

笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的合成 及其对硅橡胶复合材料性能的影响

葛铁军 徐志华 毛洪雨 张 瑾

(沈阳化工大学塑料工程研究中心,辽宁省高分子材料工程技术研究中心,沈阳 110142)

摘 要 将实验室自制的笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷作为乙烯基硅橡胶的交联剂,再添加补强填料白炭黑和耐热填料纳米 Fe_2O_3 ,制备出一种耐高温硅橡胶复合材料。通过傅里叶变换红外光谱仪、核磁共振氢谱仪对笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷进行结构表征。结果表明,当乙烯基硅油中 $\text{Si}-\text{Vi}$ 与笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷交联剂中 $\text{Si}-\text{H}$ 的摩尔比为 1:1,白炭黑质量分数为 20%,硅树脂质量分数为 10%,纳米 Fe_2O_3 质量分数为 8%时,硅橡胶复合材料的耐热温度达到 470.68℃,剪切强度可达到 0.92MPa,拉伸强度为 0.99MPa。

关键词 笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷,耐热性能,强度

Preparation of the cage type octa(hydromethylsiloxyl)- silsesquioxane and its effect on silicone rubber composite

Ge Tiejun Xu Zhihua Mao Hongyu Zhang Jin

(Plastic Engineering Research Center of Shenyang University of Chemical Engineering,
Liaoning High Polymer Engineering Technology Research Center, Shenyang 110142)

Abstract The preparation of a kind of heat resistant silicone rubber was completed by the basis of vinyl silicone rubber, octa(hydromethylsiloxyl)-silsesquioxane as the crosslinking agent, silica as reinforcing filler, and nano Fe_2O_3 as heat-resistant filler. Among them, octa(hydromethylsiloxyl)-silsesquioxane was synthesized by self as heat resistant silicone rubber crosslinking agent. The structure of octa(hydromethylsiloxyl)-silsesquioxane was characterized by Fourier transform infrared spectrometry (FT-IR), nuclear magnetic resonance hydrogen spectroscopy ($^1\text{H-NMR}$). It turned out that the mass ratio of the $\text{Si}-\text{Vi}$ of the vinyl siloxane oil and the silicon hydrogen bond in the crosslinking agent was 1:1, the amount of silica was 20% the amount of silicon resin was 10%, the amount of Fe_2O_3 was 8%, the initial decomposition temperature of silicone rubber can reach 470.68℃, the shear strength was 0.92MPa, the tensile strength was 0.99MPa.

Key words cage type octa(hydromethylsiloxyl)-silsesquioxane, heat resistance, strength

硅氧无机骨架主链以及侧基有机基团的共同作用,使得硅橡胶分子链兼具耐热性及柔顺性,进而使得硅橡胶材料具有优异的耐高温、耐热氧老化及电绝缘性能^[1-2],广泛应用于交通运输、航空航天、电子电气、医疗卫生等领域^[3-5]。随着科学技术的不断发展,传统硅橡胶的性能,尤其是耐高温性能已经无法满足应用需要^[6],越来越苛刻的使用条件对硅橡胶的耐高温、耐老化等性能也提出了更严格的要求。

研究表明,不同交联剂对硅橡胶性能的影响不同。目前最常用的交联剂是含氢硅油。刘光勋等^[7]研究了正硅酸乙酯和含氢硅油这 2 种交联剂对高强度缩合型室温硫化硅橡胶力学性能的影响。结果表

明,以氢硅油为交联剂制备的高强度缩合型室温硫化硅橡胶的拉伸强度、断裂伸长率和 180°剥离强度均明显高于以正硅酸乙酯为交联剂的室温硫化硅橡胶。方炜等^[8]用结构不同的含氢硅油作为交联剂,研究了其对硅橡胶性能的影响。结果表明,改性硅橡胶的拉伸强度、断裂伸长率和撕裂强度均有提高。刘丽萍等^[9]用含氢硅油作为交联剂,研究其对室温硫化硅橡胶性能的影响。结果表明,改性硅橡胶的拉伸强度约为 2.5MPa,断裂伸长率约为 90%。上述研究都将含氢硅油作为交联剂应用于硅橡胶,但是含氢硅油对硅橡胶耐热温度的提高影响较小。为了提高硅橡胶的耐热温度,王清正等^[10]采用热重分

析法对硅氮化合物交联的缩合型双组分室温硫化硅橡胶的热稳定性进行了研究。结果表明,与普通交联剂相比,改性交联剂可以明显提高硅橡胶的热稳定性。

陈东志等^[11]合成了不同类型笼型倍半硅氧烷(POSS)作为交联剂,考察了交联剂对缩合型硅橡胶性能的影响。结果表明,POSS 可以明显提高硅橡胶的使用温度、分解温度以及力学性能。因此将 POSS 作为新型交联剂用于提高硅橡胶的耐热温度及力学性能具有十分重要的意义。

本研究合成了一种笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷,并将其作为交联剂用于提高加成型室温硫化硅橡胶的耐热性。笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的主链由具有柔顺性的 Si—O—Si 组成, Si—O 键能高且键角大,这种结构能赋予材料优良的耐热性能,且顶角连有 Si—H 键和 Si—CH₃ 键,其中笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的 Si—H 键反应活性很高,能与乙烯基硅橡胶中的双键发生硅氢加成反应,将笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷引入乙烯基硅橡胶中,形成三维立体的交联网状结构,有利于提高室温硫化硅橡胶的耐热性能。

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷,实验室自制;甲基含氢硅油(PMHS),济南齐民化工产品有限公司;铂金催化剂,广州康喜有机硅材料有限公司;加成型硅胶抑制剂,PC-610,天津市大茂化学试剂厂;环己烷,分析纯,上海剑诚化工有限公司分公司;用硅烷偶联剂处理的气相白炭黑;用硅烷偶联剂处理的纳米 Fe₂O₃。

傅里叶变换红外光谱仪(FT-IR, Nicole-5DX 型),美国 Nicole 公司;核磁共振氢谱仪(¹H-NMR, Avance III 型),瑞士仪器制造有限公司;热重分析仪(TG, TGA-Q50 型),美国 TA 仪器公司;微机控制电子拉伸试验机(H10KS 型),深圳瑞格尔仪器检测有限公司

1.2 笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的制备过程

1.2.1 八聚水合(四甲基铵)硅酸盐的制备

将 45mL 质量分数为 10% 的四甲基氢氧化铵水溶液加入到三口瓶中,缓慢将恒压滴液漏斗中的四乙氧基硅烷滴加到三口瓶中,室温下搅拌 12h,于 60℃ 反应 10h;减压蒸馏去除溶剂后置于冰箱中,低

温冷却结晶;过滤,用丙酮洗涤数次后将产物置于真空烘箱中干燥,得到八聚水合(四甲基铵)硅酸盐。

1.2.2 笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的制备

将 50mL 正己烷、30mL 二甲基氯硅烷和 100mL N,N-二甲基甲酰胺装入三口瓶中,缓慢加入八聚水合(四甲基铵)硅酸盐,在室温下搅拌冷却至 0℃,向三口瓶中加入冷却的蒸馏水,搅拌至室温,用去离子水将分离后的有机相洗至中性,减压蒸馏后置于冰箱中低温结晶,用甲醇洗涤产物,过滤、干燥去除溶剂后得到白色晶体,即笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷^[12]。

1.3 硅橡胶复合材料的制备

将笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷、补强填料改性白炭黑、耐热填料纳米 Fe₂O₃、加成型硅胶抑制剂、铂金催化剂依次加入乙烯基硅橡胶中,在电动搅拌器剧烈搅拌下进行反应,之后将反应物放入真空干燥箱中于 25℃(室温)去除气泡,在室温下固化得到硅橡胶复合材料。

2 结果与讨论

2.1 FT-IR 分析

图 1 为笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的 FT-IR 谱图。由图可以看出:2140cm⁻¹处为 Si—H 键的伸缩振动吸收峰;1258cm⁻¹处的吸收峰强而尖且无分裂,为 Si—(CH₃)₂ 的对称伸缩振动吸收峰;1100cm⁻¹处的强峰为 Si—O—Si 骨架的吸收峰;908cm⁻¹处为 Si—H 的摇摆振动吸收峰;565cm⁻¹处为 Si—O—Si 的吸收峰。分析表明,FT-IR 谱图中含有笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷中的特征基团。

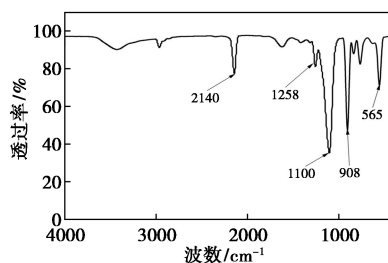


图 1 笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的 FT-IR 谱图

2.2 ¹H-NMR 分析

图 2 为笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的 ¹H-NMR 谱图。由图可知:化学位移 δ=4.72 处为 Si—H 中氢的化学位移,由于硅上只含有 1 个氢原

子,化学环境单一,所以单峰强度较弱;化学位移 $\delta=0.24$ 处为 $\text{Si}-\text{CH}_3$ 中氢的化学位移,此处的单峰强度很强,约为 $\text{Si}-\text{H}$ 强度的 6 倍,可认为是 2 个对称的甲基。FT-IR 表征和 ^1H -NMR 分析均证明成功合成笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷。

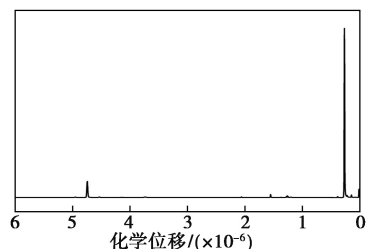


图 2 笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的 ^1H -NMR 谱图

2.3 TG 分析

图 3 为笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的 TG 曲线图及热失重速率(DTG)曲线图。由图可知:笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷失重 5% 时,对应的温度为 237.66°C ,此时的失重速率为 0.33% 。 $\text{Si}-\text{O}$ 的键能为 422.5kJ/mol 、 $\text{Si}-\text{C}$ 的键能为 347kJ/mol 、 $\text{Si}-\text{H}$ 的键能为 377kJ/mol ,由于温度升高时键能较小的侧链基团 $\text{Si}-\text{CH}_3$ 、 $\text{Si}-\text{H}$ 首先发生断裂,导致笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷失重,当温度继续升高,质量损失率较大时,硅橡胶主链中的 $\text{Si}-\text{O}$ 键才断裂^[13-14]。当温度为 297.5°C 时,笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷失重速率最大,为 2.83% 。因此,笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷具有优良的热稳定性,可以满足硅橡胶耐高温性能的要求。

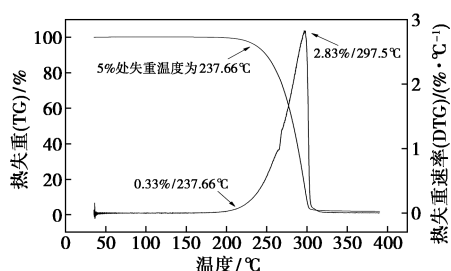


图 3 笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的 TG-DTG 曲线图

2.4 笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷对硅橡胶复合材料性能的影响

图 4 为硅橡胶复合材料的 TG 曲线图。由图可知:笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷做交联剂时,由于 $\text{Si}-\text{H}$ 与 $\text{Si}-\text{Vi}$ 的摩尔比不同,因此硅橡胶复合材料的初始分解温度也不同。当 $\text{Si}-\text{H}$ 与

$\text{Si}-\text{Vi}$ 摩尔比为 1:1 时,硅橡胶复合材料失重 5% 时的温度最高可达到 431.85°C ,与含氢硅油(初始分解温度 377.42°C)相比,硅橡胶复合材料初始分解温度提高了 54.43°C 。因此,将笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷引入乙烯基硅橡胶中,当 $\text{Si}-\text{H}$ 与 $\text{Si}-\text{Vi}$ 摩尔比为 1:1 时,可以有效提高硅橡胶复合材料的耐热性能。

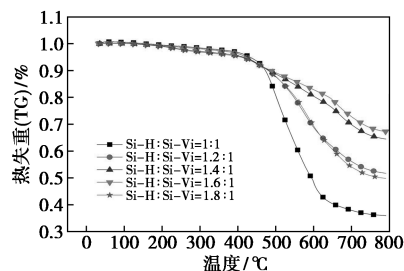


图 4 硅橡胶复合材料的 TG 曲线图

2.5 白炭黑添加量对硅橡胶复合材料热稳定性和力学性能的影响

图 5 为白炭黑添加量对硅橡胶复合材料热稳定性的影响。由图可知:当白炭黑添加量在 5%~15% (wt, 质量分数,下同) 时,硅橡胶复合材料的分解温度随着白炭黑添加量的增加而提高;白炭黑添加量为 15% 时,硅橡胶复合材料失重 5% 时的温度可达到 445.61°C 。当白炭黑添加量在 15%~25% 时,硅橡胶复合材料分解温度随着白炭黑添加量的增加而降低,即硅橡胶复合材料的耐热性能下降。但白炭黑添加量为 20% 时,硅橡胶复合材料失重 5% 时的温度可达到 440.09°C 。与白炭黑添加量为 15% 时的硅橡胶复合材料相比,温度下降幅度较小。

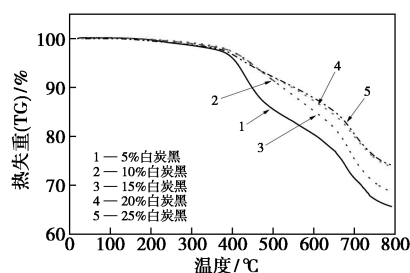


图 5 白炭黑添加量对硅橡胶复合材料热稳定性的影响

图 6 为白炭黑添加量对硅橡胶复合材料力学性能的影响。由图可知,随着白炭黑添加量的不断增加,硅橡胶复合材料拉伸强度先提高后降低,而剪切强度随着白炭黑添加量的增加而提高。这是因为加入白炭黑后,胶体黏度大幅度增加,硅橡胶复合材料剪切强度随之提高。当白炭黑添加量为 20% 时,硅

橡胶复合材料的拉伸强度达到最大,为 1.01MPa,剪切强度为 0.75MPa,之后随着白炭黑添加量的继续增加,硅橡胶复合材料的拉伸强度随之下降,剪切强度则继续提高;当白炭黑添加量为 25% 时,硅橡胶复合材料的剪切强度达到 0.81MPa。

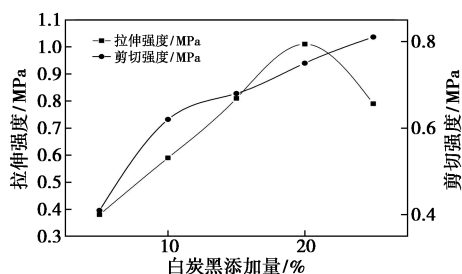


图 6 白炭黑添加量对硅橡胶复合材料力学性能的影响

结合图 5 和图 6 可知,白炭黑添加量为 20% 时,硅橡胶复合材料失重 5% 时的温度为 440.09℃,剪切强度为 0.75MPa,拉伸强度为 1.01MPa,硅橡胶复合材料的热稳定性和力学性能最佳。

2.6 硅树脂添加量对硅橡胶复合材料力学性能的影响

图 7 为硅树脂添加量对硅橡胶复合材料力学性能的影响。由图可知,随着硅树脂添加量的增加,硅橡胶复合材料拉伸强度随之提高,而剪切强度先提高后降低。当硅树脂添加量为 20% (wt, 质量分数,下同) 时,硅橡胶复合材料的拉伸强度达到最大,为 1.27MPa;当硅树脂添加量为 10% 时,硅橡胶复合材料的剪切强度达到 1.41MPa。由图可知,硅树脂添加量为 10% 时,硅橡胶复合材料的拉伸强度和剪切强度分别为 0.83MPa 和 1.41MPa,其力学性能最佳。

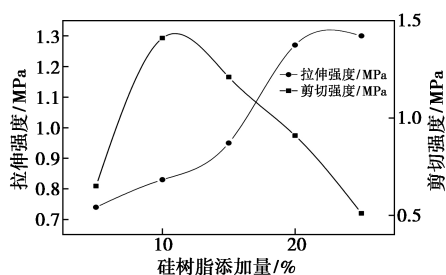


图 7 硅树脂添加量对硅橡胶力学性能的影响

2.7 纳米 Fe_2O_3 添加量对硅橡胶复合材料热稳定性和力学性能的影响

图 8 为纳米 Fe_2O_3 添加量对硅橡胶复合材料热稳定性和力学性能的影响。表 1 为填充纳米 Fe_2O_3 后硅橡胶复合材料的 TG 特征数据。结合图 8 和表 1 可知,添加纳米 Fe_2O_3 后,随着纳米 Fe_2O_3 添加量的

增加,硅橡胶复合材料所对应的特征分解温度呈现出先上升后降低的变化趋势。当纳米 Fe_2O_3 添加量为 8% (wt, 质量分数,下同) 时,硅橡胶复合材料失重 5% 时的温度可达到 470.68℃。与未添加纳米 Fe_2O_3 的样品相比,硅橡胶复合材料失重 5% 时的温度提高了 38.83℃。但之后随着纳米 Fe_2O_3 添加量的增加,硅橡胶复合材料的耐热性能逐渐下降。

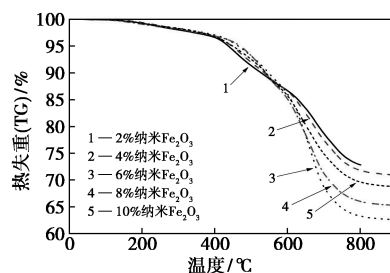


图 8 纳米 Fe_2O_3 添加量对硅橡胶复合材料热稳定性能的影响

表 1 填充纳米 Fe_2O_3 后硅橡胶复合材料的 TG 特征数据

样品	400℃ 失重/%	失重 5% 的 温度/℃	失重 2% 的 温度/℃
添加 2% 纳米 Fe_2O_3	96.61	438.06	302.10
添加 4% 纳米 Fe_2O_3	96.76	447.04	315.06
添加 6% 纳米 Fe_2O_3	97.07	465.46	331.37
添加 8% 纳米 Fe_2O_3	96.87	470.68	313.17
添加 10% 纳米 Fe_2O_3	96.79	449.71	327.32

图 9 为纳米 Fe_2O_3 添加量对硅橡胶复合材料力学性能的影响。由图可知,随着纳米 Fe_2O_3 添加量的增加,硅橡胶复合材料的拉伸强度先提高后降低,而剪切强度随着 Fe_2O_3 添加量的增加而提高。当纳米 Fe_2O_3 添加量为 8% (wt, 质量分数,下同) 时,硅橡胶复合材料的拉伸强度达到最大,为 0.99MPa,剪切强度可达到 0.92MPa;当纳米 Fe_2O_3 添加量为 10% 时,硅橡胶复合材料的剪切强度达到 1.01MPa。

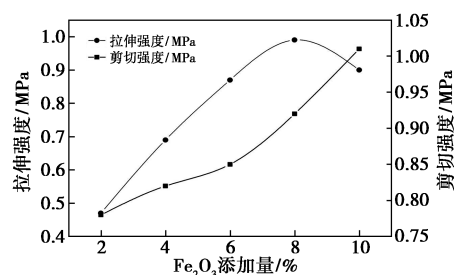


图 9 纳米 Fe_2O_3 添加量对硅橡胶复合材料力学性能的影响

结合图 8 和图 9 可知,纳米 Fe_2O_3 添加量控制在 8% 时,硅橡胶复合材料失重 5% 时的温度达 470.68℃,剪切强度可达到 0.92MPa,拉伸强度为 0.99MPa,硅橡胶复合材料的热稳定性和力学性能最佳。

3 结论

为提高硅橡胶的耐热性能和力学性能,以自制的笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷作为交联剂,乙烯基硅橡胶为基础胶,硅烷偶联剂处理的白炭黑为补强填料,硅烷偶联剂处理的纳米 Fe_2O_3 为耐热填料制备了硅橡胶复合材料。与含氢硅油相比,笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷作为交联剂,硅橡胶复合材料的初始分解温度提高了 54.43℃,且当乙烯基硅油中的 $\text{Si}-\text{Vi}$ 与笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷交联剂中 $\text{Si}-\text{H}$ 摩尔比为 1:1,白炭黑添加量控制在 20%,硅树脂添加量为 10%,纳米 Fe_2O_3 添加量控制在 8% 时,硅橡胶复合材料的耐热温度达到 470.68℃,剪切强度可达到 0.92MPa,拉伸强度为 0.99MPa。

参考文献

- [1] 刘嘉,苏正涛,栗付平.航空橡胶与密封材料[M].北京:国防工业出版社,2011:77.

- [2] 苏正涛,秦瑞祥,朱华,等.苯基硅橡胶的热空气老化性能研究[J].有机硅材料,2012,26(4):248-250.
 [3] 张玉龙,张进生.特种橡胶及应用[M].北京:化学工业出版社,2011:1-3.
 [4] 来国桥,幸松民.有机硅产品合成工艺及应用[M].北京:化学工业出版社,2010:528-530.
 [5] Fateh-Alavi K, Nunez M E, Karlsson S, et al. The effect of stabilizer concentration on the air-plasma-induced surface oxidation of crosslinked polydimethyl-siloxane[J]. Polymer degradation and Stability, 2002, 78(1): 17-25.
 [6] 孙希路,刘春霞,许鑫江,等.耐高温硅橡胶的研究进展[J].有机硅材料,2018,32(1):66-70.
 [7] 刘光勋,孙全吉,吴娜,等.交联剂对高强度缩合型室温硫化硅橡胶性能的影响[J].粘接,2014,35(8):46-48.
 [8] 方炜,蓬建星,林浩军.含氢硅油结构对硅橡胶性能的影响[J].有机硅材料,2017,31(S1):87-90.
 [9] 刘丽萍,董立杰,刘景涛,等.含氢硅油交联 RTV 硅橡胶的形态与性能[J].材料开发与应用,2008,23(5):34-37.
 [10] 王清正,谢择民,王金亭,等.硅氮化合物交联的缩合型双组分室温硫化硅橡胶的热稳定性[J].合成橡胶工业,1993,16(4):230-231.
 [11] 陈东志.笼型低聚倍半硅氧烷的合成及其在室温硫化硅橡胶中的应用[D].武汉:武汉大学,2011.
 [12] 郑传斌,王世行,李齐方.八取代二茂铁的笼型八聚(二甲基硅氧基)倍半硅氧烷的合成[J].精细化工,2008,35(6):49-52.
 [13] Agaskar P A. New synthetic route to the hydridospherosiloxanes[J]. Inorg Chem, 1991, 30(13): 2707-2708.
 [14] 赖亮庆,黄艳华,苏正涛,等.二苯醚亚苯基硅橡胶的性能研究[J].世界橡胶工业,2014,41(6):10-13.

收稿日期:2018-04-19

修稿日期:2019-06-13

(上接第 90 页)

- [9] Xie Z, Zhou W, Zhao W, et al. Synthesis, electronic structure and luminescent properties of a new red-emitting phosphor $\text{GdBiW}_2\text{O}_9:\text{Eu}^{3+}$ [J]. Chemical Physics Letters, 2017, 685: 177-184.
 [10] Jayachandiran M, Annadurai G, Kennedy S M M. Photoluminescence properties of red emitting $\text{Ba}_3\text{Bi}_2(\text{PO}_4)_4:\text{Eu}^{3+}$, phosphor for WLEDs applications [J]. Journal of Luminescence, 2018, 201: 196-202.
 [11] Li B, Wang S, Sun Q, et al. Novel high-brightness and thermal-stable $\text{Ca}_3\text{Gd}(\text{AlO})_3(\text{BO}_3)_4:\text{Eu}^{3+}$, red phosphors with high colour purity for NUV-pumped white LEDs [J]. Dyes & Pigments, 2018, 154: 252-256.
 [12] Zhang X, Zhou L, Gong M. High-brightness Eu^{3+} -doped $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$, red phosphor for NUV light-emitting diodes application [J]. Optical Materials, 2013, 35(5): 993-997.
 [13] Xie F, Dong Z, Wen D, et al. A novel pure red phosphor $\text{Ca}_8\text{MgLu}(\text{PO}_4)_7:\text{Eu}^{3+}$, for near ultraviolet white light-emitting diodes [J]. Ceramics International, 2015, 41(8): 9610-9614.
 [14] Guo H, Huang X, Zeng Y. Synthesis and photoluminescence properties of novel highly thermal-stable red-emitting $\text{Na}_3\text{Sc}_2(\text{PO}_4)_3:\text{Eu}^{3+}$, phosphors for UV-excited white-light-emitting diodes [J]. Journal of Alloys & Compounds, 2018, 741:

300-306.

- [15] Song E, Zhao W, Zhou G, et al. Luminescence properties of red phosphors $\text{Ca}_{10}\text{Li}(\text{PO}_4)_7:\text{Eu}^{3+}$ [J]. Journal of Rare Earths, 2011, 29(5): 440-443.
 [16] Yu R, Noh H M, Moon B K, et al. Synthesis and luminescence properties of a novel red-emitting phosphor $\text{Ba}_3\text{La}(\text{PO}_4)_3:\text{Eu}^{3+}$, for solid-state lighting [J]. Journal of Alloys & Compounds, 2013, 576(29): 236-241.
 [17] Kaur S, Jayasimhadri M, Rao A S. A novel red emitting Eu^{3+} doped calcium aluminosilicate phosphor for applications in w-LEDs [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2017, 697: 367-373.
 [18] Min Xin, Sun Yukun, Kong Lingti, et al. Novel pyrochlore-type $\text{La}_2\text{Zr}_2\text{O}_7:\text{Eu}^{3+}$ red phosphors: synthesis, structural, luminescence properties and theoretical calculation [J]. Dyes and Pigments, 2018, 157: 47-54.
 [19] Zhang X, Chen M, Zhang J, et al. Photoluminescence studies of high-efficient red-emitting $\text{K}_2\text{Y}(\text{WO}_4)(\text{PO}_4):\text{Eu}^{3+}$, phosphor for NUV LED [J]. Materials Research Bulletin, 2016, 73: 219-225.
 [20] Mccamy C S. Correlated color temperature as an explicit function of chromaticity coordinates [J]. Color Research & Application, 1992, 17(2): 142-144.

收稿日期:2018-05-23

修稿日期:2018-07-12