxationsprozesse bekannt ist ( $\delta_c, \delta_s$ ) [1, 2, 4] (für den  $\alpha$ -Prozeß ist  $c_i \approx 10$ , für  $\delta_c$ - und  $\delta_s$ -Prozesse ist  $c_i \approx 1$ ), ist es das Ziel der vorliegenden Arbeit, die  $c_i$ -Werte für Relaxationsübergänge zu bestimmen, die zwischen dem  $\alpha$ -Maximum und den chemischen Relaxationsvorgängen liegen (Bild 1).

Es wurden die kontinuierlichen und diskreten Relaxationszeitspektren, die Spektren der inneren Reibung und die Wärmekapazität von ataktischem Polybutadien (Marke SKB) in 34% 1,4- und 66% 1,2-Anteilen sowie dessen Copolymere untersucht, die 26 bzw. 50% Acrylnitrilgruppen enthalten (SKN-26, SKN-50). Des weiteren wurden gering ver-

Tabelle 1. Konstanten der Relaxationsprozesse  $U_i$  und  $B_i$  für Polybutadien und seine Copolymere mit Acrylnitril, die aus Spannungsrelaxationsuntersuchungen und Spektren der inneren Reibung ermittelt wurden

Relaxationsübergang	Ataktisches Polybutadien			Butadien-Acrylnitril-Copolymer			SKN-50		
	$B_i$ in s ( $\pm 20\%$ )	$U_i$ in kJ/mol ( $\pm 2$ )	$\tau_i$ in s ( $T = 300$ K)	$B_i$ in s ( $\pm 20\%$ )	$U_i$ in kJ/mol ( $\pm 2$ )	$\tau_i$ in s ( $T = 300$ K)	$B_i$ in s ( $\pm 20\%$ )	$U_i$ in kJ/mol ( $\pm 2$ )	$\tau_i$ in s ( $T = 300$ K)
$\mu_{PB}$	$1,1 \cdot 10^{-10}$ $1,0 \cdot 10^{-10}$	51,5 51,5	$1,0 \cdot 10^{-1}$	$1,1 \cdot 10^{-10}$ $1,1 \cdot 10^{-10}$	51,5 51,5	$1,0 \cdot 10^{-1}$	$1,1 \cdot 10^{-10}$ —	51,5 —	$1,0 \cdot 10^{-1}$
$\pi_5$	$1,0 \cdot 10^{-11}$ $1,0 \cdot 10^{-11}$	63 63	$9,4 \cdot 10^{-1}$	$1,0 \cdot 10^{-11}$ $0,95 \cdot 10^{-11}$	63 63	$9,4 \cdot 10^{-1}$	$1,0 \cdot 10^{-11}$ —	63 —	$9,4 \cdot 10^{-1}$
$\lambda'$	$5,0 \cdot 10^{-8}$ $4,8 \cdot 10^{-8}$	50 50	$2,6 \cdot 10^1$	$3,0 \cdot 10^{-10}$ $2,9 \cdot 10^{-10}$	60 60	8,5	$4,0 \cdot 10^{-10}$ $4,4 \cdot 10^{-10}$	60 60	$1,1 \cdot 10^1$
$\lambda''$	$4,0 \cdot 10^{-7}$ $4,0 \cdot 10^{-7}$	50 50	$2,0 \cdot 10^2$	$3,1 \cdot 10^{-9}$ $2,9 \cdot 10^{-9}$	60 60	$8,8 \cdot 10^1$	$4,0 \cdot 10^{-9}$ $3,5 \cdot 10^{-9}$	60 60	$1,1 \cdot 10^2$
$\lambda'''$	—	—	—	$4,2 \cdot 10^{-8}$ $4,3 \cdot 10^{-8}$	60 60	$1,2 \cdot 10^3$	—	—	—
$\lambda_1$	$1,0 \cdot 10^{-6}$ $1,1 \cdot 10^{-6}$	50 50	$5,1 \cdot 10^3$	$2,2 \cdot 10^{-7}$ $1,8 \cdot 10^{-7}$	60 60	$6,2 \cdot 10^3$	$1,3 \cdot 10^{-7}$ $1,0 \cdot 10^{-7}$	60 60	$3,7 \cdot 10^3$
$\lambda_2$	$4,5 \cdot 10^{-6}$ $4,2 \cdot 10^{-6}$	50 50	$2,3 \cdot 10^3$	$2,0 \cdot 10^{-6}$ $1,4 \cdot 10^{-6}$	60 60	$5,7 \cdot 10^4$	$2,2 \cdot 10^{-6}$ $2,1 \cdot 10^{-6}$	60 60	$6,2 \cdot 10^4$
$\lambda_3$	$3,2 \cdot 10^{-5}$ $2,9 \cdot 10^{-5}$	50 50	$1,6 \cdot 10^4$	$7,0 \cdot 10^{-5}$ $6,1 \cdot 10^{-5}$	60 60	$2,0 \cdot 10^6$	$4,5 \cdot 10^{-5}$ $3,2 \cdot 10^{-5}$	60 60	$1,3 \cdot 10^6$
$\pi_N$	—	—	—	$1,0 \cdot 10^{-10}$ $1,1 \cdot 10^{-10}$	92 92	$1,1 \cdot 10^6$	$1,0 \cdot 10^{-9}$ $1,1 \cdot 10^{-9}$	88 88	$2,1 \cdot 10^6$
$\delta_1$	$2,8 \cdot 10^{-7}$ —	86 —	$2,7 \cdot 10^8$	$3,5 \cdot 10^{-5}$ —	67 —	$1,6 \cdot 10^7$	$3,5 \cdot 10^{-5}$ —	67 —	$1,6 \cdot 10^7$
$\delta_5$	$6,6 \cdot 10^{-14}$ $7,0 \cdot 10^{-14}$	126 126	$5,9 \cdot 10^8$	$6,6 \cdot 10^{-10}$ $8,3 \cdot 10^{-14}$	126 126	$5,9 \cdot 10^8$	$6,6 \cdot 10^{-14}$ $6,5 \cdot 10^{-14}$	126 126	$5,9 \cdot 10^8$
$\delta_0$	$3,3 \cdot 10^{-14}$ $3,3 \cdot 10^{-14}$	140 139	$8,1 \cdot 10^{10}$	$3,3 \cdot 10^{-14}$ $3,4 \cdot 10^{-14}$	142 144	$1,8 \cdot 10^{11}$	$3,3 \cdot 10^{-14}$ $3,3 \cdot 10^{-14}$	152 151	$9,9 \cdot 10^{12}$

Bemerkung: Die Werte über dem Bruchstrich beziehen sich auf Spannungsrelaxationsuntersuchungen, darunter auf die Spektren der inneren Reibung

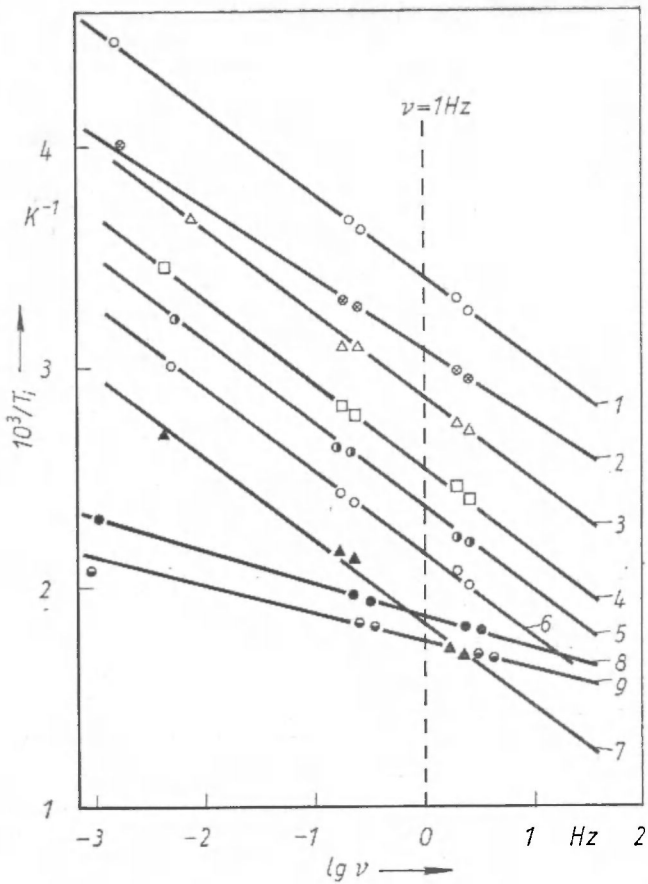


Bild 2. Abhängigkeit der Temperatur der Relaxationsübergänge von der Frequenz für ataktisches Polybutadien SKB (1  $\mu_{PB}$ , 2  $\pi_s$ , 3  $\lambda'$ , 4  $\lambda''$ , 5  $\lambda_1$ , 6  $\lambda_2$ , 7  $\lambda_3$ , 8  $\delta_s$ , 9  $\delta_c$ )

netzte Proben untersucht, die als Standardrezeptur mit 2% Schwefel vulkanisiert wurden.

Die inneren Reibungsspektren wurden in einem Temperaturbereich von  $-170 \dots -450^\circ\text{C}$  auf einem horizontalen und einem vertikalen Torsionspendel gemessen. Die Temperaturabhängigkeit der Wärmekapazität wurde dynamisch ermittelt [5].

Die intensivsten Relaxationsübergänge der Spektren (Bild 1) sind das  $\alpha$ -Maximum und das Maximum der  $\delta_c$ -Relaxation. Deshalb ruft ihre Bestimmung keine Zweifel hervor. Die Berechnung der Temperaturen  $T_i$  nach Gleichung (3) zeigt die Übereinstimmung mit den Temperaturen dieser Maxima in den Spektren der inneren Reibung.

Aus Spannungsrelaxationsmessungen an Polybutadienproben und den Copolymeren SKN-26 sowie SKN-50 [6, 7] folgt, daß oberhalb der Glasstemperatur 13 Relaxationsübergänge auftreten (Tabelle 1); dabei wird jeder Relaxationsübergang durch bestimmte Relaxationsparameter  $B_i$  und  $U_i$  charakterisiert. Diese Parameter werden zu weiteren Berechnungen genutzt.

Unmittelbar oberhalb der Glasstemperatur  $T_G$  werden zwei Relaxationsprozesse beobachtet:  $\mu_{PB}$ , der mit dem Zerfall physikalischer Netzknotenpunkte, die durch die Wechselwirkung der Seitengruppen  $-\text{CH}=\text{CH}_2$  der 1,2-Kettenabschnitte des Butadiens gebildet werden, in Verbindung steht, und der  $\pi_s$ -Relaxationsübergang.

Dieser Relaxationsprozeß ist auf den Zerfall von intermolekularen Dipol-Dipol-Bindungen zurückzuführen, die sich zwischen Kettenabschnitten mit intramolekular gebundenem Schwefel ausbilden.

Im Temperaturbereich zwischen den genannten und den chemischen Relaxationsprozessen existiert eine Reihe langsamer physikalischer Relaxationsprozesse, zu denen vor allem die Gruppe der  $\lambda$ -Übergänge gehört, die den Zerfall kleiner physikalischer Netzknotenpunkte des molekularen Netzwerks widerspiegelt. Bekanntlich sind diese Netzknotenpunkte verschiedenartige Assoziate gebundener Kettensegmente unterschiedlicher Lebensdauer [1, 2].

Der extrem langsame physikalische  $\delta_1$ -Relaxationsprozeß wird nur bei vernetzten Elastomeren beobachtet und ist mit Mikroinhomogenitäten des Vulkanisationsnetzwerks erklär-

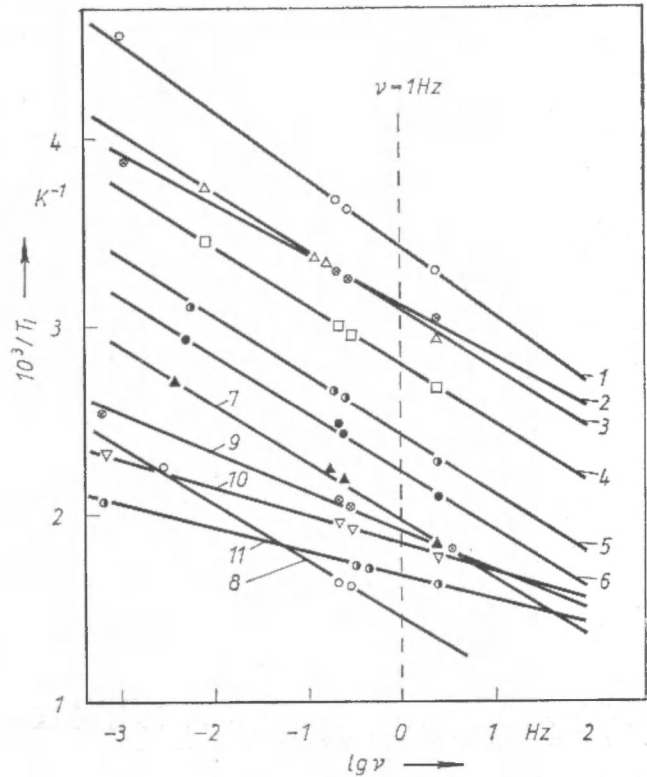


Bild 3. Abhängigkeit der Temperatur der Relaxationsübergänge von der Frequenz für das Copolymer SKN-26 (1  $\mu_{PB}$ , 2  $\pi_s$ , 3  $\lambda'$ , 4  $\lambda''$ , 5  $\lambda'''$ , 6  $\lambda_1$ , 7  $\lambda_2$ , 8  $\lambda_3$ , 9  $\pi_N$ , 10  $\delta_s$ , 11  $\delta_c$ )

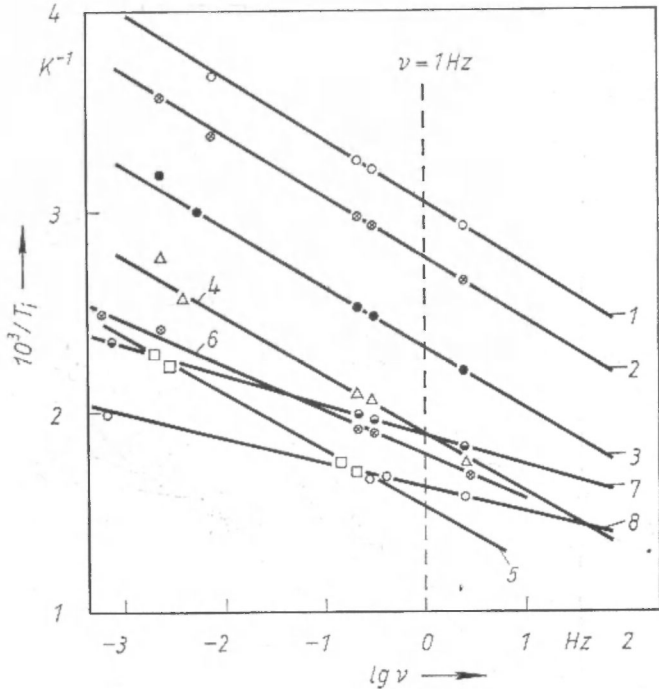


Bild 4. Abhängigkeit der Temperatur der Relaxationsübergänge von der Frequenz für das Copolymer SKN-50 (1  $\lambda'$ , 2  $\lambda''$ , 3  $\lambda_1$ , 4  $\lambda_2$ , 5  $\lambda_3$ , 6  $\pi_N$ , 7  $\delta_s$ , 8  $\lambda_c$ )

bar (d. h. mit der Beweglichkeit der Bereiche hoher Vernetzungsdichte).

In [9] wurde ein für Butadienacrylnitrilelastomere spezifischer  $\pi_N$ -Relaxationsprozeß gefunden. Dieser Prozeß ist an den Zerfall von intermolekularen Dipol-Dipol-Bindungen gebunden, die von polaren CN-Gruppen in den Nitrilabschnitten der Copolymeren gebildet werden.

Die zwei Hochtemperaturrelaxationsübergänge sind chemische Relaxationsvorgänge: Der  $\delta_s$ -Prozeß ist an den Zerfall von Schwefelbrückenbindungen des Vulkanisationsnetzwerks gebunden, der  $\delta_c$ -Prozeß dagegen an den Zerfall schwacher C—C-Bindungen der Polymermoleküle.

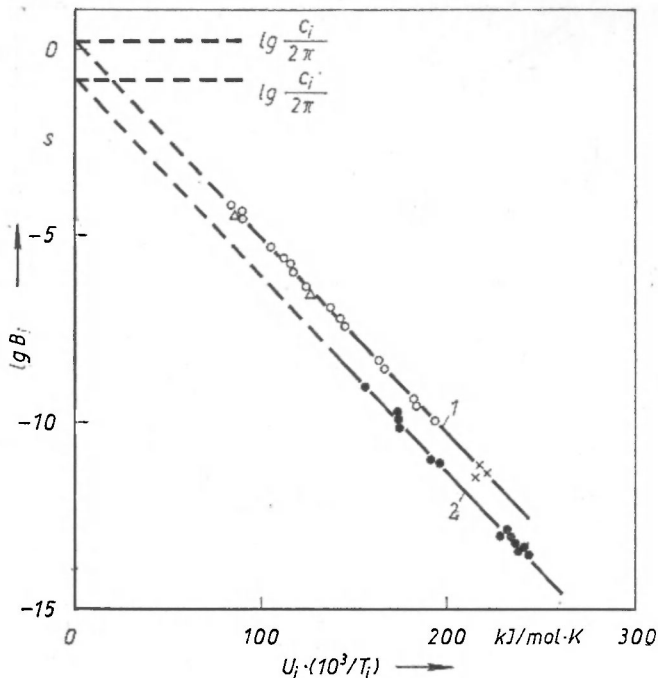


Bild 5. Der Gleichung (4) entsprechende Abhängigkeiten [1 Gruppe der Relaxationsübergänge geringer Ausdehnung  $\mu_{PB}$ ,  $\pi_s$ ,  $\pi_N$ ,  $\delta_s$ ,  $\delta_c$ , 2 Gruppe der Relaxationsübergänge größerer Ausdehnung  $\alpha$  ( $\times$ ),  $\lambda$  ( $\circ$ ),  $\delta_1$  ( $\Delta$ )]

Um die zwischen dem  $\alpha$ -Maximum und dem  $\delta_c$ -Prozeß liegenden Relaxationsvorgänge zu identifizieren (Bild 1), wurden in der vorliegenden Arbeit die Relaxationszeiten  $\tau_i$  bei 300 K nach Gleichung (1) berechnet (Tabelle 1). Es ist erkennbar,

daß der  $\mu_{PB}$ -Prozeß am schnellsten abläuft, danach folgen der  $\pi_s$ -Vorgang und die Gruppe der  $\lambda$ -Übergänge.

Entsprechend ergibt sich in den inneren Reibungsspektren, daß der  $\mu_{PB}$ -Prozeß am nächsten beim  $\alpha$ -Maximum liegt, danach folgen der  $\pi_s$ -Übergang und die Gruppe der  $\lambda$ -Übergänge bis einschließlich  $\lambda_2$  und für Polybutadien bis einschließlich  $\lambda_3$ .

Anschließend werden die  $c_i$ -Werte der Relaxationsübergänge bestimmt. Dafür wird die Abhängigkeit der reziproken Temperatur der Relaxationsübergänge  $10^3/T_i$  vom Logarithmus der Frequenz  $\lg \nu$  aufgetragen, die aus den Werten der inneren Reibungsspektren ermittelt wurde (Bild 2, 3, 4). Aus Gleichung (3) folgt für die Frequenz  $\nu = 1$  Hz die Gleichung (4):

$$\lg B_i = \lg \frac{c_i}{2\pi} - \frac{U_i}{2,3 K T_i} \quad (4)$$

Diese Gleichung kann zur Bestimmung der  $c_i$ -Werte genutzt werden;  $B_i$  und  $U_i$  werden aus Spannungsrelaxationsuntersuchungen bestimmt (Tabelle 1). Somit sind in Gleichung (4)  $c_i$  und  $T_i$  unbekannt. Die Übergangstemperaturen  $T_i$  werden aus den Spektren der inneren Reibung bei einer Frequenz von 1 Hz bestimmt (Bild 2, 3, 4).

Die Ergebnisse sind für die Relaxationsübergänge im Bild 5 dargestellt. Für die Relaxationsübergänge kleiner Ausdehnung ( $\mu_{PB}$ - $\pi_s$ - $\delta_c$ -Übergänge) ergibt sich die Gerade 1, für Relaxationsübergänge größerer Ausdehnung [ $\lambda'$ ,  $\lambda''$ ,  $\lambda'''$ ,  $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$  sowie  $\lambda_3$  (für Polybutadien)] die Gerade 2. Die Extrapolation dieser Geraden auf die Ordinatenachse führt zu  $c_i$ -Werten von 1 und 10. Zur Gerade 2 gehören auch die Werte für die  $\alpha$ -Übergänge.

Der  $\delta_s$ -Übergang hat für alle schwefelvernetzten Elastomere die gleiche Aktivierungsenergie  $U_i$  und den gleichen prä-exponentiellen Faktor (Tabelle 1). Er gehört wie der  $\delta_c$ -Übergang zu den Relaxationsübergängen geringer Ausdehnung mit  $c_i \approx 1$ . Die Berechnung der Temperatur des Relaxationsübergangs nach Gleichung (3) führt zur Identifizierung der

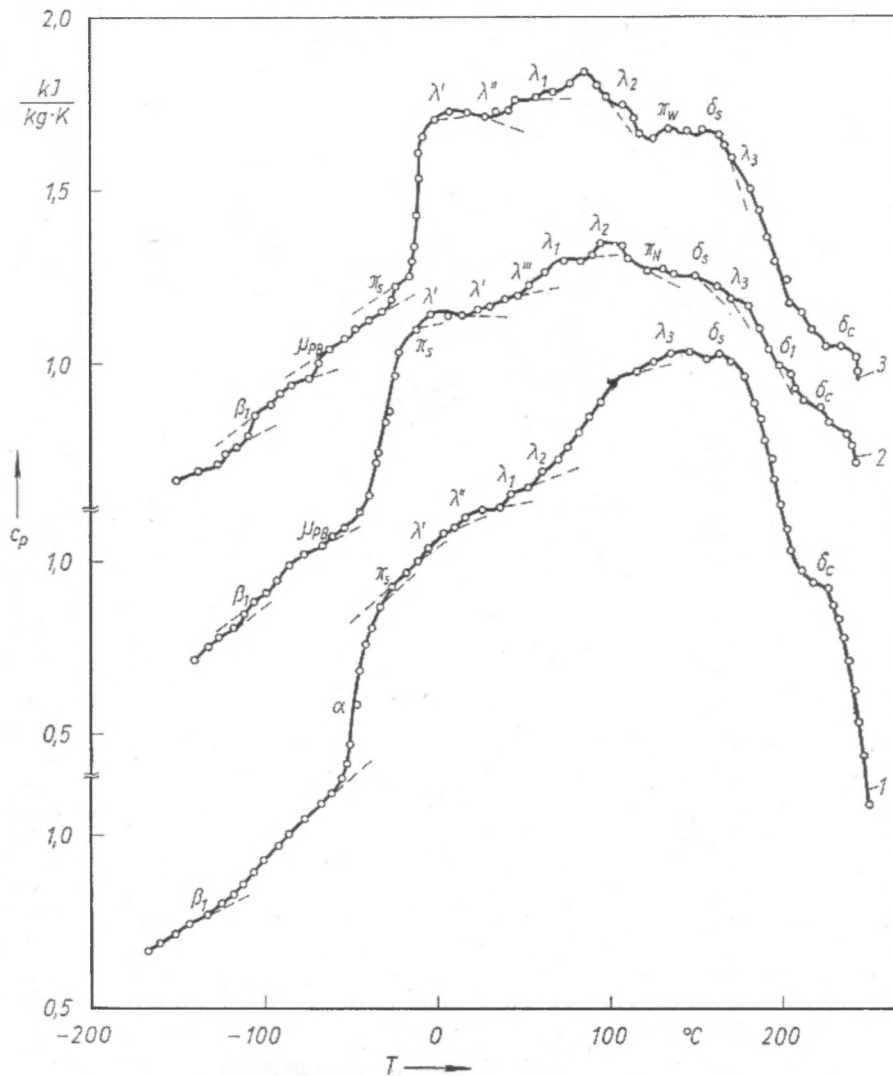


Bild 6. Temperaturabhängigkeit der Wärmekapazität  $c_p$  vernetzter Elastomere (1 ataktisches Polybutadien SKB, 2 Copolymer SKN-20, 3 Copolymer SKN-50) Die Aufheizgeschwindigkeit  $w$  ist konstant. Für SKB betrug sie 4,2 K/min (unterhalb von 0°C) und  $w = 3,5$  K/min (oberhalb von 0°C). Für die anderen Polymere betrug  $w = 3$  K/min im gesamten Temperaturbereich.

entsprechenden  $\delta_s$ -Maxima in den Spektren der inneren Reibung (Bild 1).

Der  $\lambda_3$ -Relaxationsprozeß der Copolymere kann in Analogie zu anderen  $\lambda$ -Prozessen zu den Übergängen größerer Ausdehnung gerechnet und in den Spektren der inneren Reibung bei  $c_i \approx 10$  identifiziert werden (Bild 1).

Das für Copolymere verbleibende Maximum zwischen dem  $\lambda_2$ - und dem  $\delta_c$ -Übergang ist der  $\pi_N$ -Relaxationsprozeß. Aus Bild 3 und 4 wird die Übergangstemperatur bei  $\nu = 1$  Hz bestimmt. Daraus ergibt sich, daß die Parameter für den  $\pi_N$ -Übergang auf der Geraden 1 liegen. Folglich gehört der  $\pi_N$ -Übergang zu den Relaxationsübergängen kleiner Ausdehnung.

Tabelle 1 ist zu entnehmen, daß der präexponentielle Faktor für Relaxationsübergänge kleiner Ausdehnung im Bereich von  $10^{-10}$  bis  $10^{-14}$  liegt, der für größere Ausdehnung im Bereich von  $10^{-4}$  bis  $10^{-10}$  s.

Da der  $\delta_1$ -Übergang einen  $B_i$ -Wert von  $10^{-5}$  bis  $10^{-7}$  aufweist, gehört er zu den Relaxationsübergängen größerer Ausdehnung. Die bei  $c_i \approx 10$  berechnete Übergangstemperatur stimmt mit entsprechenden Maxima in den Spektren der inneren Reibung überein (Bild 1).

Für die untersuchten Elastomere wurde außerdem die Temperaturabhängigkeit der Wärmekapazität bei gegebener Aufheizgeschwindigkeit  $w$  gemessen. Den einzelnen Sprüngen in der Wärmekapazität entsprechen die Relaxationsübergänge (Bild 6).

Nach der in [10] dargelegten Methode können die Temperaturen der Strukturübergänge nach Gleichung (3) berechnet werden, wenn die äquivalente Frequenz bekannt ist:

$$\nu_{\text{äq}} = \frac{w}{2\pi} \frac{c_i}{c_0} \quad (5)$$

Die Konstante  $c_i$  wird nach der Formel von Vol'kenstein und Ptyzin berechnet:

$$c_0 = \frac{K T_i^2}{U_i} \quad (6)$$

Die berechneten Temperaturen  $T_i$  der Strukturrelaxationsübergänge bei den entsprechenden äquivalenten Frequenzen stimmen im niederfrequenten Bereich gut mit den entsprechenden Geraden (Bild 2, 3, 4) überein.

Aus diesen Geraden können nach Gleichung (7)

$$\frac{1}{T_i} = \frac{2,3 K}{U_i} \lg \frac{c_i}{2\pi B_i} \quad (7)$$

unabhängig von den Untersuchungsergebnissen zur Spannungsrelaxation die Werte  $U_i$  und  $B_i$  bestimmt werden, die gut mit den aus Spannungsrelaxationsmessungen ermittelten Werten übereinstimmen (Tabelle 1).

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß die Relaxationsprozesse im Polybutadien und seinen Copolymeren mit Acrylnitril in zwei Gruppen zu unterteilen sind; die eine Gruppe umfaßt Relaxationsprozesse geringer Ausdehnung mit einem  $c_i$ -Wert von  $\approx 1$  und die andere Relaxationsprozesse größerer Ausdehnung mit einem  $c_i$ -Wert von  $\approx 10$ .

Die Größe der kinetischen Einheiten bei Relaxationsprozessen geringer Ausdehnung ist mit den zwischenmolekularen Abständen vergleichbar. Die Bewegung größerer Ausdehnung umfaßt die Bewegung großer Abschnitte der Molekülkette (Segmente) und einzelner Mikrostrukturen, die eine große Zahl von Segmenten umfassen. Dennoch bildet das Segment bei allen Bewegungen größerer Ausdehnung in dieser oder jener Form die relevante kinetische Einheit.

## Literatur

- [1] Bartenev, G. M.: *Struktura i relaksacionnye svojstva elastomeroev*, Moskau, Chimija, 1979
- [2] Bartenev, G. M.; Zelenev, Ju. V.: *Physik der Polymere*, Leipzig, VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, 1979
- [3] Gotlib, Yu. Ya.: in *Relaxation Phenomena in Polymers* (Herausgeber: G. M. Bartenev, Ju. V. Zelenev), New York, Wiley, 1974, S. 1 bis 16
- [4] Bartenev, G. M.; Zajceva, V. D.: *Vysokomol. soed.* 1 (1959) S. 1309
- [5] Godovskij, Ju. K.; Bardkij, Ju. P.: *Plast. massy*, 1965, Nr. 7, S. 12
- [6] Bartenev, G. M.; Tulinova, V. V.; Razumovskaja, I. V.: *Vysokomol. soed.* A 27 (1985) Nr. 9, S. 1910
- [7] Bartenev, G. M.; Tulinova, V. V.; Sinicyna, G. M.: *Plaste u. Kautschuk* 34 (1987) Nr. 11, S. 409 bis 411
- [8] Bartenev, G. M.; Tulinova, V. V.: *Acta Polymerica* 38 (1987) Nr. 9, S. 527
- [9] Bartenev, G. M.; Ljalina, N. M.: *Plaste u. Kautschuk* 24 (1977) S. 477
- [10] Bartenev, G. M.; Dusenko, V. P.; Šut, N. I.; Lazorenko, M. V.: *Vysokomol. soed.* A 27 (1985) Nr. 2, S. 405

(eingegangen am 23. April 1987)

PKA 295