

文章编号: 1006-4710(2014)02-0193-07

# 溶胶/凝胶法制备改性彩色银浆油墨的研究

杜斌, 周世生, 李敏, 马丽萍, 宋倩

(西安理工大学 印刷包装工程学院, 陕西 西安 710048)

**摘要:** 本文采用改进的溶胶/凝胶法, 先将颜料 Cibacron Red 4G-E 或酞菁蓝沉积在铝粉表面, 再以正硅酸甲酯(TMOS)和甲基三乙氧基硅烷(MTES)为前驱体, 在氨水的催化作用下于铝粉表面包覆一层无机膜层或无机/有机杂化膜层实现着色, 并得出制备品红色银浆油墨和蓝色银浆油墨的最佳工艺条件。通过扫描电镜(SEM)、X 射线能谱仪(EDS)、色差分析对最佳工艺条件下制备的样品进行分析与表征, 结果表明本实验得到的两种着色铝粉色泽鲜艳、表面包覆致密完整, 调配而成的彩色银浆油墨符合印刷标准, 并分别对两种有机颜料采用不同着色方法的着色效果进行了探讨。

**关键词:** 溶胶/凝胶法; 共沉积; 银浆油墨; 着色

**中图分类号:** TS852      **文献标志码:** A

## Research on modified coloring silver ink by Sol/Gel method

DU Bin, ZHOU Shisheng, LI Min, MA Liping, SONG Qian

(Faculty of Printing and Packaging Engineering, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China)

**Abstract:** Cibacron Red 4G-E pigments or pigments phthalocyanine blue are deposited on the surface of aluminum powder first, then tetramethyl orthosilicate (TMOS) and methyl trimethoxysilane (MTES) are chosen as precursors to form an inorganic film or inorganic/organic hybrid film in the presence of catalytic ammonia through modified sol-gel method in this paper. Hence the colored aluminum pigments and the optimized preparation conditions of magenta silver ink and blue silver ink are obtained. By the characterization of scanning electron microscopy (SEM), X-ray energy dispersive spectroscopy (EDS) and Color Difference analysis of the samples prepared under the optimized conditions, the results show that the two colored aluminum pigments obtained in this experiment present bright color, smooth and dense surface, the acquired coloring silver ink comply with printing standards, and the effect of two different coloring methods are discussed respectively.

**Key words:** Sol-Gel method; co-deposition; silver ink; coloring

银浆油墨是印刷领域常用的特种油墨之一, 广泛应用于票据、彩票、高档包装品等领域。铝粉因其成本低廉、随角异色明显、抗蚀性强、金属光泽高等优点, 被广泛应用于银浆油墨主料中。片状铝粉化学性质活跃, 表面能较高, 如果不经过表面改性容易造成银浆油墨团聚, 并且与空气接触时极易发生溢氢反应, 从而在调配过程中产生闪爆, 给生产带来不安全

因素。采用表面处理后的彩色铝粉调配而成的银浆油墨不仅具有较高的金属光泽, 而且色彩鲜艳<sup>[1-2]</sup>, 为彩色银浆油墨的发展开辟了广阔的应用前景。

彩色银浆油墨的主料彩色铝粉在上世纪九十年代就于德国、日本和美国问世, 日本昭和铝株式会社、德国 BASF 和亦柏化工有限公司均研发出相关产品, 但存在颗粒度不均匀和耐候性差等缺点。而

收稿日期: 2014-02-20

基金项目: 陕西省“13115”科技创新工程基金资助项目(2009ZDGC-06); 西安理工大学优秀博士学位论文研究基金资助项目(104-211103)。

作者简介: 杜斌, 男, 博士生, 研究方向为防腐蚀及特种油墨。E-mail: bindu\_830211@163.com。

周世生, 男, 教授, 博导, 研究方向为印刷设备及技术。E-mail: zhoushisheng@xaut.edu.cn。

国内只是近期才开始研究,对彩色银浆油墨的研究开发基本为起步阶段<sup>[3-6]</sup>。周毅<sup>[7-8]</sup>先将铝粉置于氧化液中在其表面形成一层多孔性的氧化膜,然后分别浸渍于茜素黄R饱和溶液和耐晒翠蓝GL水溶液(1.5 g/L)中着色,成功制得了金黄色铝粉和浅蓝色铝粉;殷国祥、孙勇等<sup>[9-10]</sup>在铝粉改性的过程中先后沉积酞菁蓝(1541)颜料对片状铝粉进行着色;韩凯、张赢超等<sup>[11]</sup>采用分步液相沉积法在片状铝粉表面包覆SiO<sub>2</sub>与Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>双层薄膜制备了具有金属光泽的彩色铝粉;张赢超、叶红齐等<sup>[12]</sup>采用传统的湿化学法在改性铝粉表面涂布普鲁士蓝制备了具有双层结构的蓝色铝颜料—Al/SiO<sub>2</sub>/PB;德国ECKART公司<sup>[13]</sup>采用湿化学反应和化学气相沉积(CVD)相结合的方法在片状铝粉表面包覆SiO<sub>2</sub>与Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>双层膜,制备了金黄色铝粉;王爱利等<sup>[14]</sup>以TEOS和FeCl<sub>3</sub>为前驱物,制备了黄色和红色改性铝粉。上述方法得到的彩色铝粉表面较粗糙,稳定性不高,而且对反应条件要求苛刻,产品成本较高,不利于工业化生产。

本实验采用改进的溶胶/凝胶法——将着色效果优良的包覆彩色膜层法和共沉积技术相结合,通过正交试验先将不同的颜料沉积在铝粉表面,再于其表面包覆一层无机膜层或无机/有机杂化膜层,将其表面包覆一层无机膜层或无机/有机杂化膜层,将

颜料包裹在膜层中实现着色,由此制备出高彩度银浆油墨。选用的着色颜料分别为Cibacron Red 4G-E和酞菁蓝,分子式分别为C<sub>44</sub>H<sub>80</sub>C<sub>12</sub>N<sub>14</sub>O<sub>20</sub>S<sub>6</sub>和C<sub>32</sub>H<sub>15</sub>ClCuN<sub>8</sub>。

## 1 实验

### 1.1 实验材料及仪器

实验中所用的原料及规格见表1,使用的实验仪器见表2。

表1 实验原料及规格  
Tab. 1 Material specification

原 料	规 格	厂 商
原始铝粉	1000目	广州辉彩印花颜料有限公司
市售铝粉1	800目	郑州西德利化工新材料有限公司
市售铝粉2	1000目	鞍钢实业微细铝粉有限公司
无水乙醇	≥99.7%	天津市富宇精细化工有限公司
氨水	25%~28% <sup>a</sup>	开封东大化工有限公司
TMOS	≥28% <sup>b</sup>	天津基准化学试剂有限公司
MTES	≥98.7%	杭州硅宝化工有限公司
Cibacron Red 4G-E	工业品	陕西景新纺织有限责任公司
酞菁蓝	7090	上海飞陀颜料公司
去离子水	自制	—

说明:<sup>a</sup>表示NH<sub>3</sub>含量,<sup>b</sup>表示SiO<sub>2</sub>含量。

表2 实验仪器  
Tab. 2 Experimental apparatus

用 途	仪 器 名 称	厂 商
反应装置	三口烧瓶、蛇形冷凝管、温度计、氮气保护等	—
加热装置	HH-2型电热恒温水浴锅	北京科伟永兴仪器有限公司
搅拌装置	JJ-1搅拌机(功率100W)	江苏由天有限公司
干燥装置	ZK真空干燥箱	北京科伟永兴仪器有限公司

### 1.2 实验步骤

#### 1.2.1 正交试验表设计

本实验以包覆彩色膜层法和共沉积技术相结合即改性的溶胶/凝胶法,先将品红色颜料Cibacron Red 4G-E和酞菁蓝沉积在铝粉表面,然后分别以正硅酸甲酯(TMOS)和甲基三乙氧基硅烷(MTES)为前驱体,在氨水的催化作用下于铝粉表面包覆一层无机膜层或无机/有机杂化膜层,将颜料包裹在膜层中实现着色。

以品红色铝颜料制备方法为例,考虑到前驱体量、催化剂量、反应时间和反应温度这四个因素对实验结果的影响,根据正交试验原理构建L<sub>9</sub>(3<sup>4</sup>)正交试验表如表3所示。

通过极差分析可知,前驱体TMOS的量对铝粉

的改性效果影响最大,也就是说TMOS的量对彩色银浆油墨光泽度影响最大,当TMOS用量为3 ml时,有利于银浆油墨光泽度的提高。

极差较小的依次是:氨水、温度、时间,其最佳水平为:氨水4.5 ml、温度50℃、反应时间7 h。

根据直观分析优化结果进行光泽度检测得到光泽度为62.05,说明优化配方银浆油墨光泽度有很大提高。

同理也可根据正交试验得出制备蓝色铝粉的最优配比为:TMOS 2 ml、MTES 3 ml、氨水 3 ml、温度 40℃。

根据生产实际经验,选取铝粉、Cibacron Red 4G-E、酞菁蓝质量比为2:1:1.5。

表 3 品红色铝粉制备正交表  
Tab. 3 Orthogonal for the preparation of magenta aluminum pigments

实验号	因 素				
	氨水/ml	TMOS/ml	温度/℃	时间/h	光泽度/GU
1	3	2	30	6	57.34
2	3	3	40	7	60.35
3	3	4	50	8	58.51
4	4.5	2	40	8	57.92
5	4.5	3	50	6	61.27
6	4.5	4	30	7	58.93
7	6	2	50	7	56.87
8	6	3	30	8	59.60
9	6	4	40	6	55.49
均值 1	58.62	57.38	58.62	58.03	
均值 2	59.37	60.41	57.92	58.72	
均值 3	57.32	57.64	58.88	58.68	T=526.28
极差	2.05	3.03	0.96	0.69	

### 1.2.2 改性彩色铝粉的制备

称取 2 g 铝粉和 1 g Cibacron Red 4G-E 颜料,用 50 ml 无水乙醇进行分散,加到 250 ml 的四口烧瓶中,在氮气保护作用下混合搅拌 40 min,然后升温至 50℃,分别配置好 A 液和 B 液。

其中 A 液为 30 ml 无水乙醇稀释的 4.5 ml 氨水(催化剂)和 5 ml 去离子水,B 液为 30 ml 无水乙醇稀释的 3 ml TMOS。

同时滴加 A 液和 B 液,并且控制滴加速度为 1 滴/s。滴加完毕后持续反应 7 h。

停止反应后真空抽滤,用无水乙醇连续洗涤产物三次,真空干燥后得到品红色铝粉颜料。

另取 2 g 片状铝粉和 1.5 g 酞菁蓝颜料用 50 ml 无水乙醇进行分散,加到 250 ml 的四口烧瓶中,在氮气保护作用下混合搅拌 1 h,然后升温至 40℃,分别配置好 C 液和 D 液。

其中 C 液为 30 ml 无水乙醇稀释的 2 ml TMOS 和 3 ml MTES,D 液为 30 ml 无水乙醇稀释的 3 ml 氨水(催化剂)和 5 ml 去离子水。

同时滴加 C 液和 D 液,并且控制滴加速度为 1 滴/s。滴加完毕后持续反应 8 h。

停止反应后真空抽滤,用无水乙醇连续洗涤产物三次,真空干燥后得到蓝色铝粉颜料。

### 1.2.3 银浆油墨刮样的制备

取 0.5 g 彩色铝粉,与调银油按质量比为 1:3 的比例调配均匀,用刮墨刀均匀涂抹在 105 g/m<sup>2</sup>、5 cm×5 cm 大小的铜版纸上,将所得样品在 50℃ 真空干燥箱中干燥 24 h 后待测。

## 2 实验结果与分析

### 2.1 SEM 分析

分别对原始铝粉、包覆铝粉和着色铝粉进行电子显微镜扫描,结果如图 1 所示。

从图 1(a)看出原始铝粉为形状不规则的片状结构,图 1(b)为原始铝粉局部放大后的图片,从该图片可以清晰的看到原始铝粉表面粗糙,并且分布极其不均匀。从图 1(c)和图 1(d)看出,铝粉表面有大量棉絮状 SiO<sub>2</sub> 存在,其粒径较为均匀,这表明经溶胶/凝胶法处理后,铝粉表面包覆了一层较为致密的保护膜,能够对铝粉起较好的防腐蚀作用。从图 1(g)和图 1(h)可以发现, TMOS/MTES 包覆型铝粉的边缘平整光滑,与之相比 SiO<sub>2</sub> 包覆型铝粉的边缘则比较粗糙,凹凸不平,造成这种情况的原因主要是 SiO<sub>2</sub> 在铝粉表面包覆膜层上存在颗粒凸起,故所形成的 SiO<sub>2</sub> 呈颗粒状,而 TMOS/MTES 则在铝粉表面形成的包覆层比较平整光滑。从图 1(e)和图 1(f)看出,铝粉经过品红着色处理和 SiO<sub>2</sub> 包覆后,在表面形成了致密的颗粒状保护膜,表明先经过着色沉积,后经过溶胶/凝胶法包覆处理,品红色 Cibacron Red 4G-E 粒子已经均匀包覆在铝粉表面,起到了很好的着色包覆效果。从图 1(i)和图 1(j)可以清晰的看出铝粉经过酞菁蓝着色处理并包覆上无机/有机膜层后,表面形成了少数小的颗粒,这些颗粒即为酞菁蓝颜料颗粒。

另外,从图 1(f)和图 1(j)也可以看出品红铝粉的着色效果比蓝色铝粉要好。

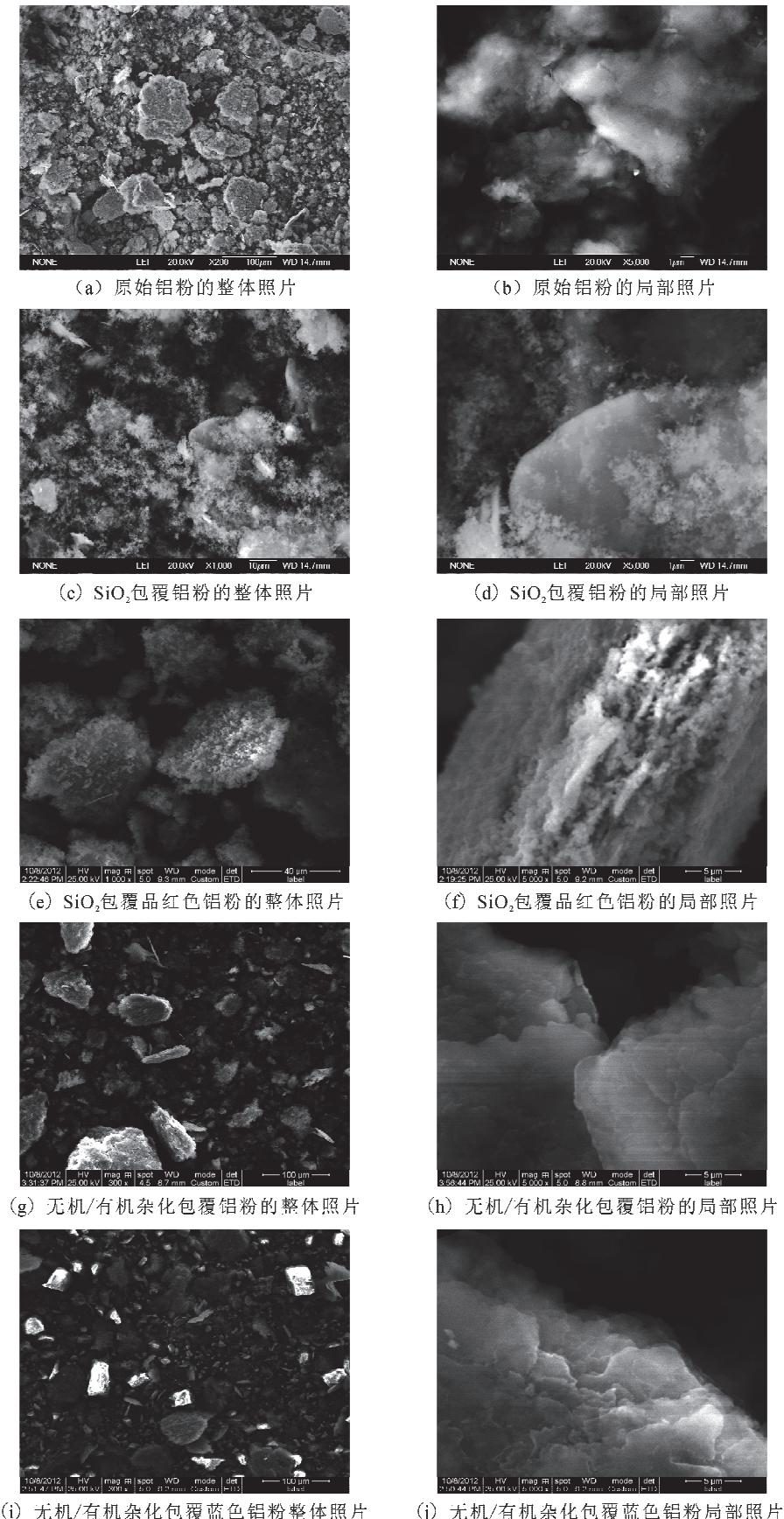


图 1 不同铝粉的 SEM 照片

Fig. 1 SEM photos of different aluminum pigments

## 2.2 EDS 分析

图 2 为原始铝粉、包覆铝粉及着色铝粉的 EDS 谱图,从图 2(b)中可以明显看到对应 Si 和 O 元素的特征峰,表明经过溶胶/凝胶过程后,  $\text{SiO}_2$  成功包覆于铝粉表面。从图 2(d)中可以明显看出新出现的 S 元素的特征峰,这是因为着色剂 Cibacron Red 4G-E 中含有显色的 S 元素,说明品红色着色剂成功沉积到铝粉表面并且被  $\text{SiO}_2$  薄膜包覆。

对比未包覆铝粉的 EDS 能谱图以及蓝色包覆型铝粉的 EDS 能谱图的特征峰可以看到,铝峰是基体铝粉产生的,硅元素和氧元素的吸收峰是 TMOS/MTES 包覆膜的元素,新出现的特征峰 Cu 和 C 来自于酞菁蓝颜料,表明蓝色着色剂成功沉积在铝粉表面。

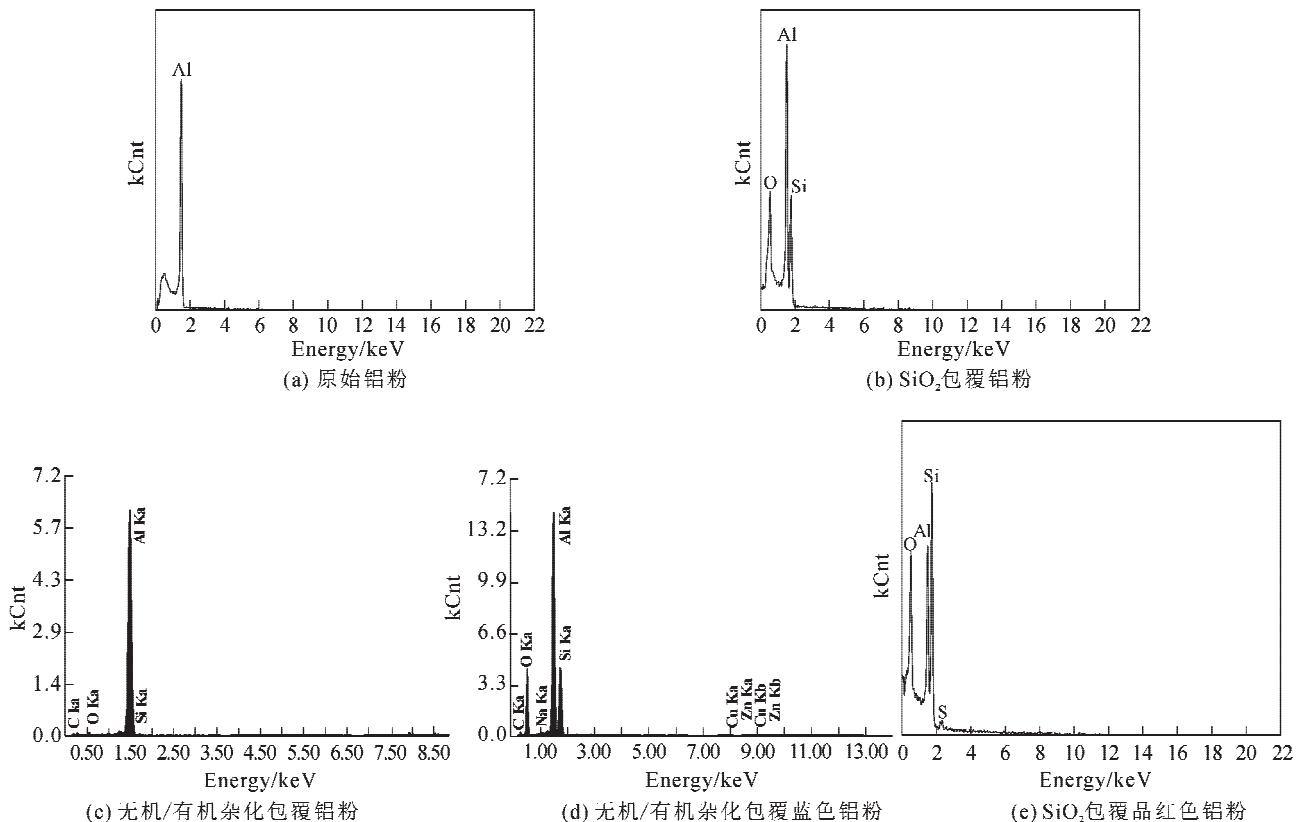


图 2 铝粉的 EDS 谱图

Fig. 2 EDS spectra of aluminum pigments

## 2.3 色差分析

$CIEL^* a^* b^*$  是表征彩色样品光学特性的一个重要参数,其中  $L^*$  表示明度,可以用来衡量着色铝粉金属光泽的高低,  $L^*$  值越大,说明着色铝粉光泽度越高,相应地,其金属闪光性能越好;  $L^*$  值越小,说明铝粉金属闪光性能越差。 $+a^*$  表示红色,  $-a^*$  表示绿色,  $+b^*$  表示黄色,  $-b^*$  表示蓝色。不同的  $L^*$ 、 $a^*$ 、 $b^*$  值可以表明不同着色铝粉的颜色差异。实验中,选取刮样样品的中心点和四个角点分别测量  $L^*$ 、 $a^*$ 、 $b^*$  值,计算平均值,结果如表 4 所示。

不同铝粉样品间的色差可由公式(1)计算得到:

$$\Delta E_{ab} =$$

$$\sqrt{(L_1^* - L_2^*)^2 + (a_1^* - a_2^*)^2 + (b_1^* - b_2^*)^2} \quad (1)$$

计算得到原始铝粉与单层包覆铝粉的色差  $\Delta E_1 = 3.74$ ,市售铝粉 1 与单层包覆铝粉的色差

$\Delta E_2 = 3.24$ ,市售铝粉 2 与单层包覆铝粉的色差  $\Delta E_3 = 2.49$ ,原始铝粉与品红铝粉的色差  $\Delta E_4 = 19.70$ ,原始铝粉与蓝色铝粉的色差为  $\Delta E_5 = 9.78$ 。

在色彩复制质量要求上,由国家标准局颁布的装潢印刷品 GB7705-87(平印)、GB7706-87(凸印)、GB7707-87(凹印)的国家标准中,对彩色装潢印刷品的同批同色色差为:

一般产品:  $\Delta E_{ab} \leq 5.00 \sim 6.00$

精细产品:  $\Delta E_{ab} \leq 4.00 \sim 5.00$

而  $\Delta E_2 < 4.00$  且  $\Delta E_3 < 4.00$ ,说明原始铝粉经单层包覆后与市售铝粉相比明度值虽有所下降,存在一定的色差,但色差均在人眼可接受的范围内,符合国家精细产品的标准,可以应用到实际生产中。

另外,从表 4 可以看出,原始铝粉的明度值最高,单层包覆铝粉、蓝色铝粉、品红铝粉的明度值依

次降低,可能因为单层包覆的无机薄膜更薄一些,光泽度较高;着色后的酞菁蓝薄膜和 Cibacron Red 4G-E 薄膜更厚一些,影响了铝粉的光泽度;从光泽度角度来看蓝色银浆油墨的光泽度高于品红色银浆

油墨的光泽度。

表 4 中蓝色铝粉的  $b^*$  值为 -9.31, 偏向蓝色, 品红铝粉的  $a^*$  值为 10.71, 偏向红色, 均与人眼的视觉感受一致。

表 4 不同铝粉刮样  $L^*$ 、 $a^*$ 、 $b^*$  值测量结果  
Tab. 4  $L^*$ 、 $a^*$ 、 $b^*$  values of different aluminum pigments sample

样品	测量值			测量结果			平均值
原始铝粉刮样	$L^*$	41.77	28.26	29.28	37.77	30.12	33.44
	$a^*$	-0.36	-0.74	-0.68	-0.50	-0.69	-0.62
	$b^*$	-1.70	-0.55	-0.79	-1.26	-0.81	-0.85
市售铝粉 1 刮样	$L^*$	40.14	26.28	27.96	29.73	33.21	31.46
	$a^*$	-0.22	-0.75	-0.66	-0.74	-0.80	-0.63
	$b^*$	-2.10	-0.67	-0.69	-1.50	-0.81	-1.15
市售铝粉 2 刮样	$L^*$	43.74	28.29	27.33	34.67	30.56	32.92
	$a^*$	-0.25	-0.67	-0.71	-0.62	-0.73	-0.60
	$b^*$	-1.81	-0.52	-0.82	-1.34	-1.01	-1.10
单层包覆铝粉刮样	$L^*$	30.10	29.53	29.69	29.41	30.27	29.73
	$a^*$	-1.07	-1.05	-1.28	-1.39	-1.18	-1.19
	$b^*$	0.16	-0.33	-0.79	-1.61	0.39	-0.44
品红铝粉刮样	$L^*$	20.59	15.96	17.54	15.59	17.53	17.44
	$a^*$	9.81	11.62	10.67	11.22	10.71	10.81
	$b^*$	-0.36	0.76	0.40	0.90	0.60	0.46
蓝色铝粉刮样	$L^*$	27.46	28.02	28.25	28.00	27.67	27.85
	$a^*$	-1.31	-1.48	-1.46	-1.49	-1.56	-1.46
	$b^*$	-8.84	-8.72	-9.31	-8.71	-9.54	-9.02

### 3 结 论

1) 通过改性的溶胶/凝胶法对原始铝粉进行表面改性, 分别以 TMOS 和 TMOS/MTES 为前驱物, 可以在铝粉表面形成一层致密防腐蚀保护膜, 保护效果显著。两种有机颜料均能沉积在铝粉表面形成彩色铝粉, 为进一步制备彩色银浆油墨奠定了良好基础。

2) 通过正交试验优化各种工艺参数, 得到无机品红色银浆油墨制备最佳工艺条件为: 铝粉 2.0 g, Cibacron Red 4G-E 品红颜料 1.0 g, 氨水 4.5 ml, TMOS 3 ml, 反应温度 50℃, 反应 7 h 得到品红色铝粉, 再与调银油按照 1:3 质量比进行调配; 有机/无机杂化蓝色银浆油墨制备最佳工艺条件为: 铝粉 2.0 g, 酞菁蓝颜料 1.5 g, 氨水 3 ml, 去离子水 5 ml, TMOS 2 ml, MTES 3 ml, 反应温度 40℃, 反应 8 h 得到蓝色铝粉, 再与调银油按照 1:3 质量比进行调配。

3) SEM 及 EDS 分析表明, TMOS 和 MTES 在溶胶/凝胶过程中发生了水解和缩聚, 和铝粉表面发

生了键合, 最终在铝粉表面形成了一层致密的包覆膜; SEM 图片显示出颜料颗粒的存在, 且进一步证实了品红铝粉的着色效果比蓝色铝粉好, 另外通过 EDS 检测发现铝粉表面存在 S 元素和 Cu 元素, 说明颜料沉积在了铝粉表面。

4) 色差分析表明, 单层包覆改性铝粉不会引起人眼视觉的变化, 可以应用到实际生产中。经着色处理的铝粉颜色变化比较明显, 可以用于调配彩色银浆油墨。

### 参 考 文 献

- [1] Du Bin, Zhou Shisheng, Li Nali, et al. Optimization of  $\text{SiO}_2$  coatings on the surface of aluminum pigments[J]. Energy Education Science and Technology Part A: Energy Science and Research, 2013, 31(1): 469-472.
- [2] Du B, Zhou S S, Li N L, et al. Corrosion protection on the surface of waterborne Aluminum pigments by Sol-Gel method[J]. Asian J Chem, 2013, 25 (13): 7471-7476.
- [3] 毕胜. 国内外颜料工业概况及发展趋势[J]. 涂料工业, 2003, 33(9): 44-46.  
Bi Sheng. Domestic paint industry situation and development trend [J]. Paint & Coatings Industry, 2003, 33

- (9):44-46.
- [4] 吴垠,李凤生,白华萍,等.金色闪光铝粉颜料的制备研究[J].材料科学与工程学报,2006,24(6):923-925.  
Wu Yin, Li Fengsheng, Bai Huaping, et al. Study on preparation of golden flash Aluminum flake pigments [J]. Journal of Materials Science & Engineering, 2006, 24(6): 923-925.
- [5] Smith G B, Gentle A, Swift P, et al. Colored paints based on coated flakes of metal as the pigment, for enhanced solar reflectance and cooler interiors: description and theory[J]. Solar Energy Materials & Solar Cells, 2003, (79): 163-177.
- [6] 王淑芹.铝颜料的国外状况[J].中国涂料,1994,2:44-49.  
Wang Shuqin. Global status of the aluminum pigment [J]. China Coatings, 1994, 2:44-49.
- [7] 周毅.金黄色铝粉的制法[J].涂料工业,1991,(6):18-19.  
Zhou Yi. Preparation of golden aluminum powders[J]. Paint & Coatings Industry, 1991, (6): 18-19.
- [8] 周毅,贾延刚.铝粉化学着色初探[J].阴山学刊:自然科学版,1995,(12):30-32.  
Zhou Yi, Jia Yangang. Preliminary in coloring Aluminum pigments[J]. YinShan Academic Journal (Natural Science), 1995, (12): 30-32.
- [9] 殷国祥,孙勇,杨宁,等.片状铝粉包覆着色的研究[J].南方金属,2009,12 (171): 22-25.  
Yin Guoxiang, Sun Yong, Yang Ning, et al. A study on coloring aluminum flake powder by coating method[J]. Southern Metals, 2009, 12 (171): 22-25.
- [10] 殷国祥,孙勇,杨宁,等.片状铝粉的SiO<sub>2</sub>包覆着色研究[J].金属功能材料,2010,17 (4): 33-36.  
Yin Guoxiang, Sun Yong, Yang Ning, et al. Aluminum flake powder colouring by SiO<sub>2</sub> coating [J]. Metallic Functional Materials, 2010, 17 (4): 33-36.
- [11] 韩凯,张赢超,等.彩色铝粉Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Al的液相沉积制备与表征[J].中国有色金属学报,2011,21(12):3169-3172.  
Han Kai, Zhang Yingchao, et al. Preparation and characterization of colored aluminum powder Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Al by liquid deposition[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2011, 21(12): 3169-3172.
- [12] Zhang Yingchao, Ye Hongqi, Liu Hui. Preparation and characterization of blue color aluminum pigments Al/SiO<sub>2</sub>/PB with double-layer structure[J]. Powder Technology, 2012, 217: 614-618.
- [13] Wang Aili, Ge Chaoqun, Yin Hengbo, et al. Evolution of binary Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub> coating layers on the surfaces of aluminum flakes and the pigmentary performances[J]. Powder Technology, 2012, 221: 306-311.

(责任编辑 王卫勋)