聚苯醚泡沫材料γ辐射-压缩耦合老化行为与机理

豆睿扬[1] 张祎茜[1] 金碧辉[2] 黄 玮[1] 李光宪[2]
龚鹏剑[2] 雷雅杰[3] 刘 强[1] 陈洪兵[1]

[1]（中国工程物理研究院核物理与化学研究所 绵阳 621900）

[2]（四川大学高分子科学与工程学院 高分子材料工程国家重点实验室 成都 610065）

[3]（中国工程物理研究院化工材料研究所 绵阳 621900）

摘要 本文系统开展了两种密度的聚苯醚（PPO）材料在γ辐射（0~1 kGy）和压缩（3%压缩率）耦合作用下的老化实验，研究了吸收剂量和压缩对PPO泡沫材料力学性能、热稳定性、导热性能、表面形貌及化学结构的影响，并利用气体红外光谱揭示了其辐射释放气体的种类及产量。结果表明，γ辐射-压缩耦合老化后PPO泡沫材料弹性模量和导热系数显著增加，样品表层孔结构的坍塌与永久变形是导致这一结果的关键；老化前后样品内部自由基类型和表面官能团结构均无明显变化，样品内部残余自由基浓度由辐射化学过程和吸收剂量所控制；PPO在O_2/N_2气氛下辐解产生CO_2、CO与烷烃，并且受永久变形影响，相对于单独γ辐射老化条件，PPO泡沫材料辐射-压缩老化后CO_2产量略微降低。研究结果对PPO泡沫材料γ辐射-压缩老化机理与服役寿命的评估具有重要意义。

关键词 聚苯醚泡沫，γ辐射-压缩耦合老化，力学性能，永久变形，辐解释气，老化机理

中图分类号 O631.3$^+$3

DOI: 10.11889/j.1000-3436.2024-0100

CSTR: 32195.14.j.JRRRP.1000-3436.2024-0100

引用该文：

豆睿扬, 张祎茜, 黄玮, 等. 聚苯醚泡沫材料γ辐射-压缩耦合老化行为与机理[J]. 辐射研究与辐射工艺学报, 2024, **42**(6): 060207. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2024-0100.

DOU Ruiyang, ZHANG Yiqian, JIN Bihui, *et al*. The aging behavior and mechanism of polyphenylene oxide foams in gamma radiation-compression environments[J]. Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 2024, **42**(6): 060207. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2024-0100.

The aging behavior and mechanism of polyphenylene oxide foams in gamma radiation-compression environments

DOU Ruiyang[1] ZHANG Yiqian[1] JIN Bihui[2] HUANG Wei[1] LI Guangxian[2] GONG Pengjian[2]
LEI Yajie[3] LIU Qiang[1] CHEN Hongbing[1]

[1](*Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*)

基金资助：国家自然科学基金（U2230202, 52103131）、中国工程物理研究院院长基金(YZJJZQ2022005)

第一作者：豆睿扬，男，1999年6月出生，中国工程物理研究院博士研究生在读

通信作者：刘强，副研究员，E-mail: forliubinqiang@163.com；陈洪兵，研究员，E-mail: hongbing2014@foxmail.com

收稿日期：初稿 2024-10-31；修回 2024-12-04

Supported by National Natural Science Foundation of China (U2230202, 52103131) and Presidential Foundation of CAEP (YZJJZQ2022005)

First author: DOU Ruiyang (male) was born in June 1999. Now he is a graduated student at China Academy of Engineering Physics

Corresponding author: LIU Qiang, associate professor, E-mail: forliubinqiang@163. com; CHEN Hongbing, professor, E-mail: hongbing2014@foxmail.com

Received 31 October 2024; accepted 04 December 2024

[2](*State Key Laboratory of Polymer Materials Engineering, College of Polymer Science and Engineering, Sichuan University, Chengdu 610065, China*)

[3](*Institute of Chemical Materials, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*)

ABSTRACT This study examines the changes in properties and aging mechanisms of polyphenylene oxide (PPO) foams under two densities when subjected to combined γ-radiation (0 – 1 kGy) and 3% compression. The investigation focuses on the effects of absorbed dose and compression on various characteristics, including the mechanical properties, thermal stability, thermal conductivity, surface morphology, and chemical structure of PPO foams. The types and yields of gases released during radiation exposure are revealed using gas-phase infrared spectroscopy. The results showed that the collapse and permanent deformation of the surface pore structure in PPO foams following γ radiation and compression aging significantly contribute to increase in elastic modulus and thermal conductivity. No significant changes were observed in the internal radicals or surface functional group structures of the samples before and after aging. The concentration of residual radicals within the samples was influenced by radiation-induced chemical changes and the absorbed dose. Upon radiation exposure and subsequent aging in an O_2/N_2 atmosphere, PPO foams emited CO_2, CO, and alkanes. In addition, the CO_2 yield of PPO foams after radiation-compression aging was slightly reduced due to the permanent deformation caused by compression, compared to γ-radiation aging alone. These findings hold significant value for the evaluation of γ-radiation – compression aging mechanisms and the lifespan of PPO foams.

KEYWORDS Polyphenylene oxide foams, γ radiation-compression coupling, Mechanical properties, Permanent deformation, Radiolytic outgassings, Aging mechanism

CLC O631.3[+]3

聚苯醚（PPO）作为一种经济型工程塑料，其内部结构中具有大量的刚性链部分[1]，使其具备了较高的耐热性能、极低的吸水率和突出的力学性能。发泡后又能极大地降低其比重，并同时赋予其优异的介电性能与隔热性能[2-4]。具有优异机械强度的PPO泡沫材料被广泛用于制备支撑紧固材料、降噪隔热材料等，在国防、核电、汽车行业、电子电气领域和航天装备中具有重要的地位和应用价值[5-7]。然而，聚苯醚材料在特种装备中使用时通常面临着复杂苛刻的服役环境，如高温、潮湿、氧气、高能辐射、应力等，这会显著加速其老化进程，引发断链或交联反应并导致其尺寸稳定性变差，产生极大的安全隐患。

PPO基体材料在长期热氧和高能辐射等环境因素作用下的物理和化学老化已经有相关研究报道，发现在γ辐射或电子束辐射下，PPO材料会发生主链断链、交联或微裂纹等缺陷增加，引发材料模量或韧性等力学性能衰减[8-10]。例如，谭海容等[10]发现，聚醚醚酮（PEEK）无定形区在低剂量电子束辐射下以交联为主，力学强度提高，而高剂量下以断链为主，力学强度降低，并且随着氧气含量的增加，辐射降解效应增强。Hamciuc等[11]研究了空气与氮气氛围下含有环己基的PEEK的热分解过程，发现不论气氛如何PEEK热分解过程总是从醚键断裂开始的。Yang等[12]发现PEEK在γ射线与高温作用下存在断链、交联和氧化等竞争机理，γ射线显著加速了高温老化。法国航空航天实验室的Rival等[13-14]发现PEEK在真空、电子束与热耦合环境中老化时，高温有利于促进辐射引起的交联，并且材料的结晶尺寸和结晶度均下降。然而，在国防特种装备领域中，PPO通常面临着更复杂苛刻的服役环境（长时辐射、应力等）。在γ辐射-压缩耦合的特殊条件下，PPO分子链会在高能射线和应力共同作用下显著活化，发生老化降解的速度和程度可能会加快，导致性能衰减和功能加速失效。此外，与基体材料不同，超临界CO_2发泡技术制备所得发泡材料是一个包含空气的多组分材料，是具有多尺度和多空间维度结构特点的热力学非平衡态复杂体系[15-16]。由于PPO刚性链特点，在发泡制备过程中，泡孔生长导致的孔壁拉伸分子链取向难以短时松弛到平衡态。发泡材料引入大量空气，使得体系密度降低，内部形成更多的薄壁自由表面，分子链间相互作用减弱，这都将增强分子链活动性。因此，在长期特种复杂服役环境

中，PPO泡沫材料会发生比相应的基体材料更复杂和明显的物理老化松弛行为，易导致发泡材料尺寸形状失稳、密度改变、力学强度下降等问题，这些情况对大尺寸发泡材料的功能衰减失效影响更大。对于有机硅弹性体发泡材料体系的老化行为研究已有报道，发现其在辐射-应力下老化后，孔壁易出现孔洞、裂纹等缺陷，以及部分孔结构出现坍塌变形，导致样品厚度减小和力学强度降低[17-19]。目前，特种高分子发泡材料在γ辐射-压缩这一特殊的老化方式下的研究鲜有报道，这使得实际装备中使用的PPO泡沫材料服役寿命的认识和评估受到了限制。

为此，本研究通过控制γ辐射与应力的方式针对性地研究了不同发泡倍数PPO材料γ辐射-压缩老化行为。随后，我们从宏观到微观考察了PPO泡沫材料力学性能、热性能、导热性能、表面及化学结构的变化，并利用气体红外光谱对PPO泡沫材料γ辐射、γ辐射-压缩老化后产生气体的成分及产量进行了详细研究。研究结果有助于我们清楚认识PPO泡沫材料γ辐射-压缩老化行为，加深PPO泡沫材料老化过程中宏观性能和微观机制与辐射损伤之间紧密联系的理解，对PPO泡沫材料在γ辐射-压缩耦合加载条件下老化机理和服役寿命的评估具有重要意义。

1 材料与方法

1.1 材料与样品准备

本研究中使用的PPO泡沫材料由南京长链轻材科技有限公司提供，利用计算机数字控制机床（CNC）加工技术将材料制成圆柱试样，试样高度和直径分别为7 mm和20 mm。其中，ρ300指发泡倍数为3.610、密度为0.287 g/cm^{3}的样品，ρ600指发泡倍数为1.808、密度为0.580 g/cm^{3}的样品，分别在定制高度模具（6.89±0.01）mm中进行压缩，压缩率为3%。如文献[20]所述，将样品置于高硼硅玻璃管中：通过反复抽真空与N_2置换以去除样品管内与样品基体内残留的空气部分，其中N_2中氧和水体积相对含量分别不大于3×10^{-6}和5×10^{-6}，最后向玻璃管中充入40 kPa O_2/N_2混合气体（O_2∶N_2=1∶4），并利用内部负压对玻璃管进行熔融密封。

1.2 γ辐射老化

γ辐射由中国工程物理研究院核物理与化学研究所^{60}Co源提供，剂量率为（2.5±0.1）×10^{-3} Gy/s（由内标物丙氨酸检测），样品在室温下辐射或定制高度的模具中进行辐照，吸收剂量分别为50 Gy、100 Gy、500 Gy、1 000 Gy。

1.3 表征

1.3.1 力学性能测试

利用万能试验机（Instron5965）进行压缩性能测试，压缩速率10 mm/min。试验温度为30 ℃，相对湿度为39%。每种老化条件下的样品进行5组重复平行实验。

1.3.2 热重分析

利用热重分析仪（TGA550）对样品热稳定性能进行分析。在流速为30 mL/min的N_2氛围下，将4~8 mg样品升温至50 ℃后保温5 min，随后从50 ℃升温至800 ℃，升温速率为10 ℃/min，每组样品进行3次测试，以获得准确的实验结果。

1.3.3 导热系数测量

利用导热系数测量仪（THB 100），参照GB/T 10297－2015标准[21]，测量PPO泡沫材料导热系数。每种老化条件下的样品进行2组重复平行实验。

1.3.4 扫描电镜（SEM）

利用扫描电子显微镜（Zeiss Sigma 300）在10 kV的加速电压下观察PPO泡沫材料的表面形态。在测试前所有样品表面都进行了喷金处理。

1.3.5 电子顺磁共振波谱（EPR）

电子顺磁共振波谱图由Bruker E500获得，微波频率为9.86 GHz，中心磁场为3 500 G，调制频率为30 kHz，调制振幅为5 G。为了获得超精细分裂谱图，微波功率设置为0.2 mW，时间常数为40.96 ms。所有谱图在室温下进行采集，利用样品质量进行归一化处理并以信号峰面积来近似残余自由基浓度。

1.3.6 傅里叶变换红外光谱（FTIR）

样品的红外光谱在Nicolet 6700光谱仪上以衰减全反射模式（ZnSe为晶体）进行采集，扫描区间为525~4 000 cm^{-1}，扫描次数为32次，分辨率为4 cm^{-1}，每种老化条件下的样品进行3次重复试验，以2 921 cm^{-1}处亚甲基伸缩振动峰对所有光谱进行归一化处理。

1.3.7 气体红外光谱

使用真空泵将红外气体池（2.4 m光程，Pike

technologies）抽至真空，同时用恒定速率的N_2吹扫光路至背景信号稳定，利用负压（10^{-3} kPa）将样品管内的气体注入红外样品池内，在Nicolet 6700光谱仪上以透射模式收集红外信号以检测气体池内样品变化，扫描区间为650~4 000 cm^{-1}，扫描次数为32次，分辨率为4 cm^{-1}。以2 257~2 397 cm^{-1}作为CO_2定量分析区间并进行积分，利用事先得到的标准曲线求出气体池内CO_2浓度，所有数据归一化为单位质量样品气体产率（μmol/g），标准差由两组平行样品得到。

2 结果与讨论

2.1 力学性能

材料的宏观机械性能是其服役可靠性的重要指标，常被用于评估辐射效应导致的损伤程度[22]。图1为ρ300、ρ600样品在γ辐射、γ辐射-压缩老化后压缩应力应变曲线，可以看到，发泡后材料的压缩强度显著降低，屈服行为消失。此外，压缩与γ辐射-压缩老化后ρ300、ρ600样品的力学性能显著增加，而单独的辐射对材料的力学性能几乎没有影响。进一步对γ辐射、γ辐射-压缩条件下的PPO样品在同一吸收剂量下的弹性模量进行了分析（图2）。ρ300样品在γ辐射-压缩下吸收剂量超过100 Gy时，样品的弹性模量就显著增加，而对于ρ600样品，在γ辐射-压缩条件下吸收剂量超过500 Gy时，样品的弹性模量才显著增加。这是由于ρ300样品相对于ρ600样品发泡倍数更高，抵抗永久变形的能力更弱，所以老化后ρ300样品弹性模量发生显著变化的时间（11.1 h对应吸收剂量为100 Gy）会早于ρ600样品弹性模量发生显著变化的时间（55.6 h对应吸收剂量为500 Gy）。

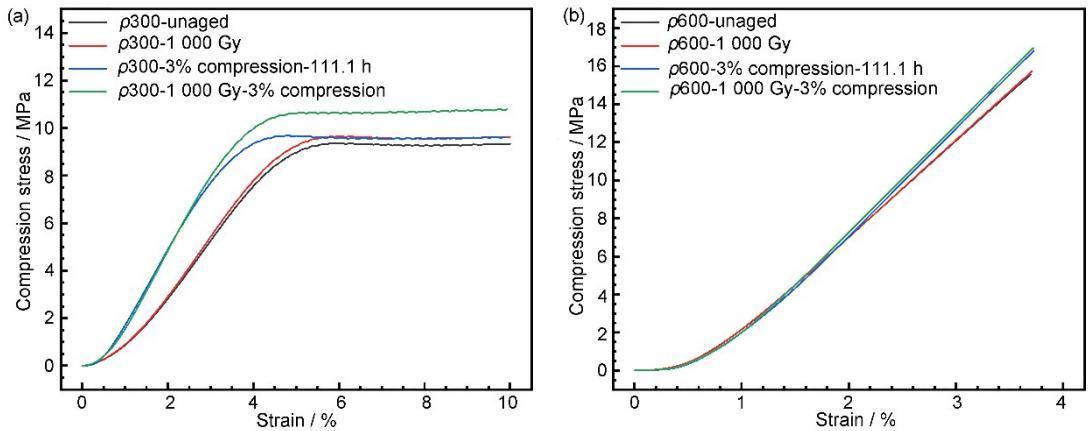


图1 （a）ρ300、（b）ρ600样品在γ辐射、压缩、γ辐射-压缩老化前后的压缩性能曲线

Fig.1 Compression curves of (a) ρ300, and (b) ρ600 before and after γ radiation, compression, and γ radiation-compression aging

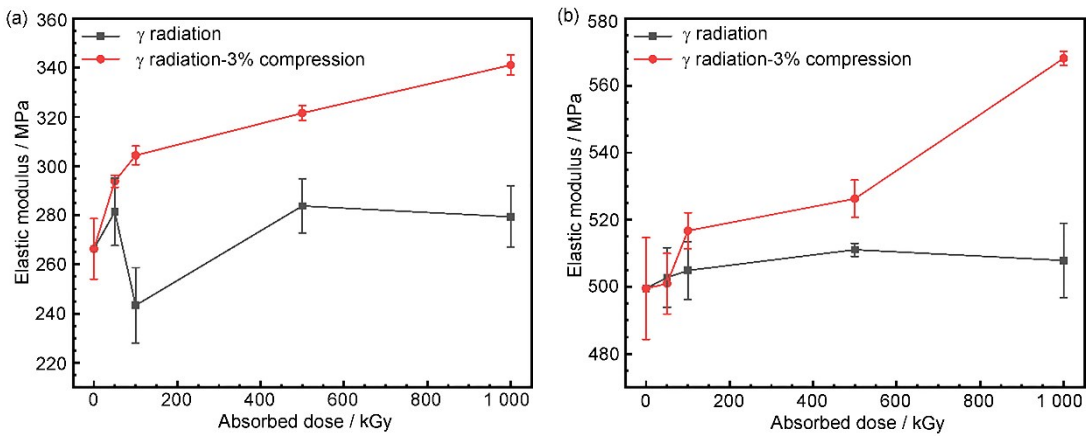


图2 （a）ρ300、（b）ρ600样品在γ辐射、γ辐射-压缩条件下老化前后弹性模量随吸收剂量的变化

Fig.2 Elastic modulus of (a) ρ300, and (b) ρ600 as a function of absorbed dose before and after γ radiation and γ radiation-compression aging

2.2 热稳定性与导热系数分析

PPO材料的热稳定性和导热系数在装备服役过程中十分重要。为了研究PPO泡沫材料试样组分及热稳定性能的退化情况，对不同条件下老化后的ρ300、ρ600样品进行了热重分析(图3)。ρ300样品的初始分解温度和最大分解速率温度分别为374 ℃、447 ℃，而ρ600样品的初始分解温度和最大分解速率温度分别为380 ℃、447 ℃：可以发现，发泡倍数的增加导致了样品的初始分解温度降低，这是因为发泡会增加自由界面，进而增强大分子链的运动性。此外，γ辐射、压缩和γ辐射-压缩老化前后样品的初始分解温度、最大分解速率温度均无明显变化，这表明研究条件下的γ辐射、压缩和γ辐射-压缩所引起材料的物理、化学老化并不足以对材料的热稳定性能造成显著影响。

PPO泡沫材料导热性能的退化结果如表1所示。发泡倍数的增加导致了样品导热系数(L)的显著降低，这是因为高发泡倍数样品中引入了更多的泡孔，导热系数较低的空气(0.028 W/(m·K))占比增加。辐射老化后样品的导热系数均无明显变化，而压缩和γ辐射-压缩老化后样品导热系数均略有增加，这是由于压缩和γ辐射-压缩后样品发生了永久变形，含有空气的泡孔占比降低造成的。

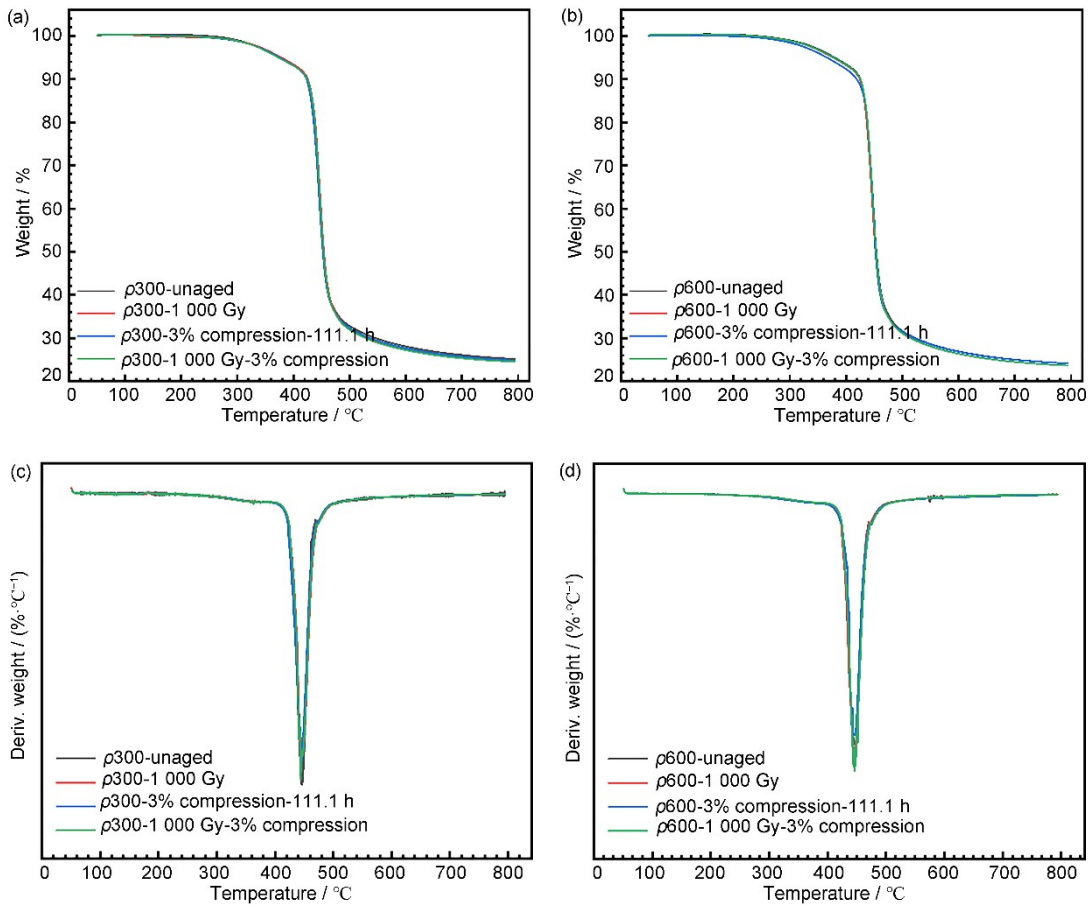


图3 PPO泡沫材料γ辐射、压缩、γ辐射-压缩老化前后热重分析：(a)ρ300、(b)ρ600样品失重图和(c)ρ300、(d)ρ600失重一阶导数图

Fig.3 Thermogravimetric analysis of PPO foams before and after γ radiation, compression, and γ radiation-compression aging: (a) ρ300, and (b) ρ600 weight loss and first-order derivative of weight loss for (c) ρ300, and (d) ρ600

表1　PPO泡沫材料老化后导热系数变化
Table 1　Thermal conductivity of PPO foams after aging

样品 Samples	L / (W·m^{-1}·K^{-1})	标准差 Standard deviation
ρ300-unaged	0.052	0.000
ρ300-1 000 Gy	0.053	0.001
ρ300-3% compression-111.1 h	0.055	0.001
ρ300-1 000 Gy-3% compression	0.055	0.001
ρ600-unaged	0.076	0.001
ρ600-1 000 Gy	0.076	0.000
ρ600-3% compression-111.1 h	0.081	0.001
ρ600-1 000 Gy-3% compression	0.082	0.000

2.3　表面形貌及化学结构

首先，我们研究了封管过程对PPO泡沫形貌特征的影响（图4），结果表明，封管时反复抽真空与通氮气过程对样品表面及截面均无影响，此外，未老化PPO泡沫材料表面不规则形貌是加工时造成的。扫描电镜图像展示了PPO泡沫材料老化后表面形貌的变化（图5），辐射老化后样品表面形貌没有明显变化，而γ辐射-压缩老化后样品表面孔结构坍塌、发生永久变形，这表明压缩能导致PPO泡沫发生不可逆物理老化。并且ρ300样品表面更加致密，发生永久变形程度更大，这主要是其更低的密度导致其抗压缩性能更差，相关结果与力学性能研究的结果一致。

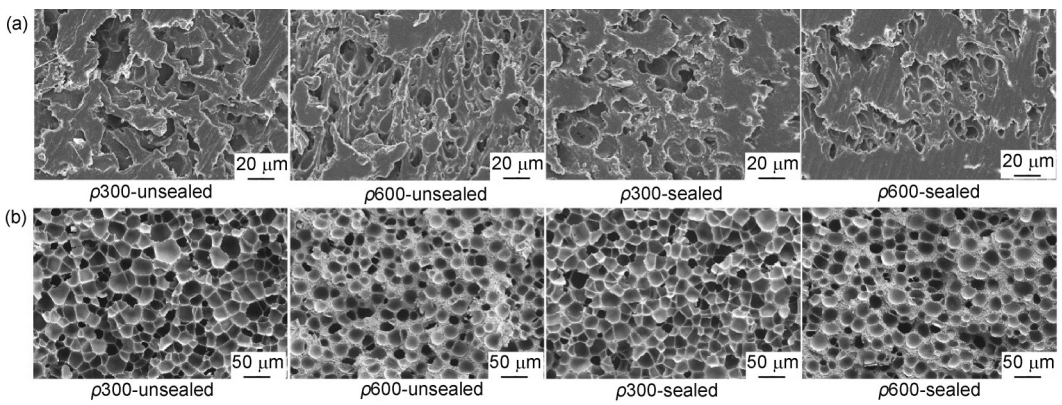
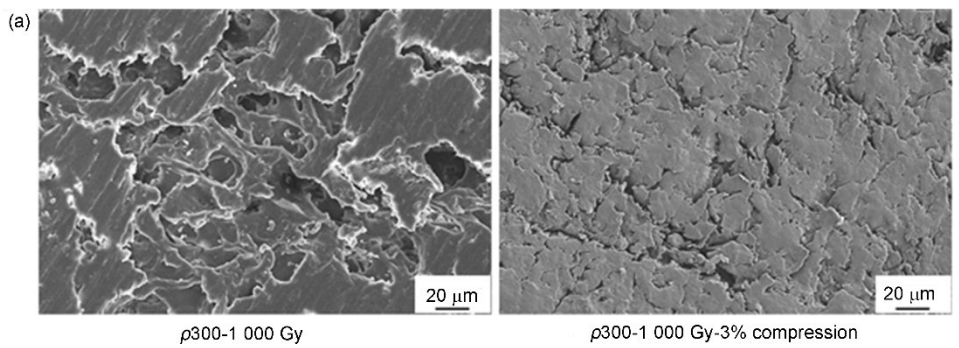


图4　PPO泡沫材料封管前后样品的（a）表面和（b）截面形貌
Fig.4　Morphology of (a) surface, and (b) cross section before and after sealing the tube



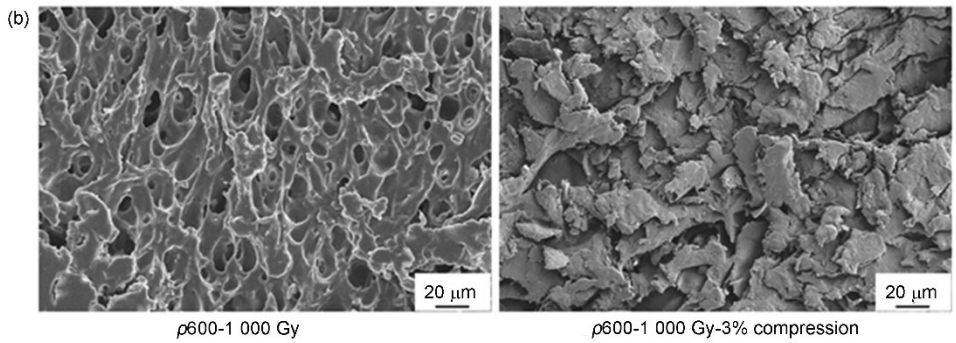


图5 （a）ρ300、（b）ρ600样品γ辐射、γ辐射-压缩老化后样品的表面形貌
Fig.5 Surface morphology of (a) ρ300, and (b) ρ600 after γ radiation and γ radiation-compression aging

利用电子顺磁共振波谱对PPO泡沫材料老化前后样品内部活性自由基结构及浓度进行了研究（图6和图7）。未老化样品内部有明显的2,6-二甲基苯氧自由基信号，这是高温加工过程中PPO发生热降解形成的亚稳自由基。

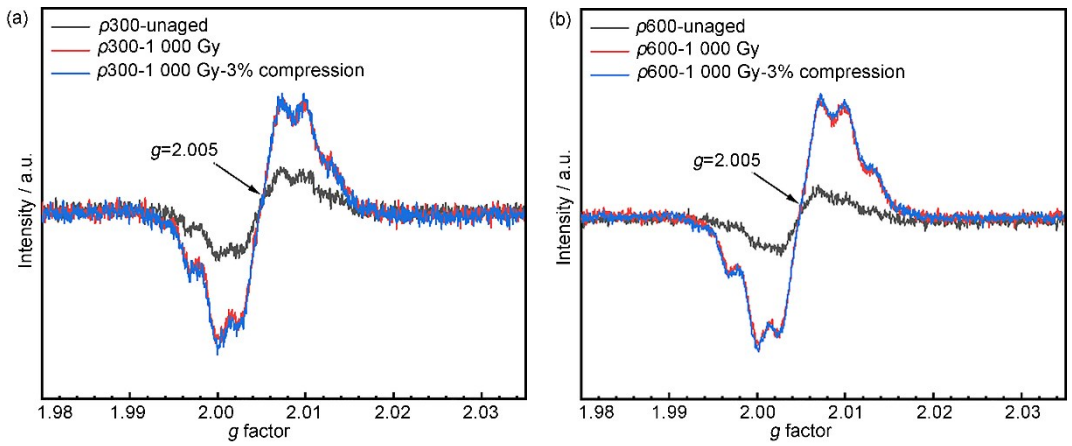


图6 PPO泡沫材料的电子顺磁共振波谱图：（a）ρ300、（b）ρ600样品γ辐射、γ辐射-压缩老化前后
Fig.6 EPR spectra of (a) ρ300, and (b) ρ600 before and after γ radiation and γ radiation-compression aging

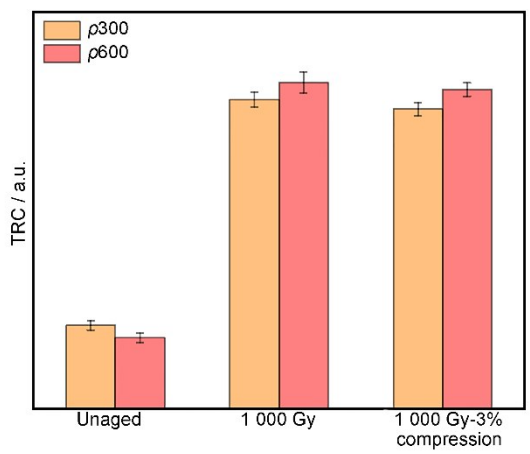


图7 PPO泡沫材料γ辐射、γ辐射-压缩老化前后样品中的自由基浓度（彩色见网络版）
Fig.7 Radical concentration of samples before and after γ radiation and γ radiation-compression aging of PPO foams (color online)

γ辐射、γ辐射-压缩老化后样品内部自由基种类均未改变，但其浓度显著增加，且γ辐射-压缩与γ辐射老化后样品内部自由基浓度增加量差别甚微，这表明辐射是PPO泡沫材料发生化学老化的主要因素。PPO的亚稳自由基可能在长时间过程中逐渐反应，导致辐射老化后效应的出现。

γ辐射、γ辐射-压缩老化前后PPO泡沫材料的红外谱图如图8所示。其中，2 918 cm^{-1}、2 851 cm^{-1}处的吸收峰来源于$-CH_2-$不对称振动与对称伸缩振动，1 594 cm^{-1}、1 470 cm^{-1}、1 385 cm^{-1}、1 259 cm^{-1}处的吸收峰来源于苯环上C=C键的骨架振动，1 091 cm^{-1}、1 073 cm^{-1}、860~870 cm^{-1}处的吸收峰来源于苯环上C−H的面内弯曲振动。从材料的表面红外光谱看，PPO泡沫材料老化前后表面化学结构均未发生明显变化，这可能是与衰减全反射红外光谱本身灵敏度有关

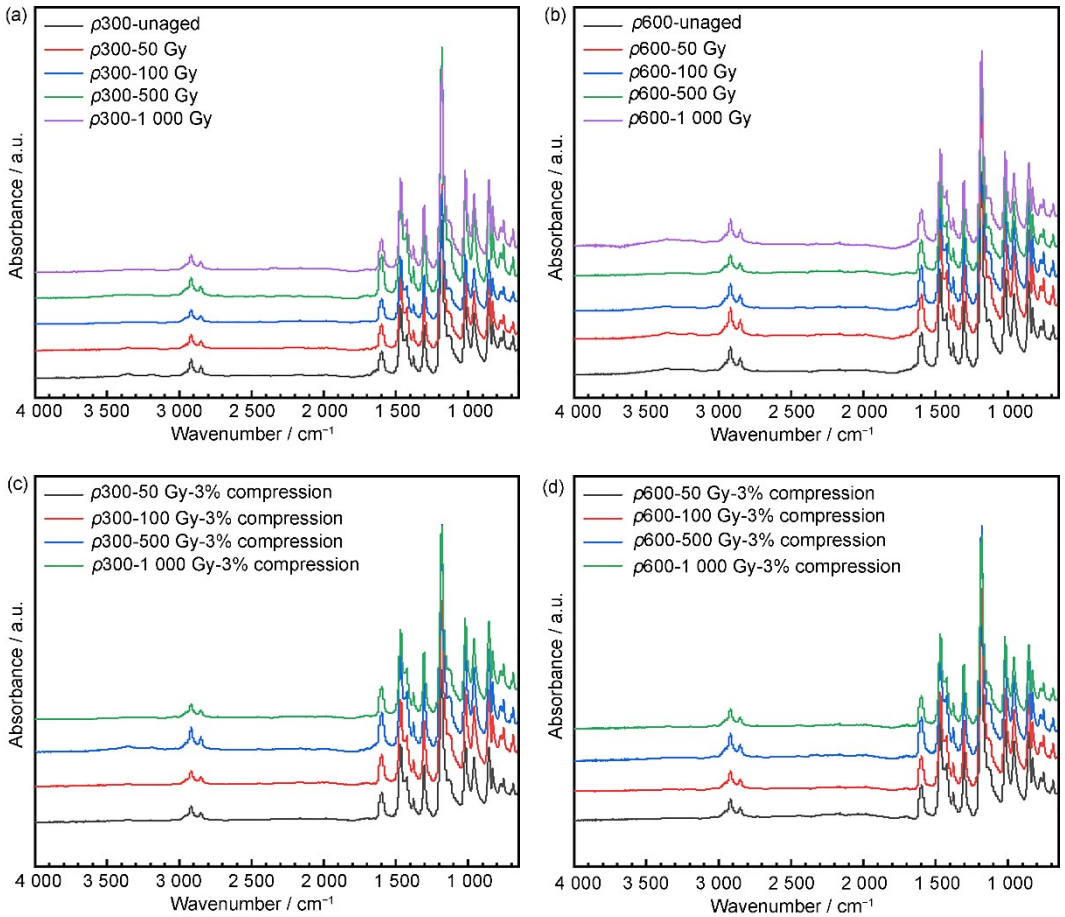


图8 PPO泡沫材料的红外光谱图：
（a）ρ300 γ辐射老化前后；（b）ρ600 γ辐射老化前后；（c）ρ300 γ辐射-压缩老化后；（d）ρ300 γ辐射-压缩老化后
Fig.8 ATR-FTIR spectra of (a) ρ300 before and after γ radiation, (b) ρ600 before and after γ radiation, (c) ρ300 after γ radiation-compression, and (d) ρ300 after γ radiation-compression aging

2.4 辐解释气种类及含量分析

图9展示了样品管内混合气体的红外谱图：2 257~2 397 cm^{-1}处的峰属于CO_2特征吸收峰；2 837~3 135 cm^{-1}处的峰属于烷烃特征吸收峰；2 034~2 227 cm^{-1}处的峰属于CO特征吸收峰[23-24]。

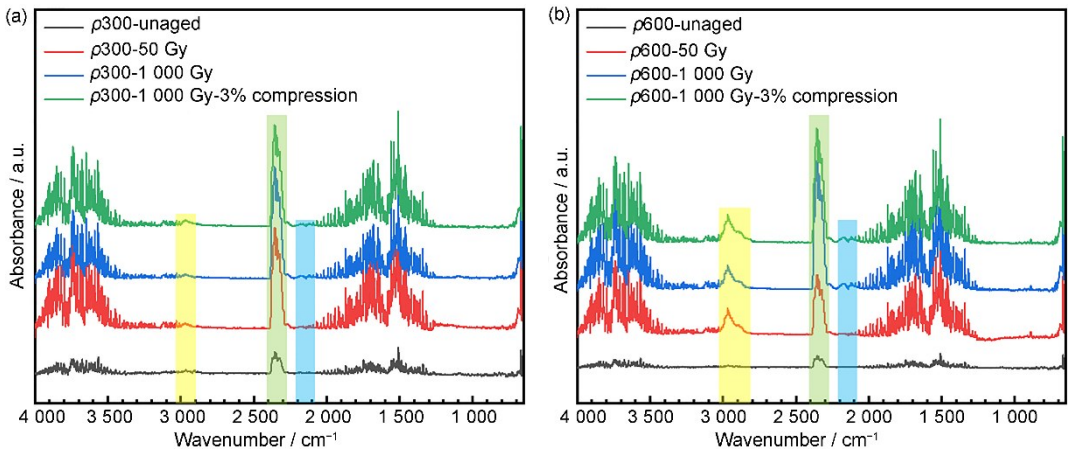


图9 （a）ρ300、（b）ρ600样品γ辐射、γ辐射-压缩老化前后产生气体的红外光谱图（彩色见网络版）
Fig.9 Infrared spectra of the gases released from (a) ρ300, and (b) ρ600 before and after γ radiation and γ radiation-compression aging (color online)

由图9可见，未老化样品的气体红外谱图中仅出现了极小的CO_2特征吸收峰，这是PPO泡沫材料泡孔内部残存的少量CO_2释放所导致的。此外，γ辐射吸收剂量仅为50 Gy时就可以检测到CO_2、CO、烷烃等小分子气体产物，这些小分子气体产物的生成可归因于大分子链上的侧基、端基的脱除、相互反应或与O_2分子的氧化反应。然而，不同发泡倍数PPO老化后产生的烷烃存在显著差异，表现为ρ600老化后有C_2H_6、C_3H_8，而ρ300老化后仅有极少的烷烃产物生成，原因正在进一步研究分析。随后利用建立的标准曲线对CO_2进行了定量表征，结果如图10所示。可以发现，发泡倍数越大CO_2产量越多，并且PPO泡沫材料在γ辐射、γ辐射-压缩老化后CO_2产量随着吸收剂量增加逐渐增加。然而，γ辐射-压缩老化后CO_2产量略低于辐射老化后的CO_2产量。同时，在γ辐射-压缩老化后样品管内混合气体的红外谱图中烷烃吸收峰面积略微增加，这可能是因为辐射-压缩老化后材料发生了永久变形，导致材料内部气体被排出基体，进而降低了氧化反应的速率，更有利于烷基自由基间相互反应。

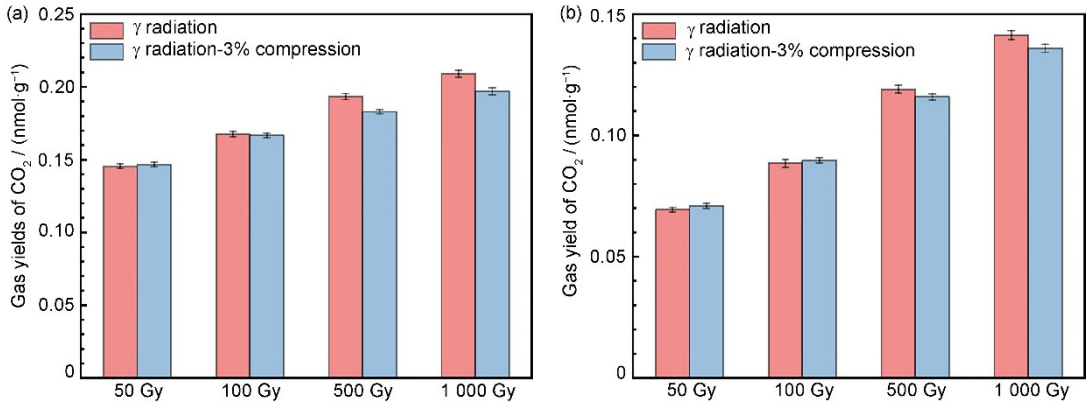


图10 （a）ρ300、（b）ρ600 γ辐射、γ辐射-压缩老化后CO_2产量

Fig.10 Evolved gas yields of CO_2 from (a) ρ300, and (b) ρ600 after γ radiation and γ radiation-compression aging

3 结论

本文对γ辐射、γ辐射（0~1 kGy）和压缩耦合作用下不同发泡倍数PPO材料的老化机理和性能进行了详细研究，发现单独的γ辐射老化后PPO泡沫材料的力学性能、热稳定性、导热性能均无明显变化，而γ辐射-压缩老化后弹性模量和导热系数显著增加，并且γ辐射-压缩耦合作用对ρ300和ρ600样品有明显差异，对于低发泡倍率的ρ300样品，耦合作用的影响不可忽视，而对于低发泡倍率的ρ600样品，耦合作用影响更为显著。利用SEM、EPR、FTIR对PPO泡沫材料γ辐射、γ辐射-压缩后表面形貌及化学结构进行了研究，发现γ辐射-压缩老化后PPO泡沫材料表层孔结构的坍塌与永久变形是其弹性模量和导热系数显著增加的关键，样品内部残余自由基浓度是辐射引起的化学变化和吸收剂量所控制，而样品内部自由基类型和表面化学结构均无明显变化。气体红外光谱研究结果表明，高发泡倍数PPO材料老化后CO_2产量更高，并且受永久变形影响，相对于单纯的γ辐射老化，PPO泡沫材料γ辐射-压缩老化后CO_2产量略微降低。研究结果有助于充分认识特种高分子发泡材料在γ辐射-压缩条件作用下特殊的物理、化学老化分子机制及功能加速老化失效规律，为PPO泡沫的稳定化提供基础理论支持，并对其在γ辐射-压缩耦合加载条件下服役寿命的评估提供指导。

作者贡献声明 豆睿扬完成了本工作的数据分析与论文的撰写；刘强、陈洪兵、李光宪、龚鹏剑、雷雅杰参与了论文修改；刘强、陈洪兵和豆睿扬共同构思和设计了这项研究；李光宪、龚鹏剑和金碧辉提供了实验样品；张祎茜参与了实验并对数据进行了整理；刘强、陈洪兵、黄玮参与了实验设计和数据的分析讨论；雷雅杰参与了数据分析讨论；刘强和陈洪兵为本研究提供了基金支持。所有作者均已阅读并认可该论文最终版的所有内容。

参考文献

1 Yu J B, Chen Y C, Zhong W Y, *et al*. Microcellular long-chain branched polyphenylene oxide (PPO) with excellent comprehensive properties and comprehensive analysis of its dielectric properties[J]. European Polymer Journal, 2024, **214**: 113157. DOI: 10.1016/j. eurpolymj. 2024.113157.

2 Paszkiewicz S, Szymczyk A, Franciszczak P, *et al*. Characterization of polypropylene/poly(2, 6-dimethyl-1, 4-phenylene oxide) blends with improved thermal stability[J]. Polymer Bulletin, 2018, **75**(8): 3679-3691. DOI: 10.1007/s00289-017-2224-7.

3 Ding S G, Peng H Y, Ren H S, *et al*. Investigation on preparation and properties of novel polyphenylene oxide based composites by injection molding[J]. Ceramics International, 2020, **46**(18): 29067-29072. DOI: 10.1016/j.ceramint.2020.08.078.

4 曹国政, 周文英, 李婷, 等. 改性聚苯醚树脂研究进展[J]. 现代塑料加工应用, 2021, **33**(3): 60-63. DOI: 10.19690/j.issn1004-3055.20200291.
CAO Guozheng, ZHOU Wenying, LI Ting, *et al*. Research progress on modified polyphenylene ether resin [J]. Modern Plastics Processing and Applications, 2021, **33**(3): 60-63. DOI: 10.19690/j.issn1004-3055.20200291.

5 Lee H J, Kim D P, Suda H, *et al*. Gas permeation properties for the post-oxidized polyphenylene oxide (PPO) derived carbon membranes: effect of the oxidation temperature[J]. Journal of Membrane Science, 2006, **282** (1/2): 82-88. DOI: 10.1016/j.memsci.2006.05.006.

6 McCormack P M, Luo H X, Geise G M, *et al*. Conductivity, permeability, and stability properties of chemically tailored poly(phenylene oxide) membranes for Li+ conductive non-aqueous redox flow battery separators[J]. Journal of Power Sources, 2020, **460**: 228107. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2020.228107.

7 Han Y Y, Xu F, Ji J Y, *et al*. Phosphoric acid-doped cross-linked poly(phenylene oxide)-based membranes for high temperature proton exchange membrane fuel cells[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2024, **50**: 1417-1426. DOI: 10.1016/j.ijhydene.2023.07.125.

8 Lawrence F, Mallika C, Kamachi Mudali U, *et al*. Radiation degradation in the mechanical properties of Polyetheretherketone-alumina composites[J]. Journal of Nuclear Materials, 2012, **420**(1/2/3): 338-341. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2011.10.024.

9 Sasuga T, Kudoh H. Ion irradiation effects on thermal and mechanical properties of poly(ether-ether-ketone) (PEEK) [J]. Polymer, 2000, **41**(1): 185-194. DOI: 10.1016/S0032-3861(99)00143-3.

10 谭海容, 邢哲, 刘伟华, 等. 电子束辐照聚醚醚酮薄膜的氧化效应[J]. 辐射研究与辐射工艺学报, 2019, **37**(2): 020201. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2019.rrj. 37.020201.
TAN Hairong, XING Zhe, LIU Weihua, *et al*. Oxidation effects of poly(ether-ether-ketone) induced by electron-beam irradiation[J]. Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 2019, **37**(2): . 020201. DOI: 10.11889/j.1000-3436.2019.rrj.37.020201.

11 Hamciuc C, Lisa G, Hamciuc E, *et al*. Thermal behavior study and degradation mechanism by TG/MS/FTIR technique of some poly(aryl ether ether ketone)s[J]. Journal of Analytical and Applied Pyrolysis, 2020, **150**: 104877. DOI: 10.1016/j.jaap.2020.104877.

12 Yang L Q, Ohki Y, Hirai N, *et al*. Aging of poly(ether ether ketone) by heat and gamma rays—its degradation mechanism and effects on mechanical, dielectric and thermal properties[J]. Polymer Degradation and Stability, 2017, **142**: 117-128. DOI: 10.1016/j. polymdegradstab. 2017.06.002.

13 Rival G, Dantras E, Paulmier T. Electronic irradiation ageing in the vicinity of glass transition temperature for PEEK space applications[J]. Polymer Degradation and Stability, 2020, **181**: 109305. DOI: 10.1016/j. polymdegradstab.2020.109305.

14 Rival G, Paulmier T, Dantras E. Influence of electronic irradiations on the chemical and structural properties of PEEK for space applications[J]. Polymer Degradation and Stability, 2019, **168**: 108943. DOI: 10.1016/j. polymdegradstab.2019.108943.

15 刘云杰, 金碧辉, 马昊宇, 等. 乙烯-乙烯醇共聚物/碳纳米管复合发泡材料的电磁屏蔽性能研究[J]. 高分子学报, 2023, **54**(1): 106-120.
LIU Yunjie, JIN Bihui, MA Haoyu, *et al*. Electromagnetic shielding properties of ethylene-vinyl alcohol copolymer/carbon nanotube nanocomposite foams[J]. Acta Polymerica Sinica, 2023, **54**(1): 106-120.

16 Liu Y J, Wu B J, Zhang Q, *et al*. Micro/nano-structure skeleton assembled with graphene for highly sensitive and flexible wearable sensor[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2023, **165**: 107357. DOI: 10.1016/j.compositesa.2022.107357.

17 Labouriau A, Robison T, Geller D, *et al*. Coupled aging effects in nanofiber-reinforced siloxane foams[J].

Polymer Degradation and Stability, 2018, **149**: 19-27. DOI: 10.1016/j.polymdegradstab.2018.01.010.

18 Labouriau A, Cady C, Gill J, *et al*. The effects of gamma irradiation on RTV polysiloxane foams[J]. Polymer Degradation and Stability, 2015, **117**: 75-83. DOI: 10.1016/j.polymdegradstab.2015.03.021.

19 Lou W T, Xie C Y, Guan X F. Coupled effects of temperature and compressive strain on aging of silicone rubber foam[J]. Polymer Degradation and Stability, 2022, **195**: 109810. DOI: 10.1016/j. polymdegradstab. 2021. 109810.

20 Liu Q, Huang W, Liu B, *et al*. Gamma radiation chemistry of polydimethylsiloxane foam in radiation-thermal environments: experiments and simulations[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2021, **13**(34): 41287-41302. DOI: 10.1021/acsami.1c10765.

21 国家质量监督检验检疫总局, 中国国家标准化管理委员会. 非金属固体材料导热系数的测定 热线法: GB/T 10297—2015[S]. 北京: 中国标准出版社, 2016.
General Administration of Quality Supervision, Inspection and Quarantine of the People's Republic of China, Standardization Administration of the People's Republic of China. Test method for thermal conductivity of nonmetal solid materials—Hot-wire method: GB/T 10297—2015[S]. Beijing: Standards Press of China, 2016.

22 Liu B, Huang W, Ao Y Y, *et al*. Dose rate effects of gamma irradiation on silicone foam[J]. Polymer Degradation and Stability, 2018, **147**: 97-102. DOI: 10.1016/j.polymdegradstab.2017.11.016.

23 Dou R Y, Zhang Y Q, Huang Z D, *et al*. Study on the aging behavior and mechanism of nitrile rubber composites in combined radiation-thermal environments [J]. Journal of Analytical and Applied Pyrolysis, 2024, **184**: 106865. DOI: 10.1016/j.jaap.2024.106865.

24 安振华, 杨睿. 一种新型老化评价系统及在聚乙烯复合材料中的应用[J]. 高分子学报, 2021, **52**(2): 196-203. DOI: 10.11777/j.issn1000-3304.2020.20150.
AN Zhenhua, YANG Rui. A novel aging evaluation system and the application to polyethylene composites[J]. Acta Polymerica Sinica, 2021, **52**(2): 196-203. DOI: 10.11777/j.issn1000-3304.2020.20150.