

# 聚甲基/丙烯酸甲酯@二氧化硅@铝颜料 增强 PVC 树脂力学性能

陈颖<sup>1</sup>, 翟多多<sup>1</sup>, 李晓斌<sup>1</sup>, 胡程程<sup>1</sup>, 陈祥迎<sup>1\*</sup>, 韩夏<sup>2</sup>

(1.合肥工业大学化学与化工学院,安徽合肥 230009; 2.安徽澳雅合金有限公司,安徽阜阳 236200)

**摘要:**铝颜料经硅烷偶联剂 KH570、正硅酸乙酯 (TEOS)、聚甲基丙烯酸酯 (PMMA) 和聚丙烯酸酯 (PMA) 有机-无机复合包覆之后,与聚氯乙烯 (PVC) 及其他助剂通过熔融共混法制备出 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料。通过正交试验得到原位聚合包覆聚酯 (PA) 的最佳条件是:在 80℃ 下加入 0.5 g 甲基丙烯酸甲酯 (MMA)、0.5 g 丙烯酸甲酯 (MA) 和 0.01 g 偶氮二异丁腈 (AIBN),该条件下得到的 PA@SiO<sub>2</sub>@Al 复合铝颜料的耐腐蚀性能最强,缓蚀效率高达 100%。PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的断裂伸长率、拉伸强度和硬度随着表面包覆效果的改善呈增大的趋势,可分别达到最佳值 636.87%、12.03 MPa 和 84.7°,与未添加铝颜料的 PVC 材料相比分别提高 123.82%、91.87% 和 15.71%。TG 分析结果表明,PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的耐热性能有一定提高。

**关键词:**铝颜料;聚氯乙烯;复合材料;增强;析氢;力学性能

中图分类号:TQ624

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2019)07-0143-05

DOI:10.16606/j.cnki.issn.0253-4320.2019.07.030

## Mechanical properties of PVC resin enhanced by polymethyl/acrylate@silica@aluminum pigment

CHEN Ying<sup>1</sup>, ZHAI Duo-duo<sup>1</sup>, LI Xiao-bin<sup>1</sup>, HU Cheng-cheng<sup>1</sup>, CHEN Xiang-ying<sup>1\*</sup>, HAN Xia<sup>2</sup>

(1.School of Chemistry and Chemical Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China;

2.Anhui Aoya Alloy Co., Ltd., Fuyang 236200, China)

**Abstract:** PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC composites are prepared by melt blending PVC with other additives and aluminum pigment that are firstly coated by silane coupling agent (KH570), tetraethoxysilane (TEOS), polymethyl methacrylate (PMMA) and polymethyl acrylate (PMA). Through orthogonal tests, the optimal conditions for in-situ polymerization to coat with PA are gained that the adding amount of methyl methacrylate (MMA), methyl acrylate (MA) and azodiisobutyronitrile (AIBN) are 0.5 g, 0.5 g and 0.01 g, respectively and the temperature is set at 80°C. PA@SiO<sub>2</sub>@Al composite aluminum pigment coated under these conditions has the strongest corrosion resistance, with a corrosion inhibition efficiency as high as 100%. The elongation at break, tensile strength and hardness of PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC composite material exhibits a rising trend with the improvement of surface coating effect, achieving 636.87%, 12.03 MPa and 84.7° respectively for the best value, which increases by 123.82%, 91.87% and 15.71% compared with the PVC material without addition of composite aluminum pigment. TG analysis shows that the heat resistance of PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC composites is improved to a certain extent.

**Key words:** aluminum-based pigment; polyvinyl chloride; composites; reinforcement; hydrogen evolution; mechanical properties

铝颜料是一种具有银灰色金属光泽的金属颜料,具有优良的光学特性、遮盖特性等<sup>[1-3]</sup>,广泛应用于塑料加工、油墨、航空航天等行业<sup>[4-6]</sup>。然而,由于铝与酸、碱或水易发生反应,破坏其金属光泽,甚至引发爆炸的危险<sup>[7-8]</sup>;且铝与有机聚合物相容性较差,难以应用于塑料加工业。铝颜料的无机包覆相容性差;有机物包覆铝颜料的耐腐蚀性能差,且结合力弱,得到的包覆层结构不稳定<sup>[9-11]</sup>。而有机-无机复合包覆铝颜料具有优良的光泽度和耐酸碱性能,且增强了铝颜料与涂层的附着力。

在塑料工业中,直接将铝颜料与热塑性树脂加

工成塑料制品,解决了铝颜料作为金属漆使用时的缺点,同时树脂的复合材料将有机聚合物的密度低、柔韧性好等特点与无机粒子硬度大、不易变形、耐热性好等优点结合起来,提高了复合材料的导热性能、介电性能及力学性能等<sup>[12-16]</sup>。

采用溶胶-凝胶与原位聚合相结合的方法对铝颜料进行有机-无机双层复合包覆,将 SiO<sub>2</sub> 包覆与聚酯包覆相结合,前者增强铝颜料的耐腐蚀性能,后者改善铝颜料与树脂的相容性;进一步将包覆 SiO<sub>2</sub> 和聚酯的铝颜料与 PVC 树脂复合制备出 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料,通过拉伸试验和硬度测试,探

收稿日期:2018-10-30;修回日期:2019-05-10

基金项目:安徽省科技重大专项计划项目(16030901042)

作者简介:陈颖(1994-),女,硕士生,主要研究方向为铝颜料的表面改性研究,chenying6228@yeah.net;陈祥迎(1976-),男,博士,教授,主要研究方向为铝颜料的改性研究,通讯联系人,chenxy@hfut.edu.cn。

究了铝颜料的包覆效果对 PVC 树脂的力学性能的影响。

## 1 实验材料及方法

### 1.1 原料

片状铝颜料,工业级,安徽澳雅合金有限公司生产;PVC 粉,工业级,台塑工业(宁波)有限公司生产;正硅酸乙酯(TEOS)、硅烷偶联剂 KH570、乙醇、邻苯二甲酸二辛酯(DOP),分析纯,国药集团化学试剂有限公司生产;硬脂酸钙、硬脂酸锌,化学纯,国药集团化学试剂有限公司生产;甲基丙烯酸甲酯(MMA)、丙烯酸甲酯(MA)、偶氮二异丁腈(AIBN)、*N*-甲基吡咯烷酮(NMP),分析纯,阿拉丁化学试剂有限公司生产。

### 1.2 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的制备及表征

#### 1.2.1 PA@SiO<sub>2</sub>@Al 的制备

将 2 g 铝颜料和 20 mL 乙醇加到 250 mL 三口烧瓶中并搅拌,然后升温至 40℃,同时滴加乙醇稀释的 TEOS 和乙醇稀释的氨水及水。滴加完毕后,在 40℃ 下反应 12 h;继续滴加 KH570 和水的混合溶液,在 40℃ 下反应 2 h,结束后对样品进行抽滤、干燥即得到单层包覆 SiO<sub>2</sub> 铝颜料 PS-0。

将制得的单层包覆铝粉 PS-0 和 50 mL 乙醇搅拌 30 min,升至一定温度,按质量比 1:1 将 MMA 与 MA 配成混合溶液,然后再取不同质量分数的 AIBN(占 MMA 和 MA 总质量比),先用少量 NMP 溶解,再加 10 mL 乙醇,逐滴加入,搅拌一段时间后停止加热,抽滤干燥即得有机-无机双层包覆铝粉。实验选择 L<sub>9</sub>(3<sup>4</sup>) 正交试验表,影响因素为:MMA/MA 用量、AIBN 用量、反应温度。以上各个因素的水平, MMA/MA 的质量:0.25、0.50、0.75 g;反应温度:60、70、80℃;反应时间:4、5、6 h。按照正交表 1 进行正交试验,铝颜料分别命名为 PS-0、1、2...9,聚甲基丙烯酸酯(PMMA)和聚丙烯酸酯(PMA)简称聚酯(PA)。

#### 1.2.2 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的制备

取 50 g PVC 粉、25 g DOP、0.375 g 硬脂酸钙、0.125 g 硬脂酸锌混合均匀,再取质量为 PVC 粉质量 0.1% 的上述单层包覆铝颜料及双层包覆铝颜料,继续混合均匀,将混料在双辊混炼机上于 120℃ 混炼 5 min,制成软质 PVC 复合树脂,命名为 PVC-1、2、3...9。

### 1.3 析氢测试

取 0.5 g 铝颜料置于锥形瓶种,加入 20 mL

0.5 mol/L 的盐酸,用排水集气法收集产生的 H<sub>2</sub>,每隔 1 h 记录 1 次滴定管的刻度,测量 48 h 的析氢量。用缓蚀效率  $\eta$  表示铝颜料的耐腐蚀性能<sup>[17]</sup>,其计算式为:

$$\eta = [(V_0 - V)/V_0] \times 100\%$$

其中:V<sub>0</sub> 和 V 分别为包覆前和包覆后铝颜料所产生的 H<sub>2</sub> 的体积。

### 1.4 拉伸性能测试

按照国家标准 GB/T 1040—92 塑料、薄膜拉伸性能试验方法,拉伸速率为 100 mm/min,试样为哑铃型,样条尺寸为(140±0.2)mm×(15±0.2)mm×(1.0±0.2)mm。每个 PVC 树脂制成 3 个样条进行测试,测试 3 次取平均值。

### 1.5 硬度测试

按照国家标准 GB/T 2411—1980 塑料邵氏硬度试验方法,利用 LX-A 型橡塑邵氏 A 硬度计测试硬度。试样尺寸(60±0.2)mm×(60±0.2)mm,每个试样选取 5 个点测试,取平均值。

## 2 结果与讨论

### 2.1 PA 与 SiO<sub>2</sub> 双层包覆铝颜料的理论基础

铝颜料表面有大量羟基的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 层。利用具有 RSi(OR')<sub>3</sub> 结构的硅烷偶联剂 KH570(其中 R 为具有 C=C 不饱和双键的有机基团)与 TEOS 为共同前驱体,在碱催化下水解产生羟基,并与铝颜料表面的羟基脱水缩合,形成稳定的 Si—O—Al 键,在铝颜料表面形成无机网络结构,此时铝颜料可以参与有机聚合反应<sup>[18]</sup>;在加热条件下,引发剂 AIBN 分解产生自由基, MMA、MA 单体以及硅烷偶联剂的 C=C 双键被打开,铝颜料表面的 R 基团可以与含有 C=C 双键的 MMA 和 MA 共聚<sup>[19]</sup>,从而在包覆 SiO<sub>2</sub> 的铝颜料的表面又包覆了一层聚酯膜,表层的有机聚合物以共价键与内部铝颜料粒子相连,结合力较强。PA@SiO<sub>2</sub>@Al 形成过程机理见图 1。

### 2.2 PA@SiO<sub>2</sub>@Al 的 FT-IR 分析

PS-0 和 PS-5 铝颜料的 FT-IR 谱图如图 2 所示。由图 2 中谱线 1 可以看出,788.09 cm<sup>-1</sup> 附近出现的吸收峰是 Si—O—Si 的弯曲振动吸收峰;950 cm<sup>-1</sup> 附近出现的吸收峰是 Si—OH 的弯曲振动<sup>[20]</sup>。从图 2 中谱线 2 可以看出,3 500 cm<sup>-1</sup> 出现的是—OH 的伸缩振动峰,是由铝颜料表面吸附的水分子的振动所引起的;2 950 cm<sup>-1</sup> 附近出现的是—CH<sub>3</sub> 和—CH<sub>2</sub>—的振动吸收峰;1 650 cm<sup>-1</sup> 附近出现强的吸收峰是酯基的 C=O 伸缩吸收峰;1 170 cm<sup>-1</sup> 处出

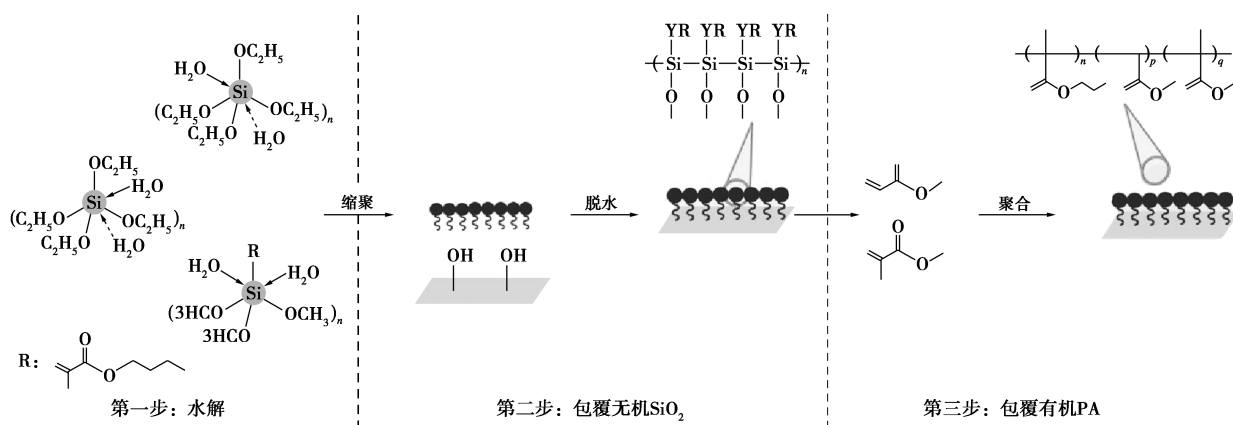
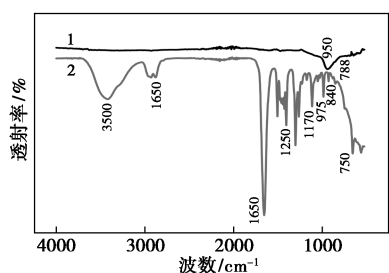


图1 PA@SiO<sub>2</sub>@Al形成过程机理

现的吸收峰是由 C—C 键的振动引起的; 1 170、1 250 cm<sup>-1</sup> 分别是 C—O 的对称伸缩振动和反对称的特征峰; 975、840 cm<sup>-1</sup> 和 750 cm<sup>-1</sup> 附近的吸收峰是 PMMA 和 PMA 的特征峰<sup>[21]</sup>, 结果表明 PMMA 和 PMA 成功包覆在铝颜料表面。

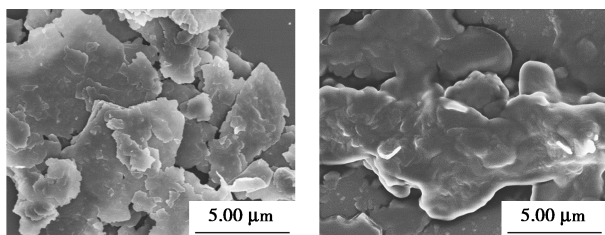


1—PS-0; 2—PS-5

图2 PS-0和PS-5铝颜料的FT-IR谱图

### 2.3 PA@SiO<sub>2</sub>@Al的微观结构及EDS分析

PS-0和PS-5铝颜料的SEM图如图3所示。从图3(a)可看出, 包覆SiO<sub>2</sub>的片状铝颜料形状不规则、大小不一、边缘清晰, TEOS和KH570共同水解缩聚形成交联网络, 抑制了腐蚀性介质小分子的渗透, 从而有效地保护铝颜料不被腐蚀。同时可看到有少量碎片存在, 是粒径较小的铝粉碎片。从图3(b)中可以看出, 铝颜料经SiO<sub>2</sub>和PA包覆后, 在铝颜料表面出现一层半透明的介质, 表面光滑度较



(a) PS-0

(b) PS-5

图3 PS-0和PS-5铝颜料的SEM图

好, 证明包覆上一层致密均匀的聚酯膜。铝颜料表面包覆不仅可以提高铝颜料在腐蚀介质中的耐候性能, 也可以改善铝颜料与PVC树脂的相容性, 从而增强PVC树脂的力学性能。

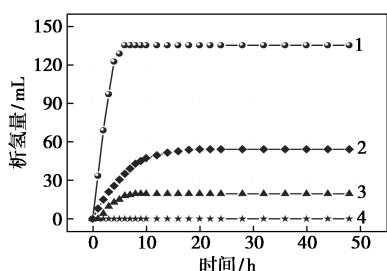
### 2.4 析氢性能分析

铝颜料缓蚀效率的正交试验结果如表1所示。由表1可以看出, 铝颜料PS-5缓蚀效率最大, 影响铝颜料缓蚀效率从大到小依次是温度、单体质量、引发剂质量分数, 温度对铝颜料缓蚀效率影响最大, 这是由于单体MMA和MA在铝颜料表面发生自由基原位聚合反应, 聚合温度能够直接影响到链引发、链增长及链终止这3个过程, 从而影响包覆效果。随着反应温度的增加, 铝颜料的表面包覆率增大, 导致缓蚀效率存在很大差异。得到优化条件: MMA质量为0.5 g, MA质量为0.5 g, AIBN的质量分数为1%, 温度为80℃。

表1 正交试验结果分析表

样品	$m(\text{MMA/MA})/$ g	$w(\text{AIBN})/$ %	$T/^\circ\text{C}$	$V(\text{H}_2)/$ mL	$\eta/$ %
PS-1	0.25	0.5	60	19.55	85.57
PS-2	0.25	1.0	70	12.47	90.79
PS-3	0.25	1.5	80	8.23	93.92
PS-4	0.50	0.5	70	9.57	92.93
PS-5	0.50	1.0	80	0.00	100.00
PS-6	0.50	1.5	60	11.06	91.83
PS-7	0.75	0.5	80	1.72	98.73
PS-8	0.75	1.0	60	7.93	94.15
PS-9	0.75	1.5	70	8.00	94.09
$K_1$	270.29	277.23	271.55		
$K_2$	284.76	285.12	277.81		
$K_3$	286.97	279.84	292.65		
$R$	16.68	7.89	21.10		

未包覆的铝粉和包覆的铝颜料的析氢曲线如图 4 所示。由图 4 可以看出,未包覆的铝粉的最大析氢量为 135.47 mL,只包覆 SiO<sub>2</sub> 的铝颜料与盐酸反应速率降低,通过计算缓蚀效率为 59.95%,包覆 SiO<sub>2</sub> 可以提高铝颜料的耐腐蚀性能,但是保护效果不佳。样品 PS-1 是双层包覆 PA 和 SiO<sub>2</sub> 的铝颜料的析氢曲线,表面包覆一层聚酯膜,耐腐蚀性能明显提高,但由于包覆的温度低,MMA 和 MA 用量较少,导致铝颜料表面不能完全包覆上 PA;而样品 PS-5 在 48 h 内都未有氢气析出,对铝颜料起到有效的保护作用。



1—未包覆的铝粉;2—PS-0;3—PS-1;4—PS-5

图 4 未包覆的铝粉和包覆的铝颜料的析氢曲线

### 2.5 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的拉伸性能分析

不同包覆铝颜料对 PVC 树脂拉伸性能的影响如表 2 所示。由表 2 可以看出,添加包覆 SiO<sub>2</sub> 铝颜料的 PVC 复合树脂的拉伸强度和断裂伸长率较未添加铝颜料的 PVC 复合树脂分别提高 43.86% 和 58.24%,这是由于铝颜料粒子产生了应力集中效应,引发周围树脂产生剪切屈服和微裂纹,吸收了一定的变形功,导致拉伸性能的增加。同时铝颜料表面的活性官能团能够与 PVC 大分子链中的极性基

表 2 添加不同包覆铝颜料对 PVC 树脂拉伸性能的影响

样品	最大力/N	断裂伸长率/%	拉伸强度/MPa
空白	87.78	284.54	6.27
PVC-0	126.28	450.25	9.02
PVC-1	130.99	521.47	9.36
PVC-2	152.78	558.51	10.51
PVC-3	157.40	553.49	10.66
PVC-4	142.71	563.47	10.19
PVC-5	168.33	636.87	12.03
PVC-6	146.76	562.20	10.48
PVC-7	160.31	590.44	11.45
PVC-8	159.23	588.23	11.24
PVC-9	157.18	584.12	11.05

团形成氢键,将拉伸应力传递给铝颜料,从而使 PVC 复合材料的拉伸强度得到提高;添加 PA@SiO<sub>2</sub>@Al 的复合铝颜料的拉伸强度和断裂伸长率比添加单层包覆 SiO<sub>2</sub> 的铝颜料同样有所增加,由于 SiO<sub>2</sub> 粒子表面的羟基会产生氢键和范德华力,使得粒子处于较为不稳定的热力学状态<sup>[22]</sup>,容易团聚成较大的无机颗粒,在 PVC 树脂基体中不易分散,界面粘结强度降低。硅烷偶联剂 KH570 处理后的铝颜料虽然能对复合体系的界面粘结强度有所改善,但不能有效地解决无机粒子的团聚问题。

有机-无机双层包覆改性的铝颜料粒子,降低了铝颜料表面的亲水性,削弱了粒子之间的相互作用力,促进铝颜料在 PVC 树脂基体中的分散,增强 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料界面之间的粘合强度,且能够适当地降低铝颜料的表面能,使铝颜料在 PVC 树脂基体中以原生态的粒子形态分散,因此不会发生团聚现象,使得复合材料的力学性能得到明显改善,同时,能有效传递应力的界面层体积分数增加,从而提高 PVC 复合材料的力学性能。

### 2.6 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的硬度分析

不同包覆铝颜料对 PVC 树脂硬度的影响如表 3 所示。由表 3 可以看出,随着铝颜料耐腐蚀性能的提高,PVC 复合材料的硬度也随之增加,耐腐蚀性能最好的 PS-5 的铝颜料制备出的 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的硬度达 84.7°,这是由于表面包覆的 PMMA 和 PMA 均匀且含量增加,大分子链之间的缠结增多,链移动变得十分困难;同时 PMMA 和 PMA 大分子链呈刚性,抵抗外力变形的能力增强,因此硬度变大。

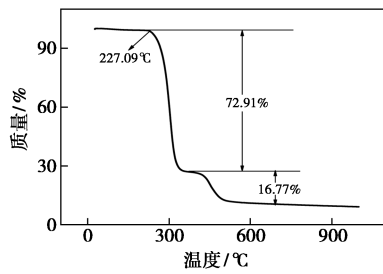
表 3 添加不同包覆铝颜料对 PVC 树脂硬度的影响

样品	空白样	0	1	2	3	4
硬度/度	73.2	76.7	77.5	77.7	80.0	78.8
样品	5	6	7	8	9	
硬度/度	84.7	80	83.3	81.3	80.5	

### 2.7 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的热力学性能

PVC、PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的 TG 曲线如图 5 所示。由图 5 可以看出,纯 PVC 和 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的 TG 曲线几乎重合,这是由于铝颜料添加量较少,对 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的热稳定性没有明显影响。纯 PVC 在 227.09~367.90°C 发生第 1 阶段热降解,失重 72.91%,是热解过程中 PVC 脱去 HCl;第 2 阶段是聚合物链断裂或交联产生共轭多烯和 HCl 等,失重率 16.77%;复

合材料热失重温度降到 220.32℃,说明添加铝颜料对 PVC 复合材料的耐热性有一定的提高,第 1 阶段失重率为 74.02%,414.12℃时复合材料发生第 2 阶段热解,最终残余物是碳、少量的氮化铝和 SiO<sub>2</sub>,由于分解产生的 HCl 对铝颜料具有酸化作用,导致最终残余量较纯 PVC 有所降低,为 8.97%。



(a) PVC

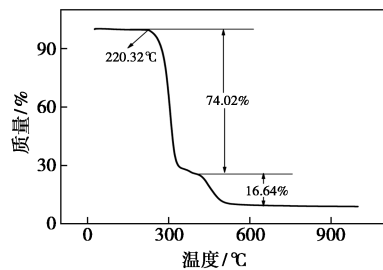
(b) PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料

图 5 PVC、PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的 TG 曲线

### 3 结论

(1) 铝颜料经有机-无机双层包覆改性后,耐腐蚀性能较无机单层包覆进一步提高,缓蚀效率最高可达 100%。

(2) 铝颜料的添加对 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的耐热性有一定的提高,PVC 裂解产生的 HCl 对铝颜料有酸化作用,导致最终残余量降低。

(3) 采用包覆效果最佳的 PA@SiO<sub>2</sub>@Al 增强聚氯乙烯树脂(PVC)的力学性能,得到的 PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料拉伸强度、断裂伸长率和硬度分别为 12.03 MPa、636.87%和 84.7°,随着铝颜料的包覆效果变差,由于粒子之间的相容性随之变差,PA@SiO<sub>2</sub>@Al/PVC 复合材料的力学性能整体有下降的趋势。

### 参考文献

[1] 陈军.丙烯酸树脂对铝粉的表面改性及性能研究[D].广州:华南理工大学,2011.  
[2] 高爱环,皮丕辉,路阳,等.铝颜料的聚丙烯酸酯与 SiO<sub>2</sub> 双重包

覆改性[J].华南理工大学学报(自然科学版),2010,38(2):1-5.

- [3] 陈坤.MTES/TEOS 水解缩聚包覆改性铝颜料的研究[D].广州:华南理工大学,2012.  
[4] 杜斌,周世生,李敏,等.铝颜料表面改性防腐技术的研究与发展[J].中国腐蚀与防护学报,2014,34(5):410-418.  
[5] Li Lijun, Pi Pihui, Wen Xiufang, et al. Optimization of sol-gel coatings on the surface of aluminum pigments for corrosion protection [J]. Corrosion Science, 2008, 5(3): 795-803.  
[6] 刘志芳,刘新红,黄亚磊,等.铝粉表面包覆改性的研究进展[J].材料导报 A:综述篇,2017,31(6):73-85.  
[7] 赵博雷,赵麦群,赵萍.正硅酸乙酯包覆铝银粉抗蚀性的研究及表征[J].粉末冶金技术,2016,34(2):97-100.  
[8] Wang Hui, Huang Shuli, Zuo Yanjun, et al. Corrosion resistance of lamellar aluminum pigments coated by SiO<sub>2</sub> by sol-gel method [J]. Corrosion Science, 2011, 53(1): 161-167.  
[9] 高爱环.有机-无机复合层包覆型铝颜料的制备及性能研究[D].广州:华南理工大学,2010.  
[10] Supplit R, Schubert U. Corrosion protection of aluminum pigments by sol-gel coatings [J]. Corrosion Science, 2007, 49(8): 3325-3332.  
[11] 瞿晓岳,朱宏伟,谢辉,等.溶胶-凝胶法制备 SiO<sub>2</sub> 包覆型水性颜料[J].中国有色金属学报,2010,20(6):1241-1246.  
[12] 张琼方,张教强,国际英.纳米粒子增韧聚氯乙烯研究新进展[J].玻璃钢/复合材料,2005,(1):53-56.  
[13] 王亮亮.高导热聚合物基复合材料的研究[D].南京:南京工业大学,2004.  
[14] 吕艳丽.铝粉/聚合物复合材料的制备及介电性能研究[D].内蒙古:内蒙古科技大学,2011.  
[15] 王占瑞,雷华,叶敏,等.PVC/纳米 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 复合材料的力学性能研究[J].应用力学学报,2007,24(1):111-114.  
[16] Iriyama Y, Ihara T, Kiboku M. Plasma polymerization of tetraethoxysilane on aluminum granules for corrosion protection [J]. Thin Solid Films, 1996, 287(1-2): 169-173.  
[17] Muller B, Schmelich T. High-molecular weight styrene-maleic acid copolymer as corrosion inhibitors for aluminum-pigments [J]. Corrosion Science, 1995, 37(6): 877-883.  
[18] Liu Hui, Ye Hongqi, Zhang Yingchao, et al. Preparation and characterization of poly(trimethylolpropanetriacrylate)/flaky aluminum composite particle by in situ polymerization [J]. Dyes and Pigments, 2008, 79(3): 236-241.  
[19] 徐守芳,李春忠,陈雪花.纳米碳酸钙颗粒表面接枝聚合甲基丙烯酸甲酯的结构及机理分析[J].华东理工大学学报(自然科学版),2005,31(5):602-605.  
[20] 李利君.颜料铝粉的表面包覆改性及在涂料中的应用[D].广州:华南理工大学,2008.  
[21] 顾福铭,刘宏光.丙烯酸酯及其聚合物的红外光谱鉴定[J].皮革化工,1997(1):35-38.  
[22] 谭林朋,袁光明,罗卫华,等.表面改性纳米 SiO<sub>2</sub> 增强木质纤维/聚氯乙烯复合材料性能[J].复合材料学报,2018,35(3):501-507. ■