

Morfología y propiedades de politereftalato de etilen-glicol y polietileno de alta densidad

Carlos Guerrero*, Tomás Lozano**, Virgilio González*, Eliud Arroyo***

Las mezclas de polímeros consisten en la amalgama física de homopolímeros o copolímeros que en la mayoría de los casos son termodinámicamente inmiscibles. Normalmente las mezclas inmiscibles forman un sistema bifásico con una fase discontinua perfectamente visible; poseen propiedades mecánicas y físicas pobres, debido principalmente a la falta de adhesión en la interfase. Para mejorar dicha adhesión y, por ende, las propiedades de las mezclas de polímeros, se recurre a la técnica de compatibilización.

Existen diferentes métodos para realizar la compatibilización. La funcionalización de los componentes de la mezcla antes de dicho mezclado,¹⁻⁴ o la adición de un copolímero durante el mezclado⁵⁻¹¹ promueve, en muchos casos, la compatibilización en sistemas multifásicos. Recientemente se está utilizando otra técnica de compatibilización que consiste en la formación *in situ* de copolímeros interfaciales durante el mezclado en caliente.¹²⁻¹⁹

Las mezclas entre poliolefinas y politereftalato de etilen-glicol (PET) han despertado el interés de los investigadores,^{3,5,6,11,19,20} debido probablemente a que estos materiales se encuentran entre los de mayor consumo.²¹⁻²³ El PET se usa extensivamente en la industria del empaque flexible y en la electrónica; posee buenas propiedades tensiles y de impacto, buena rigidez, se imprime bien y sobre todo presenta una muy buena barrera a los gases. Por otra parte, el polietileno de alta densidad (HDPE) es también una poliolefina muy utilizada en la industria del empaque flexible y en la de moldeo por inyección; presenta una buena barrera a la humedad y sus propiedades de resistencia al impacto y a la tensión son también bastante aceptables. Por lo anterior, no sería descabellado pensar que una mezcla de estos dos materiales pueda ofrecer un

balance atractivo entre las propiedades mecánicas y de barrera. Sin embargo, al mezclarse el PET y el HDPE forman una mezcla inmiscible, por lo que antes de pensar en posibles aplicaciones comerciales es imprescindible la compatibilización de la mezcla.

En este trabajo se estudia la efectividad de un tercer componente en la mezcla, el cual actuaría como agente compatibilizante. Este material deberá ser afín a los componentes inmiscibles de la mezcla. Se seleccionó un copolímero de etileno y 6.5% en peso de ácido metacrílico, parcialmente neutralizado con zinc (nombre comercial Surlyn), debido a que se espera que haya interacciones específicas entre los grupos carboxílicos del ácido metacrílico y los carbonilos del PET. Es de esperarse que también los segmentos olefinicos del Surlyn posean una cierta afinidad con el HDPE.

La figura 1 muestra el tipo de interacción mencionada en líneas anteriores. Se analizó la compatibilidad de la mezcla mediante la aplicación de técnicas analíticas como espectroscopia infrarroja (IR) y calorimetría diferencial de barrido (DSC), técnicas microscópicas como la electrónica de barrido (SEM). También se analizó el comportamiento mecánico de la mezcla.

Procedimiento experimental

Materiales

Los componentes principales en este estudio fueron PET (86N de KoSa) y HDPE (PEAD 60120 de

* Facultad de Ingeniería Mecánica y Eléctrica, UANL.

** Facultad de Ciencias Químicas, UANL.

*** Semáforos S.A de C.V.

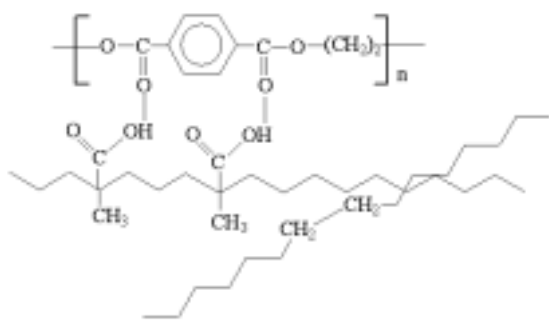


Fig. 1. Tipo de interacción esperada entre los grupos carboxílicos del Surlyn y los grupos carbonilos del PET. La parte olefínica del Surlyn también puede interactuar con el HDPE

PEMEX). El PET utilizado es una resina que se emplea para el moldeo por sopleo y posee las propiedades siguientes: índice de fluidez, MFI, de 12.3 g/10min evaluado a 270°C y bajo un peso de 2.16 kg, viscosidad intrínseca de 0.81 dl/g, peso molecular promedio en número (Mn) de 14155 y peso molecular promedio (Mw) de 69039. El HDPE es un homopolímero empleado en moldeo por inyección y con una distribución de peso molecular amplia. Sus propiedades son: MFI = 12.0 g/10min (190°C/2.16Kg), Mn = 6087 y Mw = 73532. El agente compatibilizante es un copolímero de etileno y 6.5% en peso de ácido metacrílico parcialmente neutralizado con zinc (Surlyn 1652 de DuPont). Todas las resinas se obtuvieron de proveedores mexicanos.

Preparación de la mezcla

Antes de la operación de mezclado, los materiales se secaron al vacío durante toda la noche a una temperatura de 90°C. El mezclado se llevó a cabo en un mezclador intensivo Haake de 50 ml de capacidad. Inicialmente los gránulos de las resinas se mezclaron en seco para después alimentarse a la cámara del mezclador, en donde se funden y mezclan usando rotores tipo "roller". Una prueba de mezclado típica consiste de las etapas siguientes: la mezcla de gránulos se introduce a la cámara de mezclado, la cual se encuentra a 270°C y con los rotores girando a una velocidad de 50 revoluciones por minuto. Una vez que se introduce toda la carga, la operación de mezclado se lleva a cabo por al menos 300 segundos, tiempo que se necesita para que se establezca la señal de torque. Final-

mente, la masa ya mezclada se muele y se pulveriza en un molino de cuchillas marca Brabender. Se realizaron pruebas con 2.5, 5.0 y 7.5 por ciento en peso de Surlyn en la mezcla, con la intención de establecer la cantidad adecuada de agente compatibilizante en la mezcla. El porcentaje se fijó tomando como base la masa total de la mezcla. Las observaciones realizadas acerca de la morfología de las mezclas, básicamente homogeneidad y tamaño de la fase dispersa, mostraron que 7.5% en peso de Surlyn (alrededor de 7% en peso neto) fue suficiente para lograr una buena compatibilización de la mezcla PET-HDPE. Contando con esto, los experimentos siguientes se realizaron con esta concentración de Surlyn constante. La tabla I muestra la composición de las muestras analizadas.

Tabla I. Composición de las mezclas analizadas (% peso)

PET	75	75	50	50	25	25
HDPE	25	25	50	50	75	75
Surlyn	0	7.5	0	7.5	0	7.5

Espectroscopia de infrarrojo, IR

El análisis por IR (Nicolet 710 FTIR) de los componentes puros y de las mezclas se llevó a cabo en películas delgadas obtenidas mediante moldeo por compresión. Los resultados son un promedio de al menos 50 barridos realizados con una resolución de 2 cm⁻¹.

Calorimetría Diferencial de Barrido, (DSC)

Las temperaturas de transición de los componentes puros y de las mezclas se determinaron con un DSC (Perkin Elmer, DSC-7). Las muestras de 10 a 15 mg se calentaron dos veces a una velocidad de 10°C/min. El primer calentamiento se efectuó con la intención de borrar la historia térmica de la muestra. Las mediciones corresponden a los datos obtenidos en el segundo calentamiento. La cristalinidad del PET y del HDPE se determinó midiendo el área bajo la curva de los picos de fusión correspondientes a cada material. Para los cálculos se utilizaron los valores reportados de 120 J/g como calor de fusión del PET 100% cristalino²⁴ y de 291 J/g para

el HDPE igualmente 100% cristalino.²⁵

Microscopía Electrónica de Barrido, SEM

Para el análisis de la morfología de las mezclas se utilizó un microscopio electrónico de barrido (LEO Stereoscan 440). Previamente a la observación las muestras se fracturaron en nitrógeno líquido para después recubrirse con una capa fina de oro-paladio.

Propiedades mecánicas

Para realizar las pruebas de tensión se siguió el estándar ASTM D638, mientras que para medir la resistencia al impacto Izod se siguió el ASTM D256. Los valores reportados para todas las propiedades corresponden al promedio de cinco mediciones. Las pruebas se realizaron sin ningún acondicionamiento de las muestras.

Resultados y su discusión

La figura 2 muestra algunas de las mediciones del torque que fue necesario aplicar para mezclar los componentes a las diferentes composiciones analizadas, ya sea con Surllyn o sin él. Se aprecia que en todos los casos, al alcanzar el equilibrio, las mezclas compatibilizadas requirieron un torque mayor. Está ampliamente reportado²⁶ que una mezcla incompatible, caracterizada por la falta de interacción entre las fases, exhibe frecuentemente deslizamientos de tipo interlaminar, lo cual promueve una reducción en la viscosidad de la mezcla. El aumento en el torque de mezclado y por ende, de la viscosidad de las mezclas que se observa en la figura 2, es indicativo de que existe una disminución en el deslizamiento de las capas en la interfase, lo cual es resultado directo de la adición del Surllyn. Esto sugiere la existencia de interacciones específicas en la interfase de los dos componentes poliméricos.^{13,19}

Los espectros de infrarrojo de las mezclas compatibilizadas y no compatibilizadas se muestran en la figura 3. En las muestras ternarias se observa un ensanchamiento de la banda del grupo carbonilo del PET, alrededor de los 1725 cm^{-1} , el cual se hace más evidente en la mezcla que posee más PET, (figura 3a). El desplazamiento hacia las bajas frecuencias de las bandas representativas de algunos grupos funcionales, acompañado usualmente de un incremento de intensidad y de un ensanchamiento

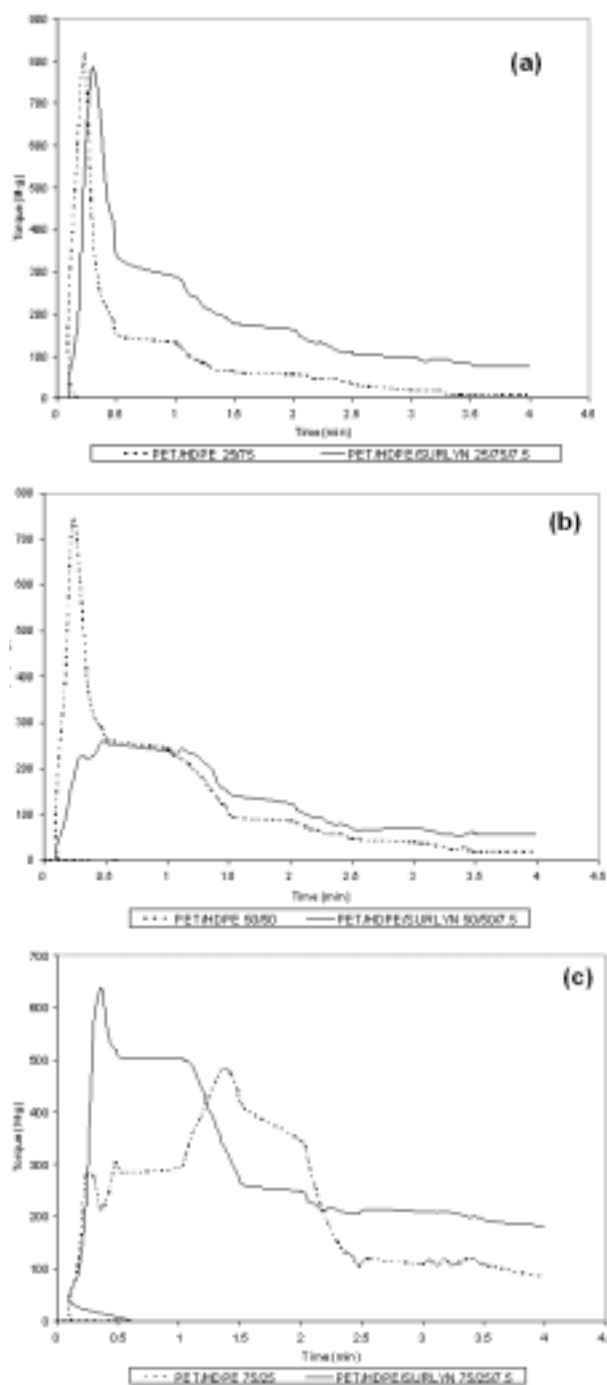


Fig. 2. Medición del torque durante el proceso de mezclado.

de la banda, es indicativo de la existencia de puentes de hidrógeno.²⁷ De acuerdo a lo anterior, el aumento en el ancho de la banda del carbonilo del PET que se da cuando se añade el Surllyn a la mez-

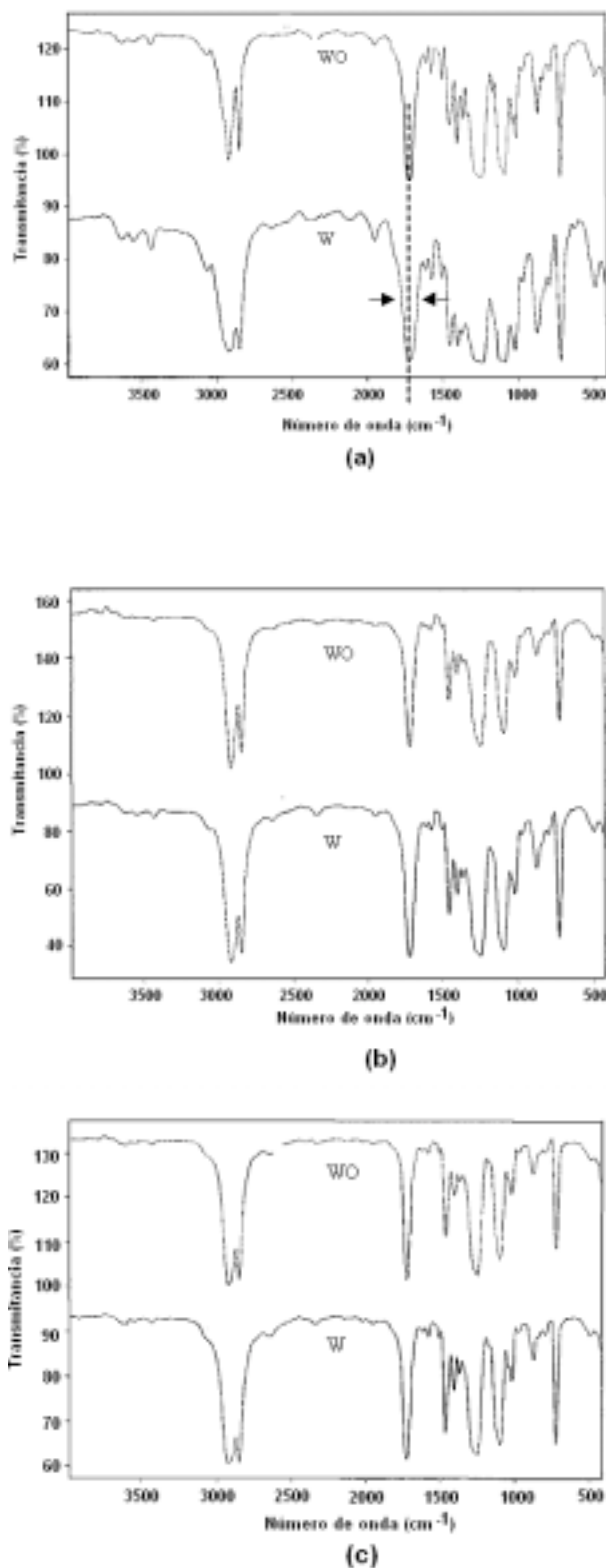


Fig. 3. Espectro de infrarrojo de las mezclas. (a) 75/25 PET/HDPE, (b) 50/50 PET/HDPE, (c) 25/75 PET/HDPE. WO sin Surlyn, W con 7.5% de Surlyn

cla se puede atribuir a la aparición de puentes hidrógeno entre este grupo funcional y los OH del grupo carboxílico del Surlyn. Es de esperarse que cuando el contenido de PET en la mezcla disminuya, disminuirán también las posibilidades de interacción, ya que la concentración de los grupos carbonilo será menor. Esto se ve claramente en la figura 3c, donde se presenta una mezcla que contiene sólo 25% en masa de PET, no apreciándose prácticamente ningún cambio en el ancho de la banda en cuestión.

En relación con las curvas térmicas, éstas se muestran en la figura 4. Cada curva de fusión está caracterizada por la existencia de dos picos: uno alrededor de los 130°C, correspondiendo al punto de fusión del HDPE, y el otro cerca de los 247°C, correspondiendo éste al del PET. En las mezclas compatibilizadas se pueden apreciar corrimientos hacia las bajas temperaturas, tanto para el punto de fusión del PET como para el del HDPE. Ver los datos reportados en la tabla II. Para contenidos superiores al 50% de PET se observa un corrimiento de hasta 3°C, mientras que para el HDPE se observa sólo un desplazamiento de 2.6°C, también para contenidos mayores del 50% de esta resina. Este comportamiento se ha reportado como indicativo de compatibilidad entre los componentes.²⁸ El grado de cristalinidad para cada componente en la mezcla (1-1), evaluado como la entalpía de fusión medida, normalizada con respecto al contenido de cada componente y dividida entre la entalpía de fusión teórica, considerando un 100% de cristalinidad del componente, se reporta en la tabla II y muestra una reducción para el caso del PET, mientras que para composiciones mayores de 50% de HDPE aumenta ligeramente. Este comportamiento se puede explicar considerando que la cristalización del PET se ve inhibida por la presencia del Surlyn. Dado que esto es más evidente para altos contenidos de PET en la mezcla, se infiere que las interacciones más fuertes existen entre el PET y el Surlyn, confirmándose de esta otra manera los resultados de la espectroscopia infrarroja.

La reducción drástica del grado de cristalinidad que se da para bajos contenidos de HDPE se debe también probablemente a algún tipo de interacción entre las poliolefinas seguramente a través del Surlyn, no siendo esto detectado mediante el FTIR, debido quizás a las condiciones a las que fueron efectuadas las mediciones. El aumento en el grado

Tabla II. Comportamiento térmico de las mezclas PET/HDPE

Composición de las mezclas	Cambio en temperatura de fusión $\Delta T = (T_{m,wo} - T_{m,w}), ^\circ C$		Cambio en grado de cristalinidad $\Delta \lambda = (1-\lambda)_{wo} - (1-\lambda)_w, \%$	
	PET	HDPE	PET	HDPE
75/25	2.93	0.29	3.42	10.22
50/50	3.05	2.80	-0.54	-1.92
25/75	1.31	2.66	1.05	-2.27

T_m = temperatura de fusión, $(1-\lambda)$ = grado de cristalinidad. Subíndices: WO = sin Surlyn, W = con 7.5% de Surlyn

de cristalinidad del HDPE, para composiciones arriba del 50% de ese material, se puede explicar considerando que el Surlyn actúa como agente nucleante, acelerando la cristalización del polietileno.

La superficie de fractura de las muestras binarias, previamente sumergidas en nitrógeno líquido, se muestra en la figura 5. En todos los casos los dominios de la fase dispersa son de forma esférica, no habiendo evidencia de adhesión entre la fase menor y la matriz, ya que la superficie de las partículas dispersas se ve perfectamente limpia. Las cavidades que se presentan en la matriz se deben principalmente al desprendimiento de partículas de la fase menor, las cuales estaban unidas sólo por fuerzas mecánicas, siendo por tanto la adherencia muy débil. La adición del Surlyn a las mezclas binarias produce cambios notables en su morfolo-

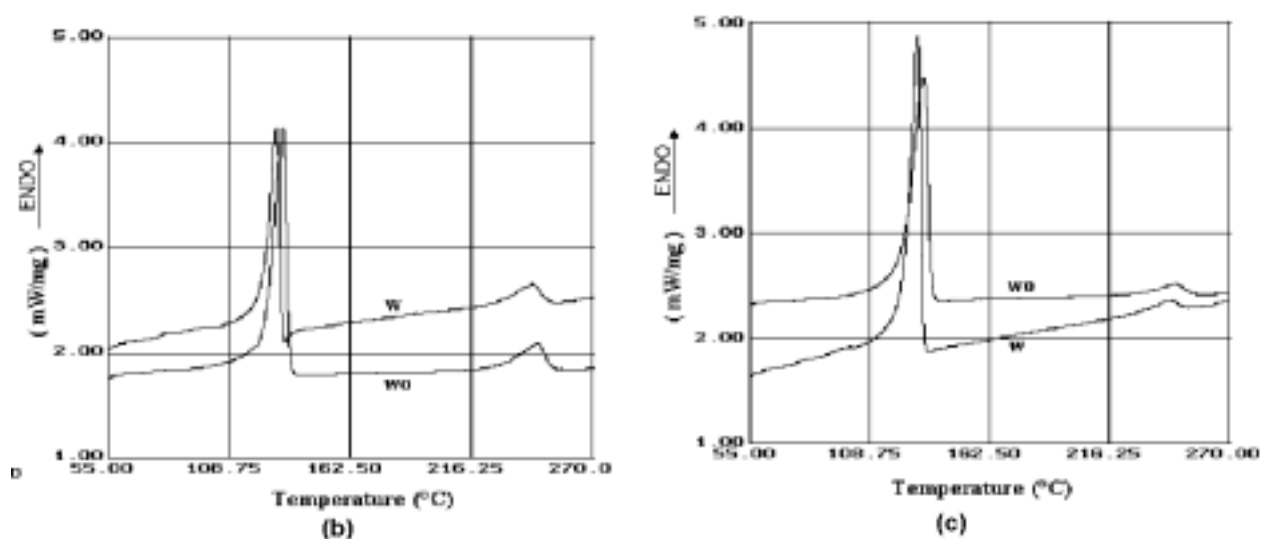
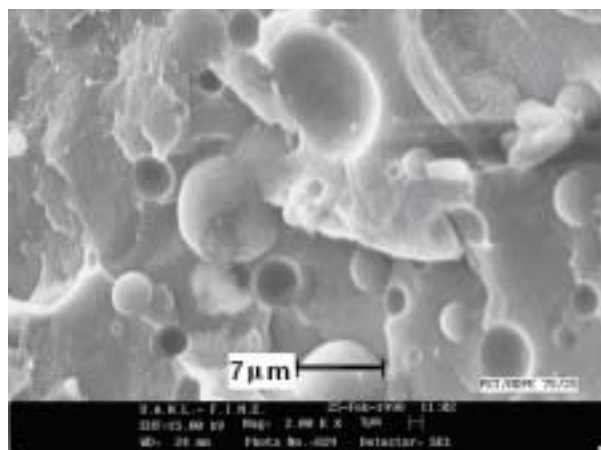
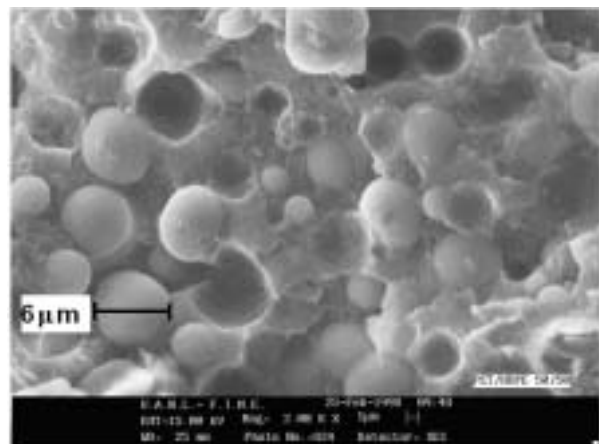


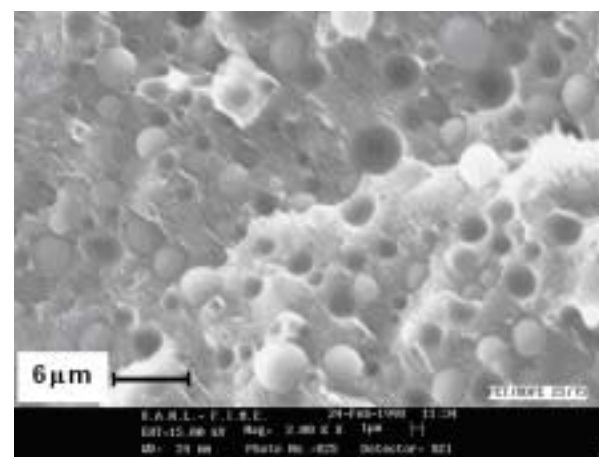
Fig. 4. Curvas térmicas de las mezclas. (a) 75/25 PET/HDPE, (b) 50/50 PET/HDPE, (c) 25/75 PET/HDPE. WO sin Surlyn, W con 7.5% de Surlyn.



(a)



(b)



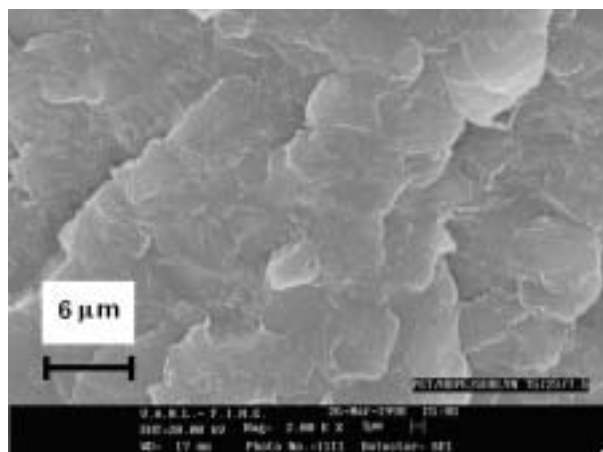
(c)

Fig. 5. Micrografías de las mezclas no compatibilizadas obtenidas con el SEM. 75/25 PET/HDPE, (b) 50/50 PET/HDPE, (c) 25/75 PET/HDPE

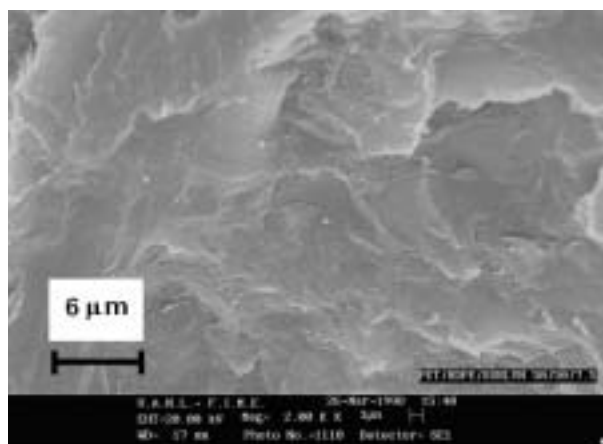
gía (figura 6). En ella se muestra que la dimensión de las partículas que forman la fase dispersa ha disminuido a tal grado que ahora la apariencia es homogénea. Este comportamiento está en perfecta concordancia con los resultados obtenidos del grado de cristalinidad. Conclusión: es evidente que la presencia del Surlyn en la mezcla mejora la adhesión entre las dos fases. Para identificar la fase dispersa se evaluó la relación O_2/C en ambas fases, mediante espectroscopia de rayos X. Como se observa en la figura 1, el PET posee oxígeno en su estructura química mientras que el HDPE no, por lo que aquella fase cuya relación O_2/C sea mayor deberá corresponder al PET. La figura 7a presenta el espectro de la fase continua de la mezcla 50/50 HDPE/PET para la cual la relación O_2/C es de 0.19, mientras que la figura 7b presenta el espectro correspondiente a la fase dispersa, siendo ahora $O_2/C = 0.47$. En base a esta relación podemos establecer que, para la mezcla 50/50, la fase dispersa corresponde al PET.

Se aplicó el mismo procedimiento a las mezclas con las otras composiciones, obteniéndose para la mezcla 75/25 PET/HDPE una relación O_2/C de 0.5 y 0.11 para las fases continua y dispersa, respectivamente, mientras que para la mezcla 25/75 PET/HDPE los valores fueron 0.28 para la fase continua y 0.53 para la dispersa. Entonces, para la primera mezcla la fase dispersa es el HDPE, mientras que éste forma la fase continua para la mezcla 25/75 PET/HDPE.

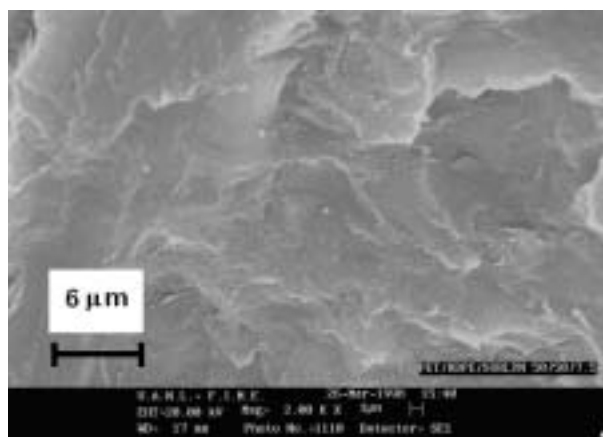
Las propiedades mecánicas de la mezcla 75/25 PET/HDPE se reportan en la tabla III. Se puede observar rápidamente que al mezclar los dos componentes se obtiene una mezcla bastante frágil, cayendo el valor de la elongación a valores muy bajos. Esta fragilidad se atribuye a la falta de adhesión entre las dos fases. Por el contrario, la resistencia a la tensión de la mezcla binaria se encuentra en un valor intermedio con respecto al de los componentes puros. La adición del 7.5% de Surlyn mejora sustancialmente el porcentaje de elongación de la mezcla, pasando de 2.6% a 41.5%, siendo este último el doble del encontrado para el PET puro. Esto permite que la mezcla ternaria tenga ahora una capacidad de deformación plástica elevada, por lo que su resistencia al impacto Izod se verá afectada en la misma dirección. En efecto, la resistencia al impacto es ahora casi el doble de la que tenía la mezcla sin el Surlyn, siendo mayor que la de los



(a)



(b)



(c)

Fig. 6. Micrografías de las mezclas compatibilizadas (7.5% Surlyn) obtenidas con el SEM. 75/25 PET/HDPE, (b) 50/50 PET/HDPE, (c) 25/75 PET/HDPE

componentes puros. Sin embargo, cuando se agrega el Surlyn, la resistencia a la tensión de la mezcla y el módulo elástico disminuyen ligeramente. Este comportamiento puede explicarse, suponiendo que en la mezcla hay un exceso de Surlyn, saturándose la interfase con este compuesto. Se ha reportado^{7,14,29} que este exceso del agente compatibilizante puede conducir al comportamiento inverso en las propiedades mecánicas. Los resultados encontrados acerca de las propiedades mecánicas, en particular el comportamiento de la elongación y de la resistencia al impacto, confirman el rol de agente compatibilizante del Surlyn en las mezclas PET-HDPE.

Conclusiones

Los resultados de la espectroscopia de infrarrojo en las mezclas compatibilizadas muestran un ensanchamiento de la banda del grupo carbonilo del PET, siendo atribuido esto a la existencia de puentes de hidrógeno entre este grupo funcional y el grupo carboxílico del Surlyn. Los desplazamientos de los puntos de fusión hacia las bajas temperaturas de los componentes principales en la mezcla ternaria sugieren interacciones no sólo entre el PET y el Surlyn, sino también entre el HDPE y el Surlyn. Las microfotografías de las mezclas compatibilizadas muestran una morfología mucho más homogénea que la presentada por las no compatibilizadas. Finalmente, el aumento en el porcentaje de elongación y en la resistencia al impacto de las mezclas ternarias conducen a la conclusión de que el Surlyn actúa realmente como agente compatibilizante entre el PET y el HDPE.

Agradecimientos

Los autores expresan su gratitud al Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACyT) y al Programa de Apoyo a la Investigación Científica y Tecnológica de la Universidad Autónoma de Nuevo León (PAICyT) por el apoyo financiero a este trabajo (proyectos 28188-U y CA082, respectivamente). Se agradece también a la Compañía KoSa por haber facilitado en forma gratuita la resina PET.

Resumen

Se estudiaron mezclas de politereftalato de etilen-

Tabla III. Adición de 7.5 % de Surlyn y su efecto sobre las propiedades mecánicas de la mezcla 75/25 PET/HDPE.

	Módulo elástico (MPa)	Resistencia a la tensión (MPa)	Elongación a la ruptura (%)	Resistencia al impacto Izod (J/m)
PET	2406 ± 192	57.8 ± 0.2	20 ± 1.6	29.1 ± 1.9
HDPE	1307 ± 46	24.5 ± 0.4	628 ± 102	31.2 ± 1.6
PET/HDPE	2122 ± 189	47.2 ± 1.6	2.6 ± 0.2	27.2 ± 1.6
PET/HDPE/Surlyn	1722 ± 80	42.7 ± 0.5	41.5 ± 1.8	49.3 ± 3.1

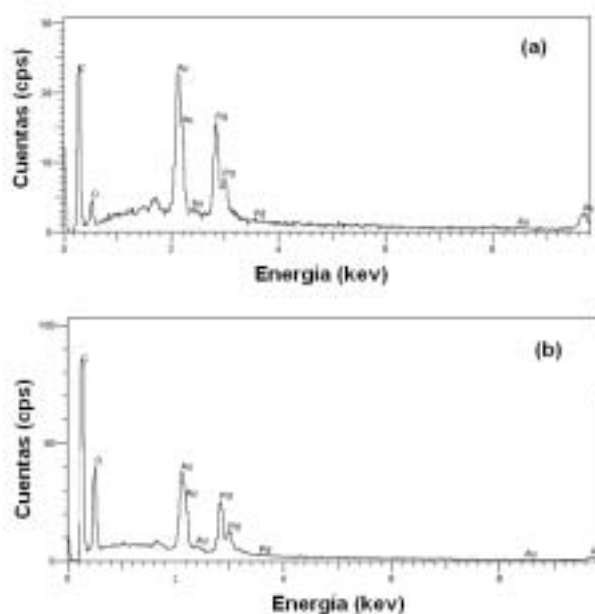


Fig. 7. Espectro de rayos X para la mezcla 50/50 PET/HDPE. (a) Fase continua, (b) Fase dispersa.

glicol, PET y polietileno de alta densidad, HDPE, con y sin agente compatibilizante. Ambos materiales se usan ampliamente en la industria de bebidas carbonatadas. El agente compatibilizante que se usó fue un copolímero de etileno y ácido metacrílico parcialmente neutralizado con zinc (Surlyn). Como hipótesis se planteó que el segmento olefínico del Surlyn podría ser compatible con el HDPE, mientras que los grupos carboxílicos del Surlyn serían afines con los grupos carbonilos del PET. La efectividad del agente compatibilizante se evaluó usando técnicas diferentes, entre las cuales se pueden mencionar la espectroscopia de infrarrojo, la calorimetría diferencial de barrido, la microscopía electrónica de barrido y la determinación de propiedades mecánicas.

Palabras clave: Mezclas, Compatibilización, Morfología, PET, HDPE, Surlyn.

Abstract

Blends of polyethylene-terephthalate (PET) and high density polyethylene, (HDPE) with and without compatibilizing agent have been studied. Both materials are widely used in the soft drink bottle industry. The compatibilizing agent was a copolymer of ethylene and methacrylic acid partially neutralized with zinc (Surlyn). The olefinic segment of Surlyn will be compatible with HDPE, whereas the Surlyn carboxylic acid groups will be affine with PET carbonyl groups. The effectiveness of the compatibilizing agent was evaluated using different techniques, such as infrared spectroscopy, differential scanning calorimetry, scanning electron microscopy and mechanical properties.

Keywords: Blends, Compatibilization, Morphology, PET, HDPE, Surlyn.

Referencias

1. Chen, J. C.; Harrison, I. R. *Polym Eng Sci* 1998, 38, 371.
2. Chappleau, N.; Favis, B. D.; Carreau, P. J. *Society of Plastics Engineers Annual Technical Conference Proceedings* 1997, Toronto, Canada.
3. Macaúbas, P. E. P.; Demarquette, N. R. *Society of Plastics Engineers Annual Technical Conference Proceedings* 1999, New York, USA.
4. Ning, P.; Ko, T. *Polym Eng Sci* 1997, 37, 1226.
5. Lozano, T.; Guerrero, C. *Society of Plastics*

- Engineers Annual Technical Conference Proceedings 1999, New York, U.S. A.
6. McLoughlin, K. M.; Elliott, S. J.; Townsend IV, E.B. Society of Plastics Engineers Annual Technical Conference Proceedings 1999, New York, USA.
 7. Sciamanna, R.; Albano, C.; Arribas, G. Society of Plastics Engineers Annual Technical Conference Proceedings 1999, New York, USA.
 8. La Mantia, F. P.; Scaffaro, R.; Magagnini, P. L.; Paci, M.; Chiezzi, C.; Sek, D.; Minkova, L. I.; Miteva, TS. *Polym Eng Sci* 1997, 37, 1164.
 9. Matos, M. E.; Rosales, C.; Muller, A. J.; Favis, B. D. Society of Plastics Engineers Annual Technical Conference Proceedings 1997, Toronto, Canada.
 10. Cigana, P.; Favis, B. D.; Jerome, R. *J Polym Sci Polym Phys Ed B* 1996, 34, 1691.
 11. Márquez, L.; Gambus, D. E.; Romero-Rato, M. P.; Sabino, M.A. Society of Plastics Engineers Annual Technical Conference Proceedings 1999, New York, US A.
 12. Lacroix, C.; Bousmina, M.; Carreau, P. J.; Favis, B. D. *Polymer* 1996, 37, 2939.
 13. Dagli, S. S.; Kamdar, K. M. *Polym Eng Sci* 1994, 34, 1709.
 14. Willis, J. M.; Caldas, V.; Favis, B. D. *J Materials Sci* 1991, 26, 4742.
 15. Willis, J.M.; Favis, B. D.; Lavallé, C. *J Materials Sci* 1993, 28, 1749.
 16. Favis, B. D. *Polymer Comm* 1994, 35, 1552.
 17. Legros, A.; Carreau, P. J.; Favis, B. D.; Michel, A. *Polymer* 1997, 38, 5085.
 18. Tremblay, A.; Tremblay, S.; Favis, B. D.; Selmani, A.; L'Espérance, G. *Macromolecules* 1995, 28, 4771.
 19. Yao, L.; Beatty, C. Society of Plastics Engineers Annual Technical Conference Proceedings 1997, Toronto, Canada.
 20. Sambaru, P.; Jabarin, S. A. *Polym Eng Sci* 1993, 33, 827.
 21. APME, *Revista Plásticos Modernos* 1996, 72, 673.
 22. Vargas, L. *Revista Plásticos Modernos* 1996, 72, 290.
 23. Colvin, R.; Moore, S.; O'Neill, M. *Modern Plastics* 1998, 75, 51.
 24. Ar'ev, A. M.; Sotnikov, A. V. *Vysokomol. Soedin* 1970, A12, 1799: Translated in *Polym Sci USSR* 1970, 12, 2040.
 25. Brandrup, J.; Immergut, E. H. *Polymer Handbook*; Wiley: New York, 1975.
 26. Willis, J. M.; Favis, B. D. *Polym Eng Sci* 1988, 28, 1416.
 27. Silverstein, R. M.; Webster, F. X. *Spectrometric Identification of Organic Compounds*; Wiley: New York, 1998.
 28. Utracki, L. A. *Polymer Alloys and Blends*; Hanser: Munich, 1989.
 29. Horák Z.; Fort V.; Hlavatá D.; Lednický, Vecerka F. *Polymer* 1996, 37, 65.