2018年 9月

基于高铝粉煤灰的堇青石-莫来石复合材料制备

胡朋朋1,2,3,张建波1,2,李少鹏1,2,李占兵1,2,李会泉1,2,3

(1. 中国科学院过程工程研究所 绿色过程与工程中科院重点实验室,北京 100190;2. 湿法冶金清洁生产技术国家 工程实验室,北京 100190;3. 中国科学院大学,北京 100049)

摘 要:为了实现高铝粉煤灰的高值化利用,以高铝粉煤灰为单一铝硅原料,依次对其进行酸、碱预处 理,将处理后的高铝粉煤灰与滑石粉混合,通过一步原位烧成制备堇青石-莫来石复合材料,进一步 考察原料配比和烧成条件对烧成样品性能的影响规律。结果表明,烧成温度为1370℃、烧成时间为 2h、堇青石和莫来石理论质量比为50:50时,可制备出体积密度为1.96g/cm³、显气孔率为 30.47%、常温抗折强度为66.44 MPa的堇青石-莫来石复合材料,其主要指标均达到YB/T4549— 2016《堇青石-莫来石窑具》的要求,该方法实现了以粉煤灰为主要原料,灵活制备具有不同堇青石和 莫来石配比的复合材料,为高铝粉煤灰的高值化利用提供新途径。

关键词:高铝粉煤灰;堇青石-莫来石;酸处理;脱硅;烧成

中图分类号:TQ133 文献标志码:A 文章编号:1006-6772(2018)05-0113-07

Preparation of cordierite-mullite composite from high-alumina coal fly ash

HU Pengpeng^{1,2,3}, ZHANG Jianbo^{1,2}, LI Shaopeng^{1,2}, LI Zhanbing^{1,2}, LI Huiquan^{1,2,3}

(1. Key Laboratory of Green Process and Engineering, Institute of Process Engineering, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;

2. National Engineering Laboratory for Hydrometallurgical Cleaner Production Technology, Beijing 100190, China;

3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: In order to realize the high value utilization of high-aluminum coal fly ash(HAFA), HAFA was treated with acid solution and alkaline solution in sequence, subsequently the pretreated HAFA mixed with talcum power and then calcined to prepare the cordierite-mullite composites. The effects of raw materials ratio and calcination conditions on the properties of calcination products were studied. It is found that the cordierite-mullite composite with bulk density of 1.96 g/cm³, apparent porosity of 30.47% and bending strengths of 66.44 MPa could be successfully prepared when the raw materials' theoretical mass ratio of cordierite to mullite is 50 : 50, the calcination time is 2 h and the calcination temperature is 1 370 °C. The properties of the product meet the requirements of the standard of cordierite-mullite kiln furniture (YB/T 4549—2016), which provides a new approach to transfer HAFA into high-value products.

Key words: high-alumina coal fly ash; cordierite-mullite; acid treatment; desilication; calcination

0 引 言

我国内蒙古中西部、山西北部和宁夏东部地区 年产生高铝粉煤灰超过3000万t,综合利用率不足 30%^[1],主要用于建材(水泥、混凝土、墙体材料)制 备^[2-3],高铝粉煤灰的大量堆存对当地生态环境造 成严重破坏。高铝粉煤灰中氧化铝含量为40% ~ 50%,氧化硅含量35% ~45%,同时伴生锂镓等金 属,可作为一种特色资源加以利用^[4-5]。目前,对高 铝粉煤灰提取氧化铝的技术研究与工程化验证较

引用格式:胡朋朋,张建波,李少鹏,等. 基于高铝粉煤灰的堇青石-莫来石复合材料制备[J]. 洁净煤技术,2018,24(5):113-119. HU Pengpeng,ZHANG Jianbo,LI Shaopeng, et al. Preparation of cordierite-mullite composite from high-alumina coal fly ash[J]. Clean Coal Technology,2018,24(5):113-119.

收稿日期:2018-07-02;责任编辑:白娅娜 DOI:10.13226/j.issn.1006-6772.18070201

基金项目:国家重点研发计划资助项目(2017YFB0603103);山西省煤基低碳重大专项资助项目(MC2016-05);中石化合作企业横向资助项目 (317014-5)

作者简介: 胡朋朋(1990—), 男, 湖北随州人, 硕士研究生, 从事煤基固废资源化利用方面的研究。E-mail: hupengpeng0990@163.com。通讯作者: 李会泉, 研究员, 博士生导师。E-mail: hqli@ipe.ac.cn

洁净煤技术

多^[6-8],部分形成规模化经济稳定运行的生产线。 基于高铝粉煤灰的化学组成和矿相结构特点,以高 铝粉煤灰为原料制备铝硅材料成为潜在的利用途 径^[9-13]。

堇青石-莫来石复合材料既保留了莫来石高温 稳定性好、机械强度高的特点,又吸收了堇青石热膨 胀系数小、热震稳定性好等特点,应用广泛[14]。目 前,一般采用原生矿物或工业废弃物与原生矿物混 合物通过配料—成型—烧结工艺制备堇青石-莫来 石复合材料。Khattab 等^[15]以废气硅微粉、煅烧氧 化铝球、煅烧氧化铝和氧化镁为原料,合成了革青 石-莫来石复合材料,当复合材料中堇青石含量为 70%、莫来石含量为30%时,该材料的体积密度、显 气孔率和冷萃强度分别为 2.10 g/cm³、11.49% 和 489 MPa。Ramezani 等^[16]以废气催化剂、废蛇纹石、 废弃陶瓷辊棒和高岭土为原料采用高温固相法合成 了堇青石-莫来石复合材料,且其热膨胀系数低于 工业产品。上述研究均能降低堇青石-莫来石生产 原料成本,但原料来源种类杂多,组成不稳定目杂质 难以有效调控。高铝粉煤灰中铝硅元素含量高,可 作为堇青石-莫来石复合材料的重要原料;但其较 低的铝硅比和较高的杂质含量是影响高铝粉煤灰制 备铝硅材料的关键。目前主要通过添加铝源[17-19] 和碱脱硅提高铝硅比[9-11]。添加铝源能有效调控原 料铝硅比,但需消耗大量高品位含铝矿物,且杂质难 以调控:碱脱硅法难以达到理想的脱硅效果,且副反 应难以调控,杂质含量较高,无法满足铝硅复合材料 产品要求。

本文借鉴高铝粉煤灰制备莫来石的预处理方 法^[10-11],以高铝粉煤灰为单一原料,通过酸处理过 程大幅降低其中杂质,通过碱处理过程提高原料铝 硅比。以酸处理高铝粉煤灰、酸处理-碱脱硅高铝 粉煤灰和滑石粉为原料,按照一定的堇青石和莫来 石质量比进行混合配料,考察一步原位高温相转化 制备过程中原料配比、烧成时间和烧成温度对合成 的堇青石-莫来石材料的体积密度、显气孔率、常温 抗折强度和矿相结构的影响,通过工艺优化得到满 足国家标准要求的堇青石-莫来石复合材料。

1 试 验

1.1 材料与试剂

高铝粉煤灰(下文简称粉煤灰)来自内蒙古国 华准格尔电厂,滑石粉产自辽宁省海城市。盐酸 (36%~38%)、NaOH(96%)均为分析纯,产自北京 化工厂。去离子水采用 Millipore 纯水仪(密理博中 国有限公司)制备。

1.2 试验方法

1.2.1 高铝粉煤灰预处理

对粉煤灰进行酸处理(温度 80 ℃、液固比 4 mL/g、盐酸浓度 200 g/L、时间 120 min^[9]),反应 结束后,经过滤、洗涤、干燥处理得到酸处理后的高 铝粉煤灰(简称酸处理粉煤灰);对部分酸处理粉煤 灰进行碱脱硅处理(温度 95 ℃、液固比 5 mL/g、 NaOH 质量浓度 230 g/L、时间 80 min^[9]);成型:向 原料中添加 5% 的水,搅拌均匀;陈腐 24 h 后,用压 样机对原料进行压样(成型压力 150 MPa,条形样品 尺寸约 5 mm×5 mm×40 mm^[15-16])。

1.2.2 样品制备及材料合成

 1)混料和湿磨。以酸处理粉煤灰、酸-碱处理 粉煤灰和滑石粉为原料,按照一定的堇青石和莫来 石理论质量比(简称 C:M)进行混料(表1),并置 于球磨罐中进行湿法球磨(含水率 50%、球磨时间 60 min、转速 250 r/min)。

表 1 不同堇青石和莫来石理论质量比及对应的原料占比

Table 1Theoretical mass ratios of cordierite to mullite
and corresponding fractions of raw materials

С : М	酸处理粉煤灰 质量分数/%	酸-碱处理粉煤灰 质量分数/%	滑石粉质 量分数/%
10:90	7.47	88.86	3.67
30:70	15.76	72.48	11.76
50:50	24.03	56.14	19.83
70:30	32.28	39.84	27.88
90 : 10	40. 52	23.56	35.92

2)干燥。将湿料置于干燥箱中干燥(温度 105℃、时间 24 h)。

3) 成型。向原料中添加 5% 的水,搅拌均匀;陈 腐 24 h 后,用压样机进行压样(成型压力 150 MPa, 条形样品尺寸约5 mm×5 mm×40 mm)。

4)干燥。将条形样品置于干燥箱中干燥(温度105 ℃、时间3h)。

5) 烧成。将样品置于高温马弗炉中烧成,烧成 过程为:从常温到 1 000 ℃,升温速率 5 ℃/min; 从 1 000 ℃到目标温度 *T*,升温速率 3 ℃/min;目标 温度 *T* 下保温一段时间 *t*;从目标温度 *T* 到 1 000 ℃,降温速率 3 ℃/min;从 1 000 ~ 800 ℃,降温速率

0%

5 ℃/min;之后自然降温到100 ℃以下。

1.2.3 样品分析

按照 GB/T 2997—2015《致密定形耐火制品体 积密度、显气孔率和真气孔率试验方法》试样浸渍-常规法测定烧成样品的显气孔率和体积密度。使用 WDW 3020 微控电子万能试验机(长春科新试验仪 器有限公司)测定样品的常温抗折强度。测定条 件:加荷刀口移动速度 0.3 mm/min,三点弯曲跨距 30 mm,平行试样 3 个。

将原料置于950 ℃,保持1h,确定原料的烧失 分(LOI)含量。对烧成后的样品粉碎、球磨处理,采 用X射线荧光光谱仪(荷兰帕纳科公司,型号AX-IOS-MAX)分析粉末样品的化学组成。采用X射线 衍射仪(荷兰帕纳科公司,型号 Empyrean)分析粉末

Table 2

样品晶相组成。分析条件: CuKα射线,管电流、电压分别为40 kV、40 mA,扫描时间29.45 min,扫描范围5°~90°。采用扫描电子显微镜(日本 JEOL 公司,型号 JSM-7610F)分析样品的微观形貌。

2 结果与讨论

原料物理和化学特征是制备堇青石-莫来石复 合材料的基础,而原料配比、烧成时间和烧成温度是 影响制备堇青石-莫来石材料过程的主要因素,决 定了产品的性能。

2.1 原料特征

2.1.1 原料化学组成和矿相组成

原料化学组成见表2,粉煤灰、酸处理粉煤灰和酸-碱处理粉煤灰矿相组成如图1所示。

表2 原料化学组成

Chamical composition of raw materials

			Chemical	omposition o		15		70
原料 —	化学组成							LOI
	Al_2O_3	SiO_2	CaO	TiO ₂	$\mathrm{Fe}_2\mathrm{O}_3$	Na ₂ O	MgO	LOI
粉煤灰	50. 14	39.17	3.07	2.26	1.47	0.17	0.17	1.77
酸处理粉煤灰	49.65	42.84	0.82	1.85	1.03	0.10	0.20	1.89
酸-碱处理粉煤灰	67.79	26.07	0. 28	2.12	0.84	0	0.12	2.30
滑石粉	0.01	62.14	0.86	0	0.20	0	32.04	4.75



- 图1 粉煤灰、酸处理粉煤灰和酸-碱处理粉煤灰矿相组成
- Fig. 1 Mineral composition of coal fly ash (CFA), acid treated CFA and acid-alkali treated CFA

由表2可知,高铝粉煤灰主要含Al₂O₃和SiO₂, 同时含少量CaO、TiO₂、Fe₂O₃等杂质;高铝粉煤灰主 要矿相为莫来石和刚玉相,还有以SiO₂为主的玻璃 相。相比原始高铝粉煤灰,酸处理粉煤灰的铝硅比 从1.28降低到1.16;酸处理后的粉煤灰中钙、钛、 铁杂质均不同程度降低,说明酸处理具有明显的除 杂效果,可有效减少粉煤灰原料中杂质对制备的材 料性能的影响。

由图1可知,酸处理粉煤灰保留了原有的莫来

石和刚玉相,Zhang 等^[10]认为酸处理主要破坏了粉 煤灰中部分活性铝硅酸盐,使部分活性铝浸出到液 相,导致粉煤灰的铝硅比降低。酸-碱处理粉煤灰 铝硅比提高到 2.60,说明碱脱硅效果显著;其 XRD 谱图中代表玻璃相的鼓包消失,莫来石和刚玉相峰 变化不大,脱硅过程主要破坏了粉煤灰的玻璃相。

2.1.2 原料的粒径分布和微观形态

原料的粒径分布如图 2 所示,粉煤灰、酸处理粉 煤灰和酸-碱处理粉煤灰微观形态如图 3 所示。



图2 原料的粒径分布

 Fig. 2
 Particle size distributions of raw materials

 由图 2 可知,粉煤灰、酸处理粉煤灰、酸-碱处





图 3 粉煤灰、酸处理粉煤灰和酸-碱处理粉煤灰微观形态 Fig. 3 Micromorphology of CFA, acid treated CFA and acid-alkali treated CFA

理粉煤灰中值粒径 d₅₀ 分别为 17.59、18.04、16.93, 其粒径分布整体相似,说明预处理过程没有显著改 变粉煤灰的粒径和分布。由图3可知,酸处理后粉 煤灰颗粒形状和表面形貌变化不大,保持了原有的 球形和光滑表面;酸-碱处理粉煤灰颗粒保持了原 有颗粒形状,但颗粒表面变得粗糙,出现了大量孔 道,暴露了颗粒中晶相,可能是嵌入到晶体间的玻璃 相被碱大量溶解的缘故。

2.2 影响因素

2.2.1 原料配比

研究了 T=1 370 ℃、t=2 h 时,原料配比对烧成 样品的体积密度、显气孔率和常温抗折强度的影响, 结果如图4所示。由图4可知,随着堇青石与莫来 石理论质量比的增加,烧成样品的体积密度从 2.25 g/cm³ 下降到 1.81 g/cm³:显气孔率呈上升趋 势,从 27.94% 上升到 32.13%;常温抗折强度从 76.03 MPa 下降到 48.91 MPa。

T=1 370 ℃、t=2 h 时,原料配比对烧成样品矿 相组成的影响如图 5 所示。由图 5 可知, 堇青石与 莫来石理论质量比为10:90时,烧成样品为莫来石 相,没有形成堇青石晶相,推测镁主要以玻璃相形式 存在:随着堇青石与莫来石理论质量比的提高,在峰 宽基本不变的情况下,堇青石晶相峰的强度逐渐增 大.莫来石晶相峰的强度减小;原料中堇青石与莫来 石理论含量比为90:10时,烧成样品的晶相为堇青 石,莫来石晶相峰消失。结果表明原料中堇青石与 莫来石理论质量比为30:70~70:30时,可制备出 堇青石-莫来石复合材料;逐步提高原料中堇青石 与莫来石理论质量比,有助于提高烧成材料中堇青 石含量,降低莫来石含量。

根据文献[20-21]报道,堇青石材料体积密度 和常温抗折强度均低于莫来石,显气孔率高于莫来 石。随着堇青石-莫来石复合材料中堇青石含量的 增加和莫来石含量的降低,其体积密度、显气孔率和 常温抗折强度分别向堇青石体积密度、显气孔率和



图 4 原料配比对烧成样品的体积密度、显气孔率和 的常温抗折强度影响

Fig. 4 Effects of combinations of raw materials on bulk density, apparent porosity and bending strengths of calcination products



图5 原料配比对烧成样品矿相组成的影响

Effects of combinations of raw materials on the mineral Fig. 5 compositions of calcination products

常温抗折强度大小方向变化,即出现了体积密度减 小、显气孔率增加、常温抗折强度减小的趋势。材料 的矿相组成影响性质,性质又影响其用途。通过改 变原料配比可灵活制备具有不同革青石和莫来石含 量的复合材料,增加了产品的应用范围。

2.2.2 烧成时间

T=1 370 ℃、C:M=50:50 时,烧成时间对 烧成样品体积密度、显气孔率和常温抗折强度的 影响如图6所示。可知,烧成时间为1~4h时,体 积密度、显气孔率和常温抗折强度分别维持在 1.98 g/cm³、32.00%、65.00 MPa 左右,且随着烧 成时间的增加分别呈现略增大、略减小、略增大的 趋势。



常温抗折强度的影响

Fig. 6 Effects of calcination time on bulk density, apparent porosity and bending strengths of calcination products

T=1 370 ℃、C:M=50:50时,研究烧成时间 对烧成样品矿相组成的影响,结果如图7所示。由 图7可知,烧成时间为1~4h时,烧成样品矿相组 成无明显变化,晶相均为堇青石和莫来石。说明烧 成时间为1h时,烧成反应基本完成,生成了晶相组 成为堇青石和莫来石的复合材料;随着烧成时间的 增加,烧成反应更加充分,堇青石和莫来石晶体间隙 更加致密,呈现出体积密度增加、显气孔率减小、抗 折强度增加的趋势。





Fig. 7 Effects of calcination time on the mineral compositions of calcination products

2.2.3 烧成温度

t=2 h、C:M=50:50 时,研究烧成温度对烧成 样品的体积密度、显气孔率和常温抗折强度的影响, 结果如图 8 所示。由图 8 可知,烧成温度从 1 170 ℃升高到 1 320 ℃时,烧成样品的体积密度和显气 孔率无明显变化,分别维持在 1.90 g/cm³ 和 35.50% 左右;常温抗折强度从 39.84 MPa 增大到 59.31 MPa。烧成温度超过 1 320 ℃时,指标发生明 显变化,当烧成温度达到 1 420 ℃时,体积密度增大 到 2.62 g/cm³,显气孔率减小到 0.21%,常温抗折 强度增大到 119.34 MPa。



Fig. 8 Effects of calcination temperature on bulk density, apparent porosity and bending strengths of calcination products

烧成温度对烧成样品矿相的影响如图9所示。 由图9可知,烧成温度为1170℃和1220℃时,烧 成样品的晶相为堇青石、莫来石和少量的氧化铝;随 着烧成温度的升高,烧成样品中堇青石晶体峰强度 逐渐增强,氧化铝晶体峰强度逐渐减弱,并在烧成温 度1270℃时消失,说明提高烧成温度可促进氧化 铝向堇青石转化。烧成温度为1270~1420℃时, 烧成样品中仅含有堇青石和莫来石晶体,且XRD 谱 图无明显变化,说明此时生成了仅含堇青石和莫来 石晶体的堇青石-莫来石复合材料。

T=1 370 ℃、t=2 h、C:M=50:50 时,烧成样品的微观形貌如图10 所示。由图10 可知,1 370 ℃下生成的堇青石-莫来石复合材料主要含有棒状、短柱状的晶体,晶体颗粒之间掺杂一定量的玻璃相。

烧成温度的提高促进了烧成过程固-固反应的 进行,有利于堇青石晶体和莫来石晶体的生成和长 大,使晶体结构更加致密化,因此提高烧成温度导致



图9 烧成温度对烧成样品矿相的影响

Fig. 9 Effects of calcination temperature on the mineral compositions of calcination products



图 10 烧成样品的微观形貌

Fig. 10 Micromorphology of calcination products

烧成样品的体积密度增大,显气孔率减小,常温抗折 强度增大。上述结果与文献[16,22-23]报道的堇 青石-莫来石复合材料性能指标值和变化趋势基本 一致。YB/T 4549—2016《堇青石-莫来石窑具》对 堇青石-莫来石窑具的指标要求为:体积密度 1.85 g/cm³,显气孔率(26±4)%,常温抗折强度 10 MPa,烧结温度为1 370 ℃时,烧成样品的体积密 度1.96 g/cm³,显气孔率 30.47%,常温抗折强度 66.44 MPa,满足标准要求。

3 结 论

 1)酸处理可有效去除粉煤灰中部分活性铝、
 钙、钛、铁等杂质;碱脱硅过程有效去除粉煤灰的玻璃相,粉煤灰铝硅比提高至2.60。酸、碱预处理过 程有效降低了原料杂质含量、提高了原料铝硅比。

2)原料中堇青石和莫来石理论质量比为 30:
 70~70:30、烧成温度为1 370 ℃、烧成时间为2 h
 118

时,可制备不同堇青石和莫来石含量的复合材料。 该方法实现了以粉煤灰为主要原料灵活制备具有不 同堇青石和莫来石配比的复合材料。

3) 当烧成温度为1 370 ℃、烧成时间为2h、堇 青石和莫来石理论配比为50:50时,可制备堇青 石-莫来石复合材料,其体积密度为1.96 g/cm³、显 气孔率为30.47%、常温抗折强度为66.44 MPa,均 达到 YB/T 4549—2016《堇青石-莫来石窑具》相应 指标要求。

参考文献(References):

- 李会泉,张建波,王晨晔,等. 高铝粉煤灰伴生资源清洁循环利用技术的构建与研究进展[J]. 洁净煤技术,2018,24(2):1-8.
 LI Huiquan,ZHANG Jianbo, WANG Chenye, et al. Construct and research advance in clean and cycle utilization of associated resources in high-alumina coal fly ash[J]. Clean Coal Technology, 2018,24(2):1-8.
- [2] SIAD H, LACHEMI M, SAHMARAN M, et al. Use of recycled glass powder to improve the performance properties of high volume fly ash-engineered cementitious composites [J]. Construction and Building Materials, 2017, 163:53-62.
- [3] KURDA R, BRITO J D, SILVESTRE J D, et al. Combined influence of recycled concrete aggregates and high contents of fly ash on concrete properties [J]. Construction and Building Materials, 2017,157:554-572.
- [4] DAI Shifeng, ZHAO Lei, PENG Suping, et al. Abundances and distribution of minerals and elements in high-alumina coal fly ash from the Jungar Power Plant, Inner Mongolia, China [J]. International Journal of Coal Geology, 2010, 81(4):320-332.
- [5] GONG Bengen, TIAN Chong, XIONG Zhuo, et al. Mineral changes and trace element releases during extraction of alumina from high aluminum fly ash in Inner Mongolia, China [J]. International Journal of Coal Geology, 2016, 166:96-107.
- [6] LI Huiquan, HUI Junbo, WANG Chenye, et al. Extraction of alumina from coal fly ash by mixed-alkaline hydrothermal method[J]. Hydrometallurgy, 2014, 147/148:183-187.
- [7] XU Dehua, LI Huiquan, BAO Weijun, et al. A new process of extracting alumina from high-alumina coal fly ash in NH₄HSO₄ + H₂SO₄ mixed solution[J]. Hydrometallurgy, 2016, 165:336-344.
- [8] SUN Zhenhua, BAO Weijun, LI Huiquan, et al. Mineral phase change of high-alumina fly ash during desilication and extraction of Al₂O₃ by alkali dissolution process [J]. The Chinese Journal of Process Engineering, 2013, 13(3):403-408.
- [9] ZHANG Jianbo, LI Shaopeng, LI Huiquan, et al. Acid activation for pre-desilicated high-alumina fly ash [J]. Fuel Processing Technology, 2016, 151:64-71.
- [10] ZHANG Jianbo, LI Huiquan, LI Shaopeng, et al. Mechanism of mechanical- chemical synergistic activation for preparation of mullite ceramics from high-alumina coal fly ash[J]. Ceramics

International, 2017, 44(4): 3884-3892.

- [11] ZHANG Jianbo, LI Shaopeng, LI Huiquan, et al. Preparation of Al - Si composite from high - alumina coal fly ash by mechanical-chemical synergistic activation [J]. Ceramics International, 2017, 43(8):6532-6541.
- [12] LUO Yang, ZHENG Shili, MA Shuhua, et al. Ceramic tiles derived from coal fly ash: Preparation and mechanical characterization[J]. Ceramics International, 2017, 43(15):11953-11966.
- [13] LUO Yang, MA Shuhua, ZHAO Zhenqing, et al. Preparation and characterization of whisker-reinforced ceramics from coal fly ash [J]. Ceramics International, 2017, 43(1):1-11.
- [14] 陈宁,丁颖颖,李素平. 堇青石-莫来石材料的研究进展及应用前景[J]. 中国陶瓷,2016,52(6):6-9.
 CHEN Ning, DING Yingying, LI Suping. Research progress and application prospect of Cordierite mullite Materials [J]. China Ceramics,2016,52(6):6-9.
- [15] KHATTAB R M, EL-RAFEI A M, ZAWRAH M F. In situ formation of sintered cordierite-mullite nano-micro composites by utilizing of waste silica fume[J]. Materials Research Bulletin, 2012, 47(9):2662-2667.
- [16] RAMEZANI A, EMAMI S M, NEMAT S. Reuse of spent FCC catalyst, waste serpentine and kiln rollers waste for synthesis of cordierite and cordierite – mullite ceramics [J]. Journal of Hazardous Materials, 2017, 338:177–185.
- [17] 孙俊民,程照斌,李玉琼,等.利用粉煤灰与工业氧化铝合成 莫来石的研究[J].中国矿业大学学报,1999,28(3):247-250.

SUN Junmin, CHENG Zhaobin, LI Yuqiong, et al. Research on sythesizing mullite with fly ash and alumina[J]. Journal of China University of Mining & Technology, 1999, 28(3):247-250.

 $[\,18\,]$ $\,$ LI Jinhong, MA Hongwen, HUANG Wenhui. Effect of $\rm V_2O_5$ on

the properties of mullite ceramics synthesized from high-aluminum fly ash and bauxite [J]. Journal of Hazardous Materials, 2009,166(2):1535-1539.

- [19] 陈江峰,邵龙义,魏思民.利用高铝粉煤灰合成莫来石的实验研究[J].矿物学报,2008,28(2):191-195.
 CHEN Jiangfeng, SHAO Longyi, WEI Simin. Experimental study of synthesizing mullite from high-alumina fly coal ash[J]. Acta Mineralogica Sinica,2008,28(2):191-195.
- [20] LIN Bin, LI Shaopeng, HOU Xinjuan, et al. Preparation of high performance mullite ceramics from high-aluminum fly ash by an effective method [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2015, 623;359-3561.
- [21] 马立建,杨潘,薛群虎,等.利用高铝粉煤灰合成堇青石陶瓷 材料的微观结构研究[J].西安建筑科技大学学报(自然科学 版),2017,49(1):141-144.

MA Lijian, YANG Pan, XUE Qunhu, et al. Study on the microstructures of cordierite ceramics using high-alumina fly ash[J]. Journal of Xi´an University of Architecture & Technology(Natural Science Edition), 2017, 49(1):141–144.

 [22] 徐晓虹,马雄华,吴建锋,等.太阳能热发电用堇青石-莫来石复相陶瓷的制备及抗热震性[J].武汉理工大学学报,2012, 34(1):1-6.

> XU Xiaohong, MA Xionghua, WU Jianfeng, et al. Preparation and thermal shock resistance of cordierite-mullite composite ceramic for solar thermal power[J]. Journal of Wuhan University of Technology, 2012, 34(1):1-6.

[23] LI Fengfeng, DU Jiao, ZHANG Mingxi, et al. Preparation of cordierite-mullite composite crucibles and structure characterization [J]. Advanced Materials Research, 2012, 430/431/432; 521 – 524.