第 48 卷第 8 期　　硅　酸　盐　学　报　　Vol. 48，No. 8
2020 年 8 月　　JOURNAL OF THE CHINESE CERAMIC SOCIETY　　August，2020
http://www.gxyb.cbpt.cnki.net　　DOI：10.14062/j.issn.0454-5648.20190736

以粉煤灰为原料制备镁铝水滑石

刘定鹏[1]，秦　军[1]，吕　晴[1]，何　敏[2,3]，于　杰[3]，李　杏[1]

(1. 贵州大学，喀斯特环境与地质灾害防治重点实验室，贵阳 550025；2. 贵州大学材料与冶金学院，贵阳 550025；
3. 国家复合改性聚合物材料工程技术研究中心，贵阳 550014)

摘　要：以粉煤灰为原料，将其焙烧后得到的熟料经过硫酸酸浸工艺处理得到含有铝离子的酸浸液，通过调节 pH 值将氢氧化铝析出，以其作为铝源，与氧化镁、碳酸钠在密闭条件下进行水热反应合成镁铝水滑石。Fourier 变换红外光谱仪，X 射线衍射和扫描电子显微镜对产物进行分析，结果表明：摩尔比 n(MgO):n($Al(OH)_3$):n(Na_2CO_3)=2:1:1，160 ℃反应 14 h，可以合成结晶度较好，物相纯净且片层结构较完整的镁铝水滑石。此外，初步考察了镁铝水滑石对磷吸附的可行性，当磷溶液浓度为 20 mg/L，镁铝水滑石投加量为 0.7 g 时，去除率可达 97.4%，pH 值适用范围为 4~10。

关键词：粉煤灰；酸浸提铝；水热反应；镁铝水滑石；磷吸附
中图分类号：TF821　　**文献标志码：**A　　**文章编号：**0454–5648(2020)08–1341–07
网络出版时间：2020–06–03

Preparation of Magnesium-Aluminum Hydrotalcite from Fly Ash

LIU Dingpeng[1], *QIN Jun*[1], *LV Qing*[1], *HE Min*[2,3], *YU Jie*[3], *LI Xing*[1]

(1. Key Laboratory of the Ministry of Land and Resources of Karst Environment and Geology Disasters, Guizhou University, Guiyang 550025, China;
2. College of Materials Science and Metallugry Engineering, Guizhou University, Guiyang 550025, China;
3. National Engineering Research Center for Compounding and Modification of Polymeric Materials, Guiyang 550014, China)

Abstract: An acid leaching solution containing aluminum ions was obtained by a sulfuric acid leaching process after calcining clinkers using coal fly ash as a raw material. Aluminum hydroxide was precipitated through adjusting the pH value of solution and used as an aluminum source. Magnesium aluminum hydrotalcite was synthesized *via* hydrothermal reaction with magnesium oxide and sodium carbonate. Based on the results by Fourier transform infrared spectroscopy, X-ray diffraction and scanning electron microscopy, magnesium-aluminum hydrotalcite with a good crystallinity, a pure phase and a complete lamellar structure can be synthesized under the hydrothermal conditions (*i.e.*, mole ratio n(MgO):n($Al(OH)_3$):n(Na_2CO_3) of 2:1:1, at 160 ℃ for 14 h). In addition, the feasibility of adsorbing phosphorus by Mg-Al hydrotalcite was also investigated. The removal rate can reach 97.4% when the concentration of phosphorus solution is 20 mg/L, the dosage of Mg-Al hydrotalcite is 0.7 g and pH value is 4–10.

Keywords: coal fly ash; acid leaching of aluminum; hydrothermal method; magnesium aluminum hydrotalcite; phosphorous adsorption

粉煤灰是燃煤电厂排放的一种固体废物，其由于含有丰富的铝硅资源，成为近年来研究人员的关注热点[1–2]。粉煤灰中 Al_2O_3 的含量一般在 20%~35%，一些高铝粉煤灰铝的含量最高可达 50%以上[3]，粉煤灰的排放使得大量铝资源未被利用，并对环境造成严重污染，从粉煤灰中将具有潜在利用价值的铝资源提取出来，在一定程度上实现了粉煤灰资源的充分利用，同时也可以缓解铝工业资源的紧缺[4–5]。从粉煤灰中提取氧化铝的工艺主要有酸浸法、浓碱溶出法、石灰石烧结法、氟氨助溶法等[6–7]。

收稿日期：2019–11–08。　修订日期：2020–01–14。
基金项目：国家自然科学基金(51763002，21266005)；贵州省科技厅联合基金项目(黔科合 LH 字［2014］7648)。
第一作者：刘定鹏(1994—)，男，硕士研究生。
通信作者：秦　军(1970—)，男，教授。

Received date: 2019–11–08.　**Revised date:** 2020–01–14.
First author: LIU Dingpeng (1994–), male, Master candidate.
E-mail: 936404693@qq.com
Correspondent authors: QIN Jun (1970–), male, Professor.
E-mail: qi_njun@163.com

目前从粉煤灰中酸浸提铝的主要方法有直接酸浸法、加压酸浸法以及烧结酸浸法 3 种[8–10]。酸浸法是采用一定浓度的硫酸浸出粉煤灰中的氧化铝，从而以铝离子的形式析出。酸浸法具有低能耗、利用率高、投资低等特点，是理想的粉煤灰综合利用方法。

镁铝水滑石(Mg/Al layered double hydroxides，简称 Mg/Al-LDHs)又叫层状双金属氢氧化物或阴离子性黏土，它是一类具有特殊结构的层状无机材料，也是一种具有可调变的组成及独特结构和性能的化合物。在离子交换和吸附、催化、阻燃等多方面得到了广泛的应用，具有潜在的利用前景[11–14]。Mg/Al-LDHs 的合成方法主要包括共沉淀法、水热合成法、离子交换法和焙烧还原法等[15–18]。水热法大多利用的是可溶性的前驱物，需要将其溶解搅拌后放入反应釜进行反应，而利用不溶性的镁铝前驱物直接一步水热合成 LDH 的文献资料很少[19–20]。

水体富营养化一直是我国最严峻的环境污染问题之一，而磷的排放是导致水质富营养化的主要因素之一，因此磷的去除是解决水体富营养化的关键。目前吸附法是常用的一种除磷方法，因其工艺简单、高效快速并低能耗而受到了广泛关注[21–22]。由于水滑石特殊的层间阴离子可交换性，对磷酸根有着较高的吸附性，水滑石类化合物作为除磷方面的一种新型高效吸附剂，受到越来越多的重视。

本研究中通过硫酸酸浸工艺对粉煤灰进行处理，酸浸液经沉淀得到的氢氧化铝与碳酸钠、氧化镁在密闭条件下水热法直接合成镁铝水滑石，探讨了 Mg/Al 摩尔比、水热温度、水热时间对 Mg/Al-LDH 物相成分、晶粒结构及其形貌的影响。此外，以制备的镁铝水滑石作为吸附剂，对其吸附磷的性能进行了初步研究，从而达到以废治废的目的，也为粉煤灰的资源化利用提供了一种思路。

1 实验

1.1 原料与表征

粉煤灰原样(灵寿县永德顺矿业加工厂)的化学成分(质量分数)为：SiO_2 50.8%、Al_2O_3 28.1%、Fe_2O_3 6.2%、CaO 3.7%、MgO 1.2%、SO_2 0.8%、Na_2O 1.2%、K_2O 0.6%、烧失量 7.9%，且粉煤灰主要成分为莫来石($Al_6Si_2O_{13}$)和二氧化硅。氧化镁、无水碳酸钠、氢氧化钠、；磷酸二氢钾、抗坏血酸、酒石酸锑钾、钼酸铵、浓硫酸(98%)、浓盐酸(36%)均为分析纯。

采用 X'Pert PRO 型 X 射线衍射仪(XRD)对样品进行表征[Cu-K_α 射线(λ=0.15406 nm)，管压 40 kV，管流 40 mA，扫描区间为 10°~70°，扫描速率为 10 (°)/min]；采用 Nicolet6700 型 Fourier 变换红外光谱仪(FTIR，美国 Thermo 公司)对样品进行表征(粉末 KBr 压片)；日立高新 Regulus 系列 SU8230 型场发射扫描电子显微镜(SEM)对样品进行形貌表征；采用 721-紫外分光光度计(上海奥普勒仪器有限公司)对磷酸根进行测定。

1.2 Mg/Al-LDHs 的合成

在粉煤灰原样中加入碳酸钠，在坩埚中混合搅拌均匀后放入马弗炉里煅烧 2 h，然后将熟料与硫酸混合后倒入三口烧瓶并放入磁力搅拌器中在一定温度下搅拌，静置一段时间后经抽滤得到带有杂质的 $Al_2(SO_4)_3$ 滤液。用配制好的 NaOH 溶液调节 pH 值至溶液中杂质离子完全沉淀，Al^{3+}由于溶液里的 OH^-浓度变高转而变为 AlO^{2-}形式存在，将其滤出，再调节 pH 值至 5 左右，洗涤干燥后得到纯净 $Al(OH)_3$，作为铝源，平均产率为 87.4%。对其进行 XRD 分析，结果如图 1 所示，通过对照 JCPDS (85-0611、83-2256、73-0359)可以看到氢氧化铝的成分由诺水铝石(β'-$Al(OH)_3$)、三水铝石(α-$Al(OH)_3$)以及勃姆石(α-AlOOH)组成。

将制得的 $Al(OH)_3$、MgO 与 Na_2CO_3 配以不同的比例混合加入到装有聚四氟乙烯内衬中，同时加入少量去离子水，充分混合搅拌，放入烘箱以 80~160 ℃的不同温度反应 6~14 h 后经抽滤、洗涤、干燥得到 Mg/Al-LDHs，平均产率为 84.5%，Al 的利用率接近 100%。

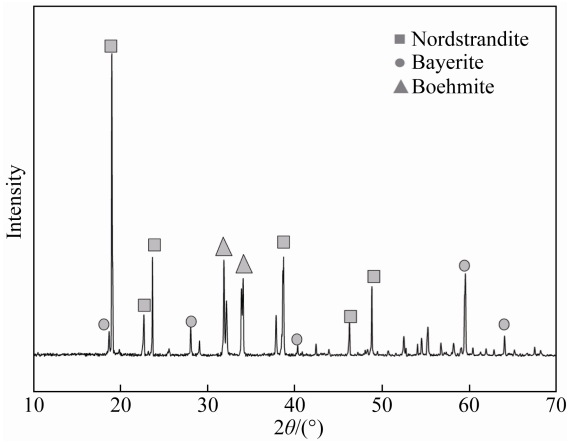


图 1 氢氧化铝的 XRD 谱

Fig. 1 XRD pattern of aluminum hydroxide

1.3 吸附实验

分别称取 0.05、0.10、0.15、0.30、0.50、0.70、

1.00、1.50 g 镁铝水滑石样品置于 50 mL 离心管中，再加入到用磷酸二氢钾(K_2HPO_4)配制的磷酸盐溶液(20 mg/L)，然后在水浴振荡器中以 25 ℃恒温振荡 4 h，保持 pH=6，振荡后过滤，采用钼锑抗分光光度法测定滤液中磷酸盐的浓度，计算公式如下：

$$q_t = \frac{(\rho_0 - \rho_t)V}{m}$$

式中：q_t 为 t 时刻的吸附量，mg/g；ρ_0 为吸附前溶液的质量浓度，mg/L；ρ_t 为 t 时刻所测的溶液中剩余磷的质量浓度，mg/L；V 为溶液体积，L；m 为吸附剂的质量，g。

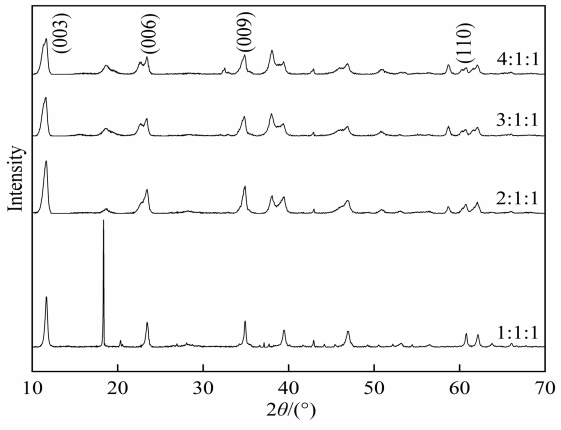
2　结果与讨论

2.1　Mg/Al-LDHs 物相分析

2.1.1　Mg/Al 摩尔比与 Mg/Al-LDHs 物相关系　图 2 为 n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na_2CO_3)(摩尔比)分别为 4:1:1,3:1:1,2:1:1,1:1:1 时，于 140 ℃反应 10 h 制备的 Mg/Al-LDHs 的 XRD 谱。通过比对 JCPDS 卡片 89-0460 可以发现：制备的 Mg/Al-LDH 样品都具有典型的镁铝水滑石晶体结构特征衍射峰(003)、(006)、(009)且 2θ 都成较好的倍数关系。n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na_2CO_3)=1:1:1 的 Mg/Al-LDHs 样品，在 2θ=18°处为 Al(OH)$_3$ 相(JCPDS74-1775)，说明 Mg/Al 比为 1 时，样品中 Al(OH)$_3$ 的量还很多，没有反应完全；在 n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na_2CO_3)为 2:1:1 时 Mg/Al-LDHs 晶型结构比较好，杂峰较少，仅在 2θ=38°处出现了 1 个分叉的峰，可以推断是 Mg(OH)$_2$ 相(JCPDS44-1482)，可能是由于反应温度较低以及反应时间较短导致的，由于在 Mg/Al 比为 3:1 和 4:1 时峰型较差，且杂峰较多，可以初步选取 n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na_2CO_3)=2:1:1 的比例来制备 Mg/Al-LDHs。

2.1.2　反应时间与 Mg/Al-LDHs 物相关系　图 3 为在 n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na_2CO_3)=2:1:1 时，于 140 ℃反应不同时间合成 Mg/Al-LDHs 的 XRD 谱。由图 3 可见：反应时间在 6～12 h 阶段虽然有类水滑石结构的特征衍射峰，当 2θ=38°、42°时有杂相 Mg(OH)$_2$ 与 MgO；而当反应时间为 14 h 时，杂相明显减少，各个特征衍射峰明显强度增强且峰型变尖锐，并且在 2θ=60°~62°时出现了(110)和(113)明显的衍射峰，表明合成的水滑石具有一定对称性、结晶度较好、晶相相对单一，说明反应时间对水热反应过程中镁铝水滑石的晶化过程影响较大，反应时间越长，合成的 Mg/Al-LDHs 结晶度越好。因此选取反应时间为 14 h 来制备 Mg/Al-LDHs。

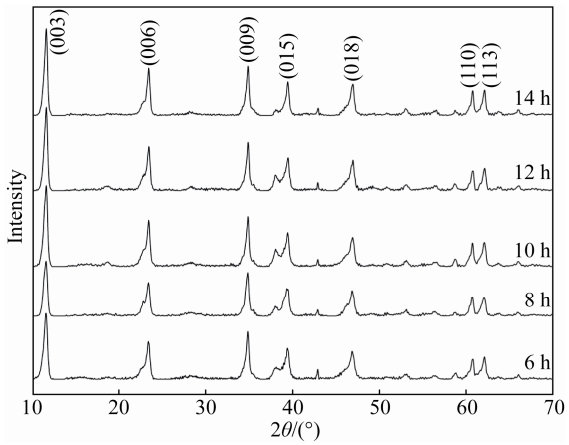
2.1.3　反应温度与 Mg/Al-LDHs 物相关系　由图 2 和图 3 可以看出，在 Mg/Al 摩尔比为 2:1，反应时间为 14 h 的条件下合成的 Mg/Al-LDHs 物相较为单一、纯净，因此采取此条件，于不同温度(T=100、120、140、160、180 ℃)合成 Mg/Al-LDHs。图 4 为不同温度所合成 Mg/Al-LDHs 的 XRD 谱。由图 4 可以看出不同温度合成的样品都具有类水滑石结构的 3 个晶面特征衍射峰(003)，(006)和(009)，且都出现了(110)与(113)两晶面的特征衍射峰，2θ=60°~62°，样品结晶度较好、晶相单一、结构规整。较低温度下(T=100、120、140 ℃)在(015)晶面附近



Reacted at 140 ℃ for 10 h.

图2　不同n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na_2CO_3)制备 Mg/Al-LDHs 的 XRD 谱

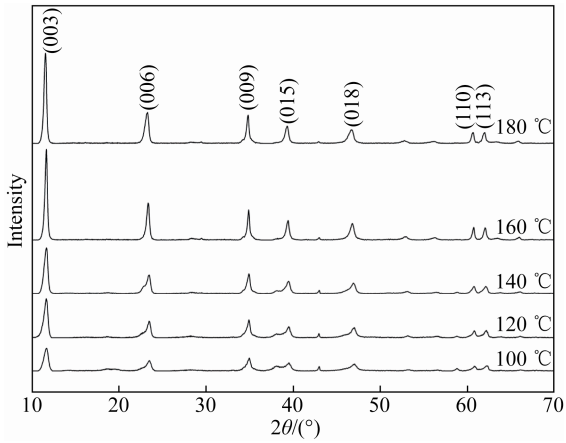
Fig. 2　XRD patterns of Mg/Al-LDHs prepared by different mole ratios n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na_2CO_3)



n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na_2CO_3)=2:1:1, T=140 ℃.

图 3　不同反应时间制备 Mg/Al-LDHs 的 XRD 谱

Fig. 3　XRD patterns of Mg/Al-LDHs prepared at different reaction temperatures



n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na$_2$CO$_3$)=2:1:1, t=14 h.

图 4 不同反应温度制备 Mg/Al-LDHs 的 XRD 谱

Fig. 4 XRD patterns of Mg/Al-LDHs prepared at different reaction temperatures

存在分叉的杂峰，可能是反应不完全导致的。当温度逐渐升高时，衍射峰强度越来越强，基线也越来越平稳，说明水热温度升高有助于合成水滑石晶体结构的规整、晶相单一。

表 1 为在 n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na$_2$CO$_3$)=2:1:1，反应时间为 14 h 的条件下，不同水热温度下 Mg/Al-LDHs 的 XRD 晶胞结构参数，由于 Mg/Al-LDHs 层状结构属于六方晶型，晶胞参数 c=3$d_{(003)}$，a=2$d_{(110)}$，a 是晶胞中金属离子之间的距离，c 是晶胞厚度，$D_{(110)}/D_{(003)}$为晶粒径厚比。可以明显看到：随着水热反应温度升高，(003)、(006)、(009)和(110)晶面的 d 值都逐渐变大，样品晶粒的(003)晶面沿 c 轴方向生长显著增大，在 T=180 ℃时略降低，而(110)晶面沿 a 轴方向在 T=160 ℃达到最大值，径厚比 $D_{(110)}/D_{(003)}$在 T=120 ℃时最大。综上，表 1 说明水热温度的升高有利于层间距的变大，从而导致水滑石的晶体结构更利于趋近完整，晶粒尺寸也相应变大。

表 1 不同水热温度下 Mg/Al-LDHs 的 XRD 结构参数

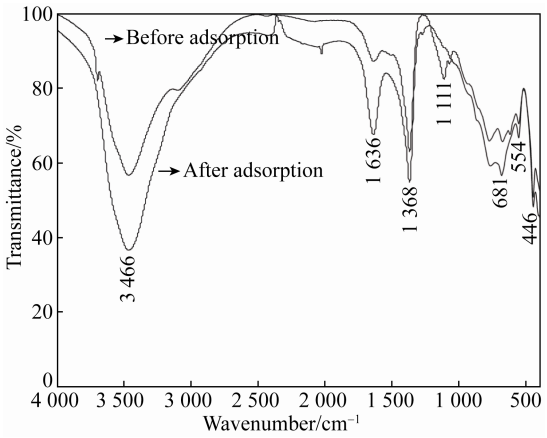
Table 1 Indexing of XRD patterns for Mg/Al-LDHs at different hydrothermal temperatures

Temperature/℃	Interlayer distance, d/nm				Lattice parameter, a/nm	Lattice parameter, c/nm	Grain size, D/nm		Ratio of diameter to thickness
	(003)	(006)	(009)	(110)			(003)	(110)	D(110)/D(003)
100	0.756	0.377	0.256	0.152	0.304	2.27	12.9	20.5	1.59
120	0.756	0.377	0.257	0.152	0.304	2.27	14.3	24.8	1.73
140	0.757	0.379	0.257	0.152	0.305	2.27	16.1	19.7	1.22
160	0.759	0.380	0.257	0.152	0.305	2.27	25.3	32.9	1.30
180	0.764	0.382	0.258	0.153	0.305	2.29	22.9	28.0	1.22

n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na$_2$CO$_3$)=2:1:1, reacted for 14 h.

2.2 FTIR 分析

以粉煤灰酸浸提取的 Al(OH)$_3$ 作为铝源在摩尔比 n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na$_2$CO$_3$)=2:1:1，160 ℃反应 14 h 制备 Mg/Al-LDHs 样品的 FTIR 谱见图 5。υ(OH)的伸缩振动在 3 200~3 650 cm^{-1} 范围内会有尖锐的峰且易于识别。在 3 500~3 650 cm^{-1} 范围会存在单体 O—H 基的吸收峰，若化合物缔合，则吸收峰会向低波数段方向平移，通常会在 3 460 cm^{-1} 左右出现强的吸收峰[23–24]。由图 5 可见：在 3 467 cm^{-1} 处出现了 1 个宽峰，υ(OH)对称收缩值小于自由轻基(3 650 cm^{-1})，这是水滑石片层羟基或物理吸附水分子 υ(OH)对称伸缩振动的现象，其原因可归结为片层和层间的羟基产生了氢键缔合相连导致的。在 1 636 cm^{-1} 处对应的是结晶水中—OH 的弯曲振动峰，说明有一定数量的水分子插入到层间；在 1 368 cm^{-1} 和 681 cm^{-1} 处有着明显的吸收峰，对应的是 CO_3^{2-}的反对称伸缩振动和反对称弯曲振动；



n(MgO):n(Al(OH)$_3$):n(Na$_2$CO$_3$)=2:1:1, reacted at 160 ℃ for 14 h.

图 5 Mg/Al-LDH 的红外光谱

Fig. 5 FTIR spectra of Mg/Al-LDH

在 400~600 cm^{-1} 之间的吸收带一般是水滑石层板上阳离子和氧原子化学键之间的相关振动，在 554 cm^{-1} 与 446 cm^{-1} 处可以推断是 Al—O 和 Mg—O 的特征

峰，可以说明是镁铝水滑石的层状骨架结构，由此以证明合成的样品为 Mg/Al-LDHs。

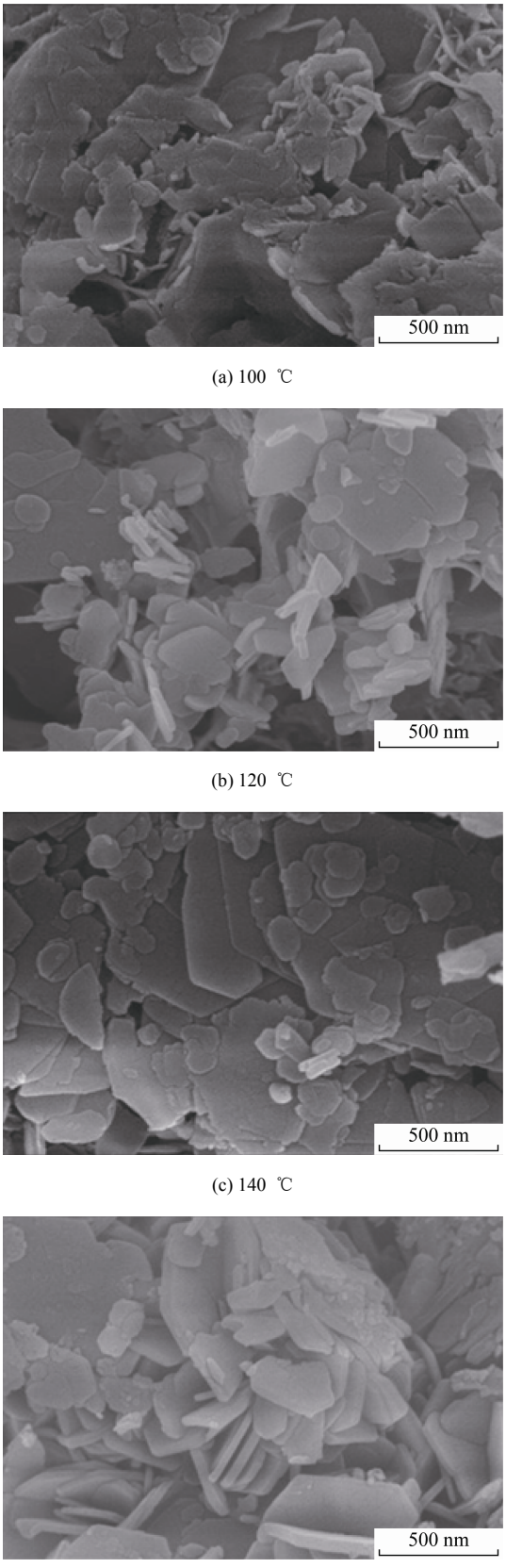
2.3　样品 Mg/Al-LDHs 的微观形貌分析

2.3.1　SEM 分析　　图 6 为在 n(MgO):n($Al(OH)_3$):n(Na_2CO_3)=2:1:1，反应时间为 14 h 的条件下，选取了 4 个不同水热温度，制备镁铝水滑石的 SEM 照片。图 6a~图 6d 是反应温度为 100、120、140 及 160 ℃的 Mg/Al-LDHs 的 SEM 照片：在反应温度为 100 ℃时，水滑石杂乱不规则，团聚现象严重，还有一些没有晶化规整的晶粒附着在层板表面上，可能是因为 MgO、$Al(OH)_3$ 没有反应完全导致的；在反应温度为 120、140 ℃时，随着水热温度升高，样品逐渐由团聚开始分散，水滑石开始形成层状结构，层板开始变厚，说明晶体在 a、c 轴方向生长速度变快，但分散性仍然不够好，且形状不规则；当反应温度为 160 ℃时，样品的分散性较好，基本规则呈六边形层板结构。可见，反应温度对合成的 Mg-Al 样品微观形貌影响较大，随着水热反应温度的升高，镁铝水滑石均开始形成片层状六边形结构，且水滑石的晶型变得趋于规整、均一且分散性变好。

2.3.2　EDS 分析　　通过 XRD 与 SEM 的结果分析可知，在高温长时间的反应条件下可得到纯度较好、结构较完整的 Mg/Al-LDHs，因此对以 n(MgO):n($Al(OH)_3$):n(Na_2CO_3)=2:1:1，160 ℃反应 14 h 条件下合成的样品，利用扫描电镜附带的 X 射线能谱仪(EDS)对其进行微分析研究，结果如图 7 所示。由图 7 可以明显看到，合成的水滑石中 Mg、Al 的含量比例非常接近于 2:1，非常接近 LDHs 的理论值。

2.4　吸附性能分析

对以粉煤灰为原料制备镁铝水滑石吸附磷的研究表明(见图 8)：在 25 ℃，pH=6，即使水滑石含量极低(0.05 g)也能使磷的去除率达到 83.6%，尽管提高水滑石含量(0.70 g)可以提高磷去除率到 97.4%，但吸附量却下降很多。同时对吸附后水滑石进行 FTIR 分析表明，吸附后的水滑石在 1 111 cm^{-1} 处出现了磷酸盐的强吸收峰，同时在 1 368 cm^{-1} 处碳酸根的吸收峰明显减弱，说明磷酸根替换了部分碳酸根而进入到水滑石层间，证实水滑石对磷具有良好的吸附效果。综合考虑磷去除率与吸附量，选择镁铝水滑石(LDH)投加量为 0.50 g 考察溶液初始 pH 值对磷吸附效果的影响，结果如图 9 所示，pH=4~10



(a) 100 ℃

(b) 120 ℃

(c) 140 ℃

(d) 160 ℃

n(MgO):n($Al(OH)_3$):n(Na_2CO_3)=2:1:1, reacted for 14 h.

图 6　不同反应温度下 Mg/Al-LDHs 的 SEM 照片

Fig. 6　SEM photos of Mg/Al-LDHs at different reaction temperatures

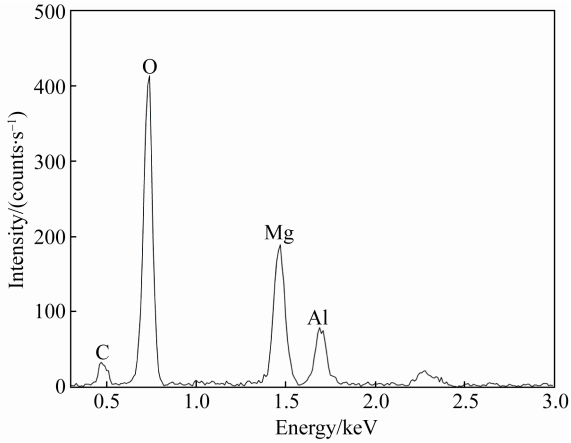


图 7 样品 Mg/Al-LDHs 的 EDS 谱

Fig. 7 EDS spectrum of Mg/Al-LDH sample

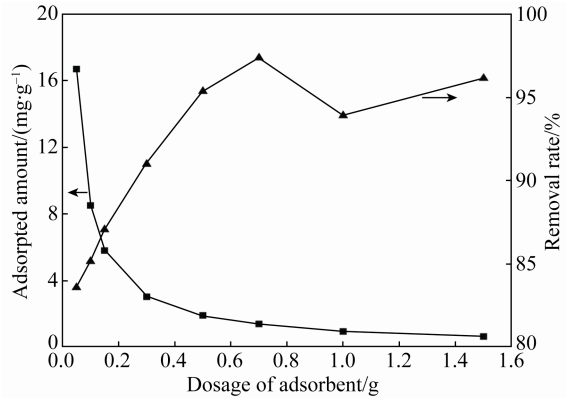


图 8 吸附剂用量对磷吸附效果的影响

Fig. 8 Effect of adsorbent dosage on phosphate adsorption

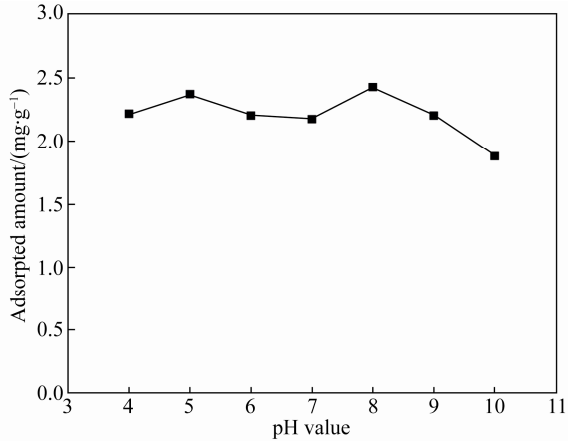


图 9 pH 值对磷吸附效果的影响

Fig. 9 Effect of pH value on phosphate adsorption

范围之间水滑石对磷的吸附量变化不大，表明以粉煤灰为原料制备镁铝水滑石对于磷的吸附有较宽的适用范围。以粉煤灰为原料制备的水滑石作为除磷材料，不仅可以有效改善环境污染，回收磷资源，还有望用于环境生态修复等方面。

3 结论

1) 通过硫酸酸浸粉煤灰提取 $Al(OH)_3$，可以一步水热法合成 Mg/Al-LDHs。

2) 在摩尔比 $n(MgO):n(Al(OH)_3):n(Na_2CO_3)$= 2:1:1，水热时间为 14 h，水热温度在 160 ℃以上可以得到结晶度较好、结构完整的 Mg/Al-LDHs。

3) 当 Mg/Al 摩尔比为 2，反应时间不变时，反应温度越高，水滑石的晶面间距都有所增大，同时(110)、(003)晶面沿 *a*、*c* 轴方向的晶粒尺寸也相应变大，在 *T*=160 ℃时晶粒尺寸 $D_{(110)}$和 $D_{(003)}$最大，在 *T*=120 ℃时径厚比 $D_{(110)}/D_{(003)}$最大。

4) 以粉煤灰为原料制备的镁铝水滑石对磷溶液具有很好的吸附效果，在水滑石投加量为 0.7 g 时，磷的去除率为 97.4%，具有较宽的 pH 值适用范围(pH=4~10)。

参考文献:

[1] 张耀君, 张科, 康乐, 等. 一种生态友好粉煤灰基地质聚合物的合成及光催化性能[J]. 无机化学学报, 2017, 33(1): 16–25.
ZHANG Yaojun, ZHANG Ke, KANG Le, et al. J Inorg Chem (in Chinese), 2017, 33(1): 16–25.

[2] YAO Z T, JI X S, SARKER P K, et al. A comprehensive review on the applications of coal fly ash[J]. Earth-Sci Rev, 2015: 141.

[3] 陈彦广, 解骢浩, 韩洪晶, 等. 利用粉煤灰合成低硅铝比 NaP 分子筛[J]. 高等学校化学学报, 2015, 36(2): 229–235.
CHEN Yanguang, XIE Conghao, HAN Hongjing, et al. Chem J Chin Univ (in Chinese), 2015, 36(2): 229–235.

[4] 游世海, 郑化安, 付东升, 等. 粉煤灰合成钙长石多孔陶瓷的结构与性能[J]. 硅酸盐学报, 2016, 44(12): 1718–1723.
YOU Shihai, ZHENG Huaan, FU Dongsheng, et al. J Chin Ceram Soc, 2016, 44(12): 1718–1723.

[5] 杨敬杰, 孙红娟, 彭同江, 等. 硫酸/硫酸铵混合助剂焙烧粉煤灰提取 Al_2O_3[J]. 硅酸盐学报, 2016, 44(10): 1538–1542.
YANG Jingjie, SUN Hongjuan, PENG Tongjiang, et al. J Chin Ceram Soc, 2016, 44(10): 1538–1542.

[6] YAO Z T, XIA M S, SARKER P K, et al. A review of the alumina recovery from coal fly ash, with a focus in China[J]. Fuel, 2014, 120: 74−85.

[7] WANG R C, ZHAI Y C, NING Z Q, et al. Thermodynamics and kinetics of alumina extraction from fly ash using an ammonium hydrogen sulfate roasting method[J]. Int J Min Met Mater, 2014, 21(2): 144–149.

[8] SHEMI A, MPANA R N, NDLOVU S, et al. Alternative techniques for extracting alumina from coal flfly ash[J]. Miner Eng, 2012, 34: 30–37.

[9] WU C Y, YU H F, ZHANG H F. Extraction of aluminum by pressure acid-leaching method from coal fly ash[J]. Trans Nonferrous Met Soc Chin, 2012, 22: 2282–2288.

[10] BAI G H, QIAO Y H, SHEN B, et al. Thermal decomposition of coal fly ash by concentrated sulfuric acid and alumina extraction process based on it[J]. Fuel Process Technol, 2011, 92: 1213–9.

[11] 余俊, 杨宇森, 卫敏. 水滑石基负载型催化剂的制备及其在催化反

应中的应用[J]. 化学学报, 2019, 77(11): 1129–1139.
YU Jun, YANG Yusen, WEI Min. Acta Chim Sin (in Chinese), 2019, 77(11): 1129–1139.

[12] 王伟, 徐振新, 郭章龙, 等. 水滑石类催化剂催化制氢及生物炼制(英文)[J]. 催化学报, 2015, 36(2): 139–147.
WANG Wei, XU Zhenxin, GUO Zhanglong, et al. Chin J Catal (in Chinese), 2015, 36(2): 139–147.

[13] GUPTA N K, SAIFUDDIN M D, KIM S, et al. Microscopic, spectroscopic, and experimental approach towards understanding the phosphate adsorption onto Zn-Fe layered double hydroxide[J]. J Mol Liq, DOI: 10.1016/j.molliq.2019.111935.

[14] XU S, ZHANG M, LI S Y, et al. The effect of ammonium polyphosphate on the mechanism of phosphorous-containing hydrotalcite synergism of flame retardation of polypropylene[J]. Appl Clay Sci, DOI: 10.1016/j.clay.2019.105348.

[15] 李硕, 白志民, 赵栋. 表面改性锌镁铝三元类水滑石的摩擦性能及抗磨机理(英文)[J]. 硅酸盐学报, 2014, 42(10): 1316–1324.
LI Shuo, BAI Zhimin, ZHAO Dong. J Chin Ceram Soc, 2014, 42(10): 1316–1324.

[16] 王晓波, 白志民, 贺智勇, 等. 镁-铝类水滑石的摩擦性能[J]. 硅酸盐学报, 2014, 42(5): 688–692.
WANG Xiaobo, BAI Zhimin, HE Zhiyong, et al. J Chin Ceram Soc, 2014, 42(5): 688–692.

[17] 郭海泉, 马晓野, 金日哲, 等. 基于氟碳表面活性剂插层水滑石的聚酰亚胺纳米复合材料的制备与性能[J]. 高等学校化学学报, 2016, 37(2): 403–408.
GUO Haiquan, MA Xiaoye, JIN Rizhe, et al. Chem J Chin Univ (in Chinese), 2016, 37(2): 403–408.

[18] HOLGADO P H, HOLGADO M J, SAN ROMÁN M S, et al. Ni–Fe mixed oxides prepared by calcination of layered double hydroxides: Potential pigments for the ceramic industry[J]. Ceram Int, 2015, 41(7). doi: 10.1016/j.ceramint.2015.03.047.

[19] XU Z P, LU G Q. Hydrothermall Synthesis of layered double hydroxides (LDHs) from mixed MgO and Al_2O_3: LDH formation Mechanism[J]. Chem Mater, 2005, 17: 1055–1062.

[20] LIAO L B, ZHAO N, XIA Z G. Hydrothermal synthesis of Mg–Al layered double hydroxides (LDHs) from natural brucite and $Al(OH)_3$[J]. Mater Res Bull, 2012, 47(11): 3897–3901.

[21] ZHAO D, CHEN J P. Application of zirconium/PVA modified flat-sheet PVDF membrane for the removal of phosphate from aqueous solution[J]. Ind Eng Chem Res, 2016, 55(24): 6835–6844.

[22] LALLEY J, HAN C, LI X, et al. Phosphate adsorption using modified iron oxide-based sorbents in lake water: Kinetics, equilibrium, and column tests[J]. Chem Eng J, 2016, 284: 1386–1396.

[23] SARIJO S H, GHAZALI S A I S M, HUSSEIN M Z. Intercalation, physicochemical and controlled release studies of organic-inorganic-herbicide (2,4,5 tricholorphenoxy butyric Acid) nanohybrid into hydrotalcite-like compounds[J]. Mater Today, 2015, 2: 345–354.

[24] KARAMI Z, JOUYANDEH M, HAMAD S M, et al. Curing epoxy with Mg-Al LDH nanoplatelets intercalated with carbonate ion[J]. Prog Org Coat, 2019: 136. doi: 10.1016/j.porgcoat.2019.105278.