

响应曲面法优化粉煤灰脱铝工艺研究

邢相栋, 张明晓, 王宇星, 郭鹏辉

(西安建筑科技大学 冶金工程学院, 陕西 西安 710055)

摘要:研究了采用硫酸铵焙烧—浸出工艺从粉煤灰中提取铝, 考察了焙烧温度、焙烧时间、硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比对粉煤灰提铝的影响, 并通过响应曲面法探讨了各因素对粉煤灰提铝率的交互影响规律, 确定了最佳焙烧参数。同时, 利用 X 射线衍射仪(XRD)、扫描电子显微镜(SEM)对粉煤灰原料及焙烧产物的物相和微观形貌进行表征。结果表明:粉煤灰硫酸铵活化焙烧后的主要产物为 $\text{NH}_4\text{Al}(\text{SO}_4)_2$, 焙烧产物表面出现了腐蚀现象;粉煤灰活化焙烧最佳工艺参数为焙烧温度 438°C , 焙烧时间 63.8 min, 硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比为 7.31, 在该工艺条件下, Al 浸出率为 95.30%, 浸出效果较好

关键词:粉煤灰; 活化焙烧; 响应曲面法; 铝; 浸出; 优化

中图分类号: TF803.2; TF821

文献标识码: A

文章编号: 1009-2617(2026)04-0521-09

DOI: 10.13355/j.cnki.sfyj.2026.04.008

燃煤发电是我国重要的能源生产方式。当前, 我国电力结构仍以化石燃料为主。粉煤灰是燃煤电厂在煤炭燃烧过程中产生的固体废物^[1-2], 2023 年粉煤灰产量达 8.27 亿 t ^[3-4]。随着全球经济的快速发展, 能源消耗持续增加, 资源综合利用已成为各国关注的重点。在我国, 粉煤灰通常用作制备建筑材料、水泥混合料及混凝土加工的原料, 部分粉煤灰还可用于道路回填、路基建设及农业等领域^[5-9]。此外, 由于粉煤灰中含有 Ca、Mg 等元素, 且具有反应活性高、无需预处理、靠近二氧化碳排放源等优势, 常被用于吸收燃煤电厂生产过程中排放的二氧化碳, 从而实现碳减排的同时提高粉煤灰的稳定性^[10-14]。粉煤灰的主要化学成分为 Al_2O_3 和 SiO_2 , 通过提取其中的 Al、Si 元素, 可将其用于制备沸石分子筛、微晶玻璃等材料, 同时有助于缓解我国铝土矿资源短缺的现状^[15-18]。在利用粉煤灰进行碳酸化封存二氧化碳之前, 高效提取其中具有价值的有价元素, 实现粉煤灰的多级利用, 具有重要的研究意义。

近年来, 粉煤灰中铝资源的高效回收已成为

固废资源化利用领域的研究热点。现有粉煤灰提铝工艺主要包括碱性焙烧活化—浸出法、直接酸浸法及硫酸盐焙烧—浸出法等^[19-20]。碱性添加剂焙烧可破坏粉煤灰中稳定的含铝硅酸盐结构, 增强含铝相的反应活性。采用碳酸钠和氢氧化钠焙烧时, 提铝率分别可达 93.2% 和 92.0%^[21]。在适宜条件下, 采用盐酸和硫酸直接浸出粉煤灰时, 铝浸出率分别可达 85.8% 和 86.0%^[22]。但直接酸浸法受原料矿物结构稳定性影响较大^[23]; 碱性焙烧体系则普遍存在反应温度高、能耗大及含钠残渣后续处理复杂等问题^[24]。相比之下, 硫酸盐焙烧—浸出法因反应条件相对温和、设备腐蚀较轻、环境污染较小等优势, 具有较好的应用前景^[25]。其中, 硫酸铵因具有良好的活化作用, 已成为粉煤灰提铝研究中的重要焙烧添加剂^[26]。已有研究虽证实了硫酸铵焙烧—浸出工艺的可行性, 但多停留于单因素优化层面, 尚缺乏对焙烧温度、焙烧时间与硫酸铵添加量等关键参数交互作用的系统分析。

因此, 在单因素试验研究基础上, 采用响应曲

收稿日期: 2026-02-03; **修订日期:** 2026-04-07

基金项目: 陕西省创新能力支撑计划项目(2023-CX-TD-53); 甘肃省联合科研基金重点项目(24JRRB005); 甘肃省联合科研基金重大项目(25JRRB003); 渭南市秦创原“科学家+工程师”队伍建设项目(Z20250053)。

第一作者简介: 邢相栋(1983—), 男, 博士, 教授, 主要研究方向冶金固废资源化利用。

通信作者简介: 郭鹏辉(1995—), 男, 博士, 副教授, 主要研究方向为冶金环保与资源综合利用。E-mail: guoph@xauat.edu.cn。

面法进行试验设计,探究了焙烧温度、焙烧时间及硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比对粉煤灰提铝率的交互影响规律,并对提铝工艺参数进行预测与优化。同时,利用 XRD 和 SEM 对焙烧产物的物相结构及表面微观形貌进行分析,以阐明粉煤灰提铝的作用机制,旨在为粉煤灰提铝工艺的实际应用提供理论依据。

1 试验部分

1.1 试验原料

试验用粉煤灰由新疆某企业提供,主要化学成分见表 1。可知,粉煤灰的主要成分为 SiO_2 、 Al_2O_3 及 CaO ,三者质量分数之和为 83.41%;其次为 Fe_2O_3 、 Na_2O 、 SO_3 和 MgO 等。由于粉煤灰中 CaO 质量分数超过 10%,说明该样品属于低铝高钙粉煤灰^[27]。新疆高钠煤中钠质量分数通常为 0.2%~0.4%,其燃烧后 Na_2O 质量分数通常为 3%~12%^[28]。而试验用粉煤灰中 Na_2O 质量分数为 3.04%,说明其符合新疆高钠煤燃烧粉煤灰的组成特征。结合化学组成及 XRD、SEM 表征结果可推测,试验用粉煤灰中的 Na 主要以无定形分散状态赋存。

表 1 粉煤灰原料主要化学组成

Table 1 Main chemical composition of fly ash raw material							%
SiO_2	Al_2O_3	CaO	Fe_2O_3	Na_2O	MgO	SO_3	其他
44.71	22.82	15.88	6.64	3.04	1.41	1.83	3.67

图 1 为粉煤灰原料的 XRD 图谱,可知,其主要物相为 SiO_2 及莫来石。图 2 为粉煤灰原料的 SEM 分析结果。可知,原料由不同粒度的球体组成,从局部放大图可以看出,球体表面存在析晶现象,结合 XRD 分析结果推断该析出晶体为莫来石及石英。

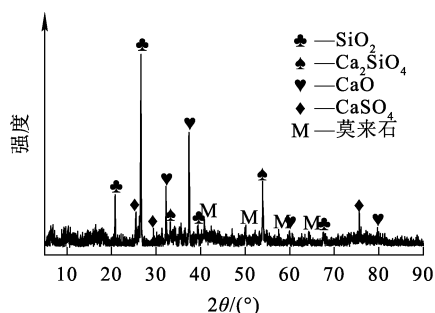
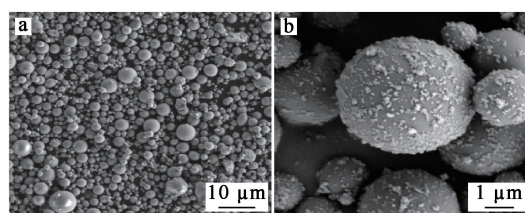


图 1 粉煤灰原料的 XRD 图谱

Fig. 1 XRD pattern of fly ash raw material



a—粉煤灰原料微观形貌;b—粉煤灰原料局部微观形貌

图 2 粉煤灰原料的 SEM 分析结果

Fig. 2 SEM analysis results of fly ash raw material

1.2 试验方法

图 3 为粉煤灰焙烧活化反应装置,由热电偶、控温仪、刚玉管等组成。焙烧活化试验开始前,将粉煤灰样品与硫酸铵放入恒温干燥箱中,在 105 °C 保温条件下干燥,之后将粉煤灰与硫酸铵按一定质量比加入到研钵中混合均匀并进行压块处理。将压块后样品装入刚玉坩埚中,再将刚玉坩埚置于高温管式炉中,在空气气氛下以 10 °C/min 速度升温,待达到设定温度后,根据设定时长保温,之后取出,冷却。再将冷却后焙烧产物与硫酸氢铵溶液按液固体积质量比 20 mL/1 g 加入到烧杯中混匀,之后将烧杯放入数显恒温水浴锅中进行浸出反应。反应结束后,用真空抽滤机对溶液进行抽滤,得提铝渣。采用 EDTA 滴定法测定滤液中铝含量,并按照式(1)、(2)计算提铝率。通过 XRD、SEM 对产物进行表征分析。



图 3 粉煤灰焙烧活化反应装置

Fig. 3 Reaction device of fly ash roasting activation

$$c(\text{Al}^{3+}) = \frac{c(\text{Pb}) \cdot V(\text{Pb})}{V_2} \quad (1)$$

$$\eta = \frac{c(\text{Al}^{3+}) \cdot A_r(\text{Al}) \cdot V_1}{m(\text{Al})} \quad (2)$$

式中: $c(\text{Al}^{3+})$ —浸出液中铝离子浓度, mol/L; $c(\text{Pb})$ —铅盐标准液浓度, mol/L; $V(\text{Pb})$ —滴定消耗的铅盐标准液体积, mL; V_2 —滴定时量取的

浸出液体积, mL; η —提铝率, %; V_1 —浸出液总体积, mL; $A_r(\text{Al})$ —Al 相对原子质量, 27; $m(\text{Al})$ —原料中 Al 质量, g。

2 试验结果与讨论

2.1 响应曲面设计方案及结果

2.1.1 模型的建立

采用响应曲面 Box-Behnken Design 试验设计对粉煤灰焙烧活化试验中的工艺参数进行优化,与单因素试验结果相结合,选取焙烧温度(X_1)、焙烧时间(X_2)及硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比(X_3)为影响因素(自变量),粉煤灰中 Al 浸出率为响应值(y),进行 3 因素 3 水平中心复合设计(BBD)。通过二阶数学回归方程构建粉煤灰中 Al 浸出率与影响因素之间的函数模型,研究各变量对粉煤灰中 Al 浸出率的影响规律。数学模型如式(3)所示:

$$y = \beta_0 + \sum_{i=1}^m (\beta_i X_i + \beta_{ii} X_i^2) + \sum_{i<j}^m \beta_{ij} X_i X_j \quad (3)$$

式中: β_i — X_i 的线性系数; β_{ii} — X_i 的二次项系数; β_{ij} — X_i 与 X_j 的交互项系数; m —因子数。

利用最小二乘法拟合,响应值 y 与自变量之间的关系如式(4)所示:

$$y = \beta_0 + \sum_{i=1}^3 (\beta_i X_i + \beta_{ii} X_i^2) + \sum_{i<j}^3 \beta_{ij} X_i X_j \quad (4)$$

2.1.2 方案的设计

根据 Box-Behnken Design 的中心组合试验设计原理,焙烧温度、焙烧时间、硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比 3 个主要因素分别用 X_1 、 X_2 、 X_3 来表示,各因素的低、中、高试验水平分别通过-1、0、+1 进行编码。试验因素与水平设计结果见表 2。

表 2 响应曲面试验的因素水平及其编码值对照
Table 2 comparison of factor levels and coding values of response surface experiments

因素	代码	编码水平		
		-1	0	1
焙烧温度	X_1	400	425	450
焙烧时间	X_2	45	60	75
硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比	X_3	6	7	8

2.1.3 回归方程和方差分析

采用 Design-Expert 11 软件,按表 1 中试验方案进行设计,产生 17 组试验点,中心组合设计及结果见表 3,粉煤灰中 Al 的浸出率响应值在 81.69%~93.82%区间范围内。

表 3 中心组合设计及结果
Table 3 Center combination design and results

编号	焙烧温度 /°C	焙烧时间 /min	硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比	浸出率/%
1	425	60	7	93.30
2	425	45	8	87.91
3	400	60	8	81.69
4	450	60	8	93.06
5	400	60	6	82.31
6	450	75	7	93.82
7	425	60	7	93.30
8	400	45	7	75.61
9	425	75	8	90.86
10	425	45	6	86.46
11	400	75	7	82.53
12	450	60	6	92.07
13	425	60	7	93.30
14	425	60	7	93.30
15	425	75	6	90.57
16	425	60	7	93.30
17	450	45	7	88.77

利用 BBD 中心组合设计结果,构建影响因素与响应值之间的函数关系,通过多项回归拟合得到方程,如式(5)所示:

$$y = 81.72 + 30.16X_1 + 6.27X_2 + 4.22X_3 - 1.87X_1X_2 + 1.61X_1X_3 - 1.16X_2X_3 - 19.57X_1^2 - 12.90X_2^2 - 4.50X_3^2 \quad (5)$$

可知:焙烧温度、焙烧时间、硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比对粉煤灰中 Al 浸出率均为正向影响,即粉煤灰中 Al 浸出率随焙烧温度、焙烧时间、硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比的升高而升高;交互项 X_1X_2 和 X_2X_3 的系数为负值,表明对应因素共同增加时对响应值的协同促进作用减弱,呈现一定制约关系;而 X_1X_3 为正值,说明二者共同增加时对响应值提升具有一定促进作用;二次项的系数分别均为负值,说明各因

素对响应值的影响表现出明显的二次曲面特征,随着因素水平继续提高,响应值在达到一定峰值后将呈下降趋势,表明体系存在最优工艺区间。

通过对试验设计模型进行分析,判断其是否具备有效性,结果见表 4。可知,回归方程中的 R^2 为 0.990,接近于 1,说明试验设计模型预测值与试验值接近,具备较高的相关性及有效性。

表 4 优化焙烧条件模型可信度分析
Table 4 Reliability analysis of model for optimizing roasting conditions

标准差	均值	CV/%	R^2	R_{adj}^2	R_{pred}^2	信噪比
0.813	88.950	0.914	0.990	0.978	0.844	27.278

通过对粉煤灰中 Al 浸出率模型影响因素显著性进行分析,得到粉煤灰中 Al 浸出率二阶模型的方差分析结果,见表 5。

表 5 二阶模型的方差分析结果
Table 5 Analysis results of variance of second-order model

方差分析	平方和	自由度	均方值	F 值	P 值
模型	469.89	9	52.21	79.00	<0.000 1
X_1	171.63	1	171.63	259.71	<0.000 1
X_2	15.74	1	15.74	23.81	0.001 8
X_3	3.36	1	3.36	5.09	0.058 7
$X_1 X_2$	0.8742	1	0.874 2	1.32	0.287 8
$X_1 X_3$	0.6480	1	0.648 0	2.40	0.165 1
$X_2 X_3$	0.3364	1	0.336 4	0.509 0	0.498 6
X_1^2	100.79	1	100.79	152.51	<0.000 1
X_2^2	43.79	1	43.79	66.27	<0.000 1
X_3^2	5.33	1	5.33	8.06	0.025 1
残差	4.63	7	0.660 8		
失拟项	4.63	3	1.54		
纯误差	0	4	0		
总校正和	474.51	16			

P 值代表该模型的显著程度^[29-30],当模型的影响非常显著时, $P<0.000 1$;当模型的影响显著时, $P<0.05$ 。优化粉煤灰焙烧活化条件模型的 F 值为 79.00, $P<0.000 1$,说明粉煤灰焙烧活化条件模型与实际具有较好拟合性。根据表 5 中 P 值判断各因素对于粉煤灰中 Al 浸出率的影响显著性:单一影响因素 X_1 对于模型的影响非常显

著, X_2 对于模型的影响显著, X_3 对于模型的影响未达显著水平;因素间的交互项 $X_1 X_2$ 、 $X_1 X_3$ 、 $X_2 X_3$ 对于模型的影响均不显著;在复合影响中, X_1^2 、 X_2^2 对于模型的影响非常显著、 X_3^2 对于模型的影响显著。通过对比 F 值,判断各因素对粉煤灰中 Al 浸出率的影响顺序为 $X_1 > X_2 > X_3 > X_1 X_3 > X_1 X_2 > X_2 X_3$ 。

图 4 为粉煤灰中 Al 浸出率实际值与预测值的线性拟合曲线。可知,其中实际值的点在拟合直线两旁分布并且上下波动,且 R^2 为 0.990,可见实际值与预测值具有极高的线性相关度,说明该试验模型可精准预测试验结果,适用于优化粉煤灰焙烧活化过程中的自变量。

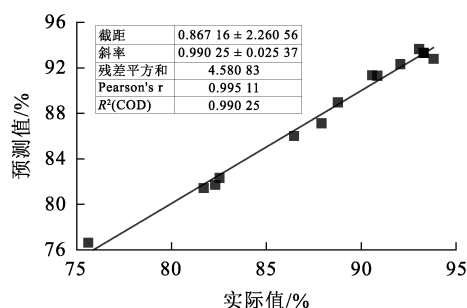


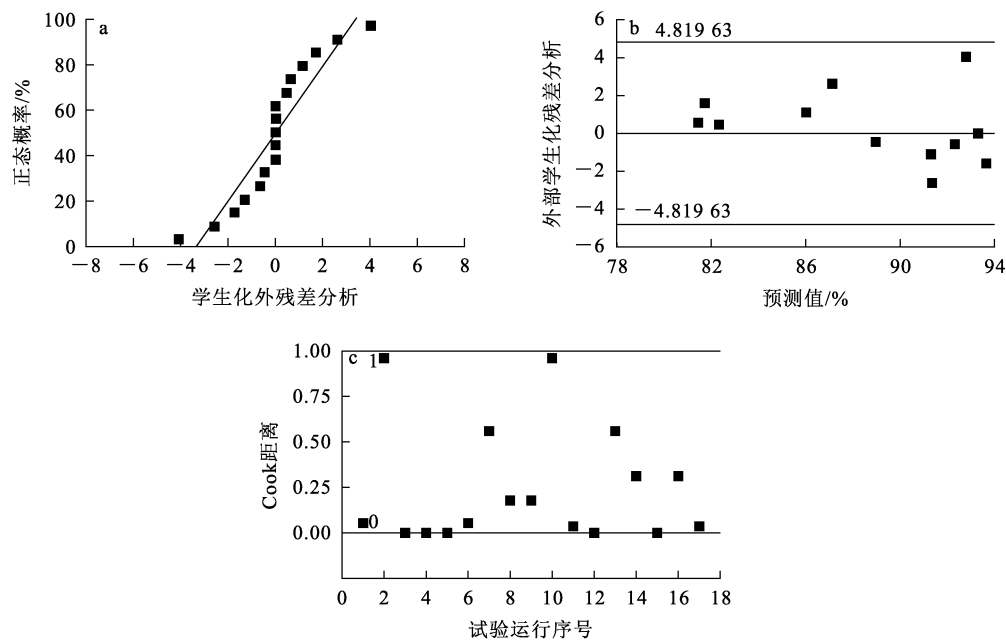
图 4 粉煤灰中 Al 浸出率实际值与预测值对比
Fig. 4 Comparison between actual and predicted values of Al leaching rates from fly ash

为进一步验证所建立模型的可靠性与统计合理性,对模型进行残差正态性、残差随机性及异常影响点诊断,结果如图 5 所示。可知:外部学生化残差点总体分布在参考直线附近,模型残差符合正态分布假设,回归分析结果具有较好的统计学基础;各残差点主要分布在零值附近,且均位于警戒线范围内,未出现明显的规律性偏离,残差分布较为随机,说明模型不存在显著的系统性误差;各试验点的 Cook 距离均小于 1,单个试验点对模型整体回归结果的影响较小。综上,说明所建立模型拟合效果较好,具有较高的稳定性和可信度,可用于响应值的分析与预测。

2.1.4 因素间交互影响作用分析

利用 Design-expert 11.0 软件分析并绘制各因素对 Al 浸出率交互影响的等高线及三维曲面。各影响因素之间交互作用的程度通过等高线中的轮廓形状得出,当 2 个影响因素间交互作用程度明显时,等高线轮廓则呈椭圆状;交互作用不明显时,则等高线轮廓呈圆形。三维响应曲面中,当曲面的曲线越

平缓,则影响因子对反应的影响越小;反之,曲面曲线越陡,则影响因子对反应的影响越大。



a—学生化残差正态概率;b—外部学生化残差与预测值关系;c—Cook 距离

图 5 残差正态性、残差随机性及异常影响点诊断结果

Fig. 5 Diagnostic results for residual normality, residual randomness and outlier/influential points

图 6 为焙烧温度和焙烧时间对 Al 浸出率交互影响的等高线和响应曲面。Al 浸出率与焙烧温度、焙烧时间的等高线轮廓呈椭圆形,说明这 2 个因素之间存在较显著的交互作用。其中,焙烧温度的影响占主导地位,这主要是因为温度同时控制了硫酸铵的分解行为、粉煤灰中含铝相的活化程度,以及可浸出含铝硫酸盐的生成过程。低温条件下,粉煤灰中玻璃相和莫来石等含铝物质

结构较稳定,硫酸铵对其活化作用有限,Al 难以充分转化为可浸出相;随焙烧温度升高,硫酸铵分解加快,反应体系中组分扩散和固相反应增强,促进稳定含铝结构破坏并向可浸出含铝相转化,从而明显提高 Al 浸出率。当焙烧温度在 375~425 °C 范围内升高时,Al 浸出率升高尤为明显;当焙烧温度在 425~450 °C 之间、焙烧时间在 60~90 min 之间时,Al 浸出率较高,最高可达 95.40%。

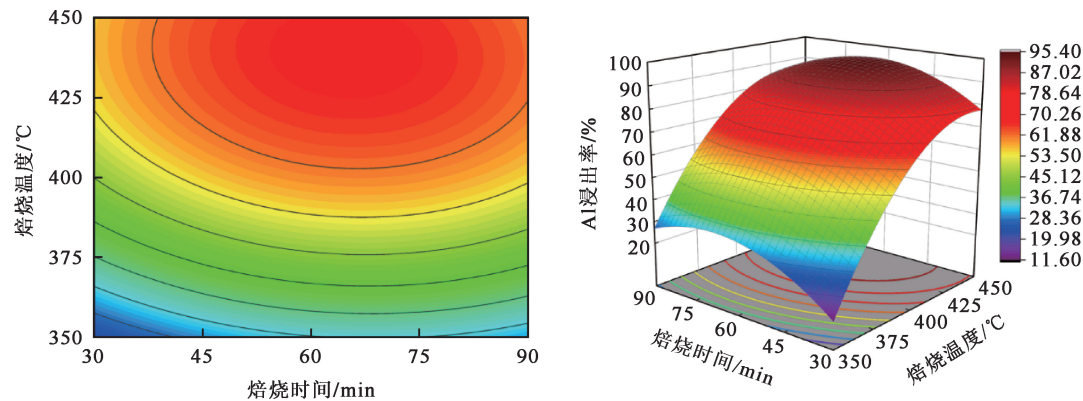


图 6 焙烧温度和焙烧时间对 Al 浸出率交互影响的等高线和响应曲面

Fig. 6 Contour plot and response surface plot of interaction effects of roasting temperature and roasting time on Al leaching rate

图 7 为硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比和焙烧时间对 Al 浸出率交互影响的等高线和响应曲面。Al 浸出率与硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比、焙烧时间的等高线轮廓呈椭圆状,说明这 2 个因素对 Al 浸出率的影响程度明显。焙烧保温时间大于 60 min 时,Al 浸出率变化趋于平稳,在 30~60 min 焙烧时间内粉煤灰中含铝物质已经与硫酸铵充分反应;当焙烧时间超过 75 min 时,Al 浸出率呈小幅下降趋势。可能的原因是:一方面,焙

烧较长时间后,硫酸铵及中间硫酸盐相可能发生进一步分解或挥发损失,导致有效反应物含量下降;另一方面,颗粒在持续受热条件下可能发生一定程度烧结致密化,削弱了产物孔隙结构和后续浸出过程中的传质条件,从而导致 Al 浸出率略有降低。硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比增大和焙烧时间延长可使 Al 浸出率升高,当硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比在 6~8 之间、焙烧时间在 60~90 min 之间时,Al 浸出率较高,最高可达 93.80%。

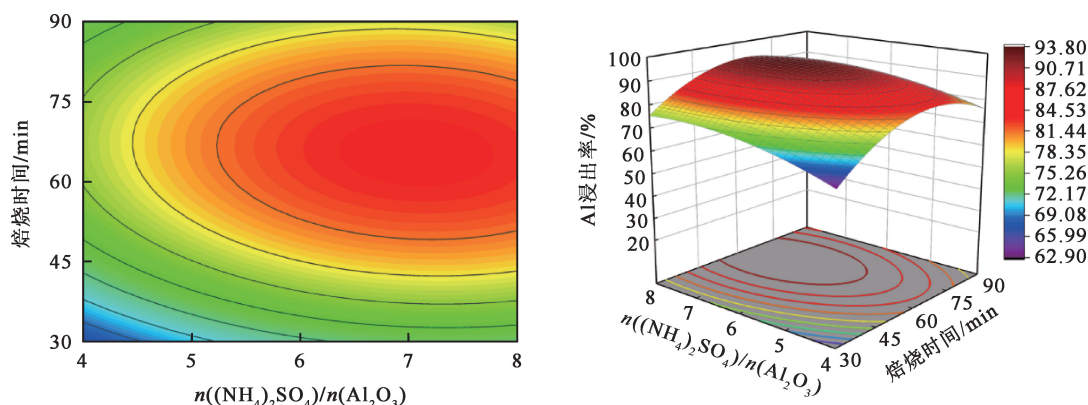


图 7 硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比和焙烧时间对 Al 浸出率交互影响的等高线和响应曲面

Fig. 7 Contour plot and response surface plot of interaction effects of $n((\text{NH}_4)_2\text{SO}_4)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)$ and roasting time on Al leaching rate

图 8 为焙烧温度和硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比对 Al 浸出率交互影响的等高线和响应曲面。Al 浸出率与焙烧温度、硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比的等高线轮廓呈椭圆状,说明这 2 个因素对 Al 浸出率的影响显著。硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比在 4~6 范围内增大时,Al 浸出率升幅较大,粉煤灰中除了含铝物质会与硫酸铵反应

外,其中的 CaO 、 MgO 及 Fe_2O_3 等化合物也会与硫酸铵反应。因此,当加入适量硫酸铵时,不能保证其与粉煤灰中含铝物质充分反应;当加入过量硫酸铵后,不仅利于反应充分进行,还能防止硫酸铵在高温条件下受热挥发,从而促进 Al 浸出率提升。当焙烧温度在 425~450 °C 之间、硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比在 6~8 之间时,Al 浸出率较高,最高可达 95.20%。

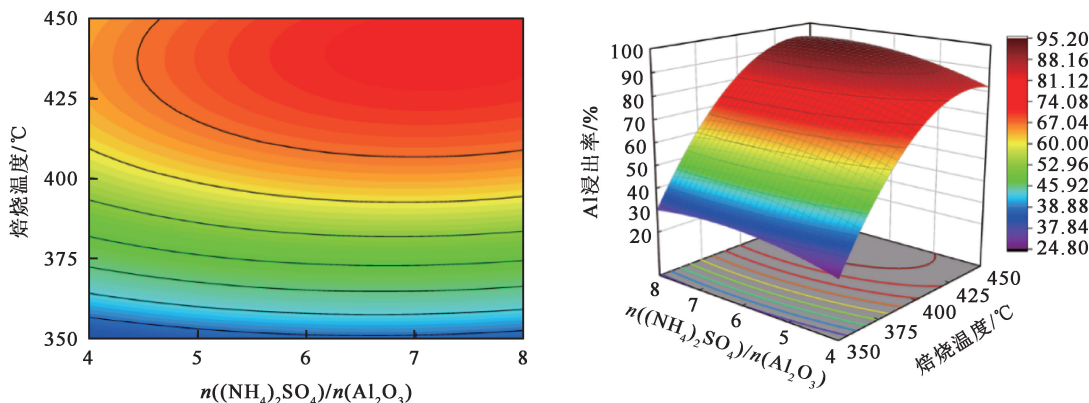


图 8 焙烧温度和硫酸铵与粉煤灰中 Al_2O_3 物质的量比对 Al 浸出率交互影响的等高线和响应曲面

Fig. 8 Contour plot and response surface plot of interaction effects of roasting temperature and $n((\text{NH}_4)_2\text{SO}_4)/n(\text{Al}_2\text{O}_3)$ on Al leaching rate

2.1.5 模型验证及优化条件

利用 Design-expert 11.0 软件对试验设计模型参数进行优化后,得到最佳试验条件为:焙烧温度 438 ℃,焙烧时间 63.8 min,硫酸铵与粉煤灰中 Al₂O₃ 物质的量比为 7.31。在该条件下,Al 浸出率预测值为 95.32%。

为验证试验模型预测的准确度,在上述最优条件下进行 3 组平行试验,结果见表 6。可知,3 组试验所得 Al 浸出率实际值分别为 95.46%、94.83% 和 94.25%,平均值为 94.85%,其与预测值的相对误差为 0.47%。实际值与模型的预测值之间偏差不大,说明该试验模型的精确性及试验设计方案具有可行性。

表 6 最优条件下的试验结果
Table 6 Experimental results under optimal conditions

编号	Al 浸出率/%
1	95.46
2	94.83
3	94.25
平均	94.85

2.2 粉煤灰焙烧产物的物相分析

图 9 为粉煤灰焙烧产物的 XRD 图谱。可知,焙烧产物中主要晶相为 NH₄Al(SO₄)₂。粉煤灰焙烧产物的 SEM-EDS 分析结果如图 10 所示。可以看出:焙烧产物中有球状物和块状团聚物;在样点 1 处,Al、Si 元素含量较高,并出现明显的 S、O 及一定量 N 元素,球状物为部分反应的粉煤灰微珠;在样点 2 处,Ca、S 和 O 元素含量较高,而 Al、Si 及 N 等元素含量较低,结合焙烧产物 XRD 分析结果判断,这些块状团聚物为硫酸钙;粉煤灰微珠表面出现腐蚀现象,这是由于在焙烧过程中硫酸铵与粉煤灰之间发生了化学反应,粉煤灰焙烧产物表面所出现的孔隙即为与硫酸铵与粉煤灰中个别元素反应后所留下的空位。

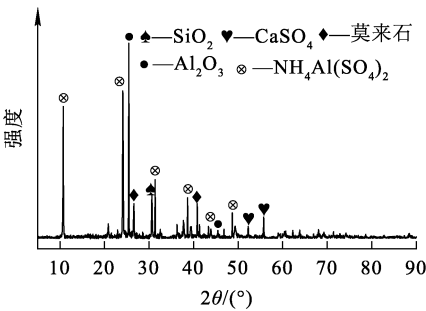
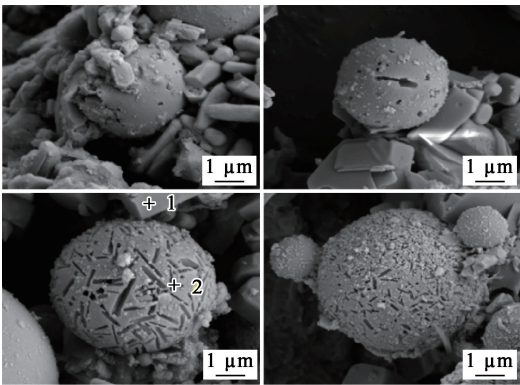


图 9 粉煤灰焙烧产物的 XRD 图谱
Fig. 9 XRD pattern of fly ash roasting product



样点	质量百分比/%							
	Al	Si	Na	S	O	N	Fe	Ca
1	1.05	0.21	0.19	22.55	46.01	0.75	0.1	29.14
2	7.89	12.55	0.76	21.51	41.33	4.1	2.01	9.85

图 10 粉煤灰焙烧产物的 SEM-EDS 分析结果
Fig. 10 SEM-EDS analysis results of fly ash roasting products

3 结论

为明确硫酸铵活化焙烧条件对粉煤灰提铝率的影响规律,采用响应曲面法研究了焙烧温度、焙烧时间及硫酸铵与粉煤灰中 Al₂O₃ 物质的量比对 Al 浸出率的影响,并结合 XRD 和 SEM 对焙烧产物的物相组成与微观形貌进行了分析,结论如下:

1)通过响应曲面设计方法,采用中心组合设计,得到焙烧温度(X₁)、焙烧时间(X₂)、硫酸铵与粉煤灰中 Al₂O₃ 物质的量比(X₃)3 个因素,以及交互因素之间对活化焙烧后提铝率的影响:X₁ 对模型的影响非常显著, X₂ 对模型的影响显著, X₃ 对模型的影响未达显著水平; X₁X₂、X₁X₃、X₂X₃ 对模型的影响不显著; X₁²、X₂² 对于模型的影响非常显著,X₃² 对于模型的影响显著。通过对比单因素中的 F 值可以判断出其对提取 Al 的影响顺序为:X₁>X₂>X₃。

2)利用 Design-expert 11.0 软件对试验设计模型参数进行优化后,得到从粉煤灰中提取 Al 的最优条件为:焙烧温度为 438 ℃,焙烧时间为 63.8 min,硫酸铵与粉煤灰中 Al₂O₃ 物质的量比为 7.31,在该工艺条件下,Al 浸出率预测值为 95.30%,与实际值(94.85%)相差不大,说明该试验模型具有一定的精确性,试验设计方案可行。

3)根据 XRD 检测可知,粉煤灰硫酸铵活化焙烧后的主要产物为 NH₄Al(SO₄)₂;通过 SEM 可观察到粉煤灰焙烧产物表面出现腐蚀现象,这

是硫酸铵与粉煤灰中个别元素反应后所留下的空位。

参考文献:

- [1] 赵俊杰,赵爱春,贺欣,等.基于焙烧活化—浸出技术的粉煤灰中有价元素提取研究进展[J].湿法冶金,2026,45(2):152-160.
Zhao Junjie,Zhao Aichun,He Xin,et al. Research progress on extraction of valuable elements from fly ash based on roasting activation—leaching technology[J]. Hydrometallurgy of China,2026,45(2):152-160.
- [2] 王凯.从粉煤灰活化熟料中脱钙及提取氧化铝工艺研究[J].湿法冶金,2025,44(5):653-659.
Wang Kai. Decalcification and extraction of alumina from activated fly ash clinker [J]. Hydrometallurgy of China, 2025,44(5):653-659.
- [3] 李琴,杨岳斌,刘君,等.我国粉煤灰利用现状及展望[J].能源研究与管理,2022(1):29-34.
Li Qin, Yang Yuebin, Liu Jun, et al. Present status and prospect of fly ash utilization in China[J]. Energy Research and Management,2022(1):29-34.
- [4] 张志明,桂联政,廖达琛,等.燃煤电厂粉煤灰高值化利用研究进展[J].能源环境保护,2023,37(4):1-11.
Zhang Zhiming, Gui Lianzheng, Liao Dachen, et al. Advances in high-value utilization of fly ash from coal-fired power plants[J]. Energy Environmental Protection, 2023, 37(4):1-11.
- [5] Sahu S, Teja P R R, Sarkar P, et al. Variability in the compressive strength of fly ash bricks[J]. Journal of Materials in Civil Engineering,2019,31(2):06018024.
- [6] Luo Yang, Wu Yinghong, Ma Shuhua, et al. Utilization of coal fly ash in China: a mini-review on challenges and future directions [J]. Environmental Science and Pollution Research,2021,28(15):18727-18740.
- [7] Kunia M. A review of coal fly ash utilization: environmental, energy, and material assessment[J]. Energies, 2025, 18(1):18010052.
- [8] 亢玉红,慕苗,李健,等.粉煤灰制备高纯度 NaX 型沸石及去除废水中 Pb^{2+} 的研究[J].离子交换与吸附,2017,33(5):455-462.
Kang yuhong, Mu Miao, Li Jian, et al. Removal of Pb^{2+} from waste water with high purity nax zeolite synthesized by coal fly ash[J]. Ion Exchange and Adsorption, 2017, 33(5): 455-462.
- [9] Gollakota A R K, Volli V, Shu C M. Progressive utilisation prospects of coal fly ash: a review[J]. Science of The Total Environment,2019,672(1):951-989.
- [10] Ji Long, Yu Hai, Zhang Ruijie, et al. Effects of fly ash properties on carbonation efficiency in CO_2 mineralisation [J]. Fuel Processing Technology, 2019, 188:79-88.
- [11] Yu Bing, Yu Hai, Li Kangkang, et al. Integration of a diamine solvent based absorption and coal fly ash based mineralisation for CO_2 sequestration[J]. Fuel processing technology, 2019, 192:220-226.
- [12] Liu Wei, Su Sheng, Xu Kai, et al. CO_2 sequestration by direct gas-solid carbonation of fly ash with steam addition [J]. Journal of cleaner production, 2018, 178:98-107.
- [13] 马卓慧,廖洪强,程芳琴,等.粉煤灰提铝硅钙渣矿化固定 CO_2 [J].硅酸盐通报,2020,39(4):1224-1229.
Ma Zhuohui, Liao Hongqiang, Cheng Fangqin, et al. CO_2 sequestration by mineralization of silica calcium slag generated in process of extracting alumina from fly ash[J]. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2020, 39(4):1224-1229.
- [14] 任国宏,廖洪强,高宏宇,等.粉煤灰-电石渣制浆矿化的固碳增强特性[J].材料导报,2019,33(21):3556-3560.
Ren Guohong, Liao Hongqiang, Gao Hongyu, et al. Carbon dioxide-fixing and compression strength enhancing characteristics of mineralized immobilization of fly ash-calcium carbide slag slurry[J]. Materials Reports, 2019, 33(21): 3556-3560.
- [15] 李超,王丽萍,郭昭华,等.粉煤灰酸溶渣合成 13X 分子筛及其对铜离子吸附性能[J].无机盐工业,2018,50(9):63-66.
Li Chao, Wang Liping, Guo Zhaozhua, et al. Synthesis of 13X zeolite by fly ash acid residue and its adsorption performance to copper ions[J]. Inorganic Chemicals Industry, 2018, 50(9):63-66.
- [16] 竹涛,韩一伟,牛文凤,等.粉煤灰制备 13X 分子筛及 VOCs 吸附性能研究[J].煤炭科学技术,2021,49(7):216-222.
Zhu Tao, Han Yiwei, Niu Wenfeng, et al. Preparation of 13X zeolite by coal fly ash for adsorption of volatile organic compounds[J]. Coal Science and Technology, 2021, 49(7):216-222.
- [17] 陶春光,田冬,陈永红,等.粉煤灰尾渣碱融水热合成高性能 13X 分子筛[J].硅酸盐通报,2019,38(3):622-626.
Tao Chunguang, Tian Dong, Chen Yonghong, et al. Fly ash tailings alkali melting hydrothermal synthesis high performance 13X molecular sieves[J]. Bulletin of the Chinese Ceramic Society, 2019, 38(3):622-626.
- [18] 贾敏,杨磊,王永旺.体型化 NaA 分子筛的制备研究[J].无机盐工业,2021,53(10):98-103.
Jia Min, Yang Lei, Wang Yongwang. Study on preparation of body-shaped NaA Zeolite [J]. Inorganic Chemicals Industry, 2021, 53(10):98-103.
- [19] 罗振勇,陈沐阳,公彦兵,等.粉煤灰中铝资源回收技术研究进展[J].有色金属(冶炼部分),2024(5):53-61.
Luo Zhenyong, Chen Muyang, Gong Yanbing, et al. Research progress of aluminum resource recovery technology in coal fly ash [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 2024(5):53-61.

- [20] 赵梓,赵爱春,刘宸嘉,等. 硫酸铵焙烧活化—硫酸浸出粉煤灰提铝熟料的动力学研究[J]. 湿法冶金,2024,43(2):129-133.
- Zhao Zi,Zhao Aichun,Liu Chenjia,et al. Kinetics of aluminum extraction clinker from fly ash by ammonium sulfate roasting activation—sulfuric acid leaching[J]. Hydrometallurgy of China,2024,43(2):129-133.
- [21] Liu Chenjia,Zhao Aichun,Zhang Ting'an,et al. Kinetics of aluminum extraction from roasting activated fly ash by sulfuric acid leaching[J]. MRS Communication,2023,12(3):47-54.
- [22] 李健,高建明,郭彦霞,等. 循环流化床粉煤灰硫酸铵和硫酸协同酸浸提铝研究[J]. 煤炭转化,2022,45(3):52-56.
- Li Jian,Gao Jianming,Guo Yanxia,et al. Study on synergistic acid extraction of aluminum from circulating fluidized bed fly ash by sulfuric acid and ammonium sulfate[J]. Coal Conversion,2022,45(3):52-56.
- [23] Guo Yanxia,Robl T L,Allen D T. Role of additives in improved thermal activation of coal fly ash for alumina extraction[J]. Fuel,2013,103:1149-1155.
- [24] Tenza N P,Mulaba-Bafubiani A F,Mahlangu T O,et al. Coal fly ash industrial waste-derived products:a review on the extraction of aluminum and silicon for nanoparticle synthesis [J]. Environmental Science and Pollution Research,2026,33:736-765.
- [25] Li Jinhui,Chen Zhifeng,Shen Bangpo,et al. The extraction of valuable metals and phase transformation mechanism from coal fly ash by ammonium sulfate roasting—water leaching process[J]. Journal of Cleaner Production,2017(3):1148-1155.
- [26] Li Xiaoying,Hu Bo,Liu Nengsheng,et al. Extraction of alumina from high-alumina fly ash by ammonium sulfate: roasting kinetics and mechanism [J]. RSC Advances,2022,12(51):33229-33238.
- [27] 白新春,贾建勋. 火力发电厂粉煤灰的工程分类[J]. 电力勘测设计,2018(10):1-3.
- Bai Xinchun,Jia Jianxun. Engineering classification for fly-ash of fossil fuel power plant[J]. Electric Power Survey & Design,2018(10):1-3.
- [28] 张延波,车可心,何鑫,等. 新疆准东和哈密煤中钠的赋存特征及富集机理差异性研究[J]. 煤炭科学技术,2025,53(增刊2):274-287.
- Zhang Yanbo,Che Kexin,He Xin,et al. Differences in occurrence and enrichment causes of sodium in coal from Zhundong and Hami of Xinjiang [J]. Coal Science and Technology,2025,53(S2):274-287.
- [29] Danh L T,Mammucari R,Truong P,et al. Response surface method applied to supercritical carbon dioxide extraction of *Vetiveria zizanioides* essential oil[J]. Chemical engineering Journal,2009,155(3):617-626.
- [30] 廖亚龙,周娟,黄斐荣,等. 响应曲面法优化复杂硫化铜矿选择性浸出工艺[J]. 中国有色金属学报,2016,26(1):164-172.
- Liao Yalong,Zhou Juan,Huang Feirong,et al. Optimization of selective leaching technology of complex sulfide copper ore by response surface methodology [J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals,2016,26(1):164-172.

Optimization of Fly Ash Dealumination Process by Response Surface Method

XING Xiangdong,ZHANG Mingxiao,WANG Yuxing,GUO Penghui

(School of Metallurgical Engineering,Xi'an University of Architecture and Technology,
Xi'an 710055,China)

Abstract: Extraction of aluminum from fly ash by ammonium sulfate roasting—leaching process was studied. The effects of roasting temperature, roasting time and the molar ratio of ammonium sulfate to Al_2O_3 in fly ash on the extraction of aluminum from fly ash were investigated. The interaction of various factors on the extraction rate of aluminum from fly ash was discussed by response surface method, and the optimum roasting parameters were determined. The phase and microstructure of fly ash raw materials and calcined products were characterized by X-ray diffractometer (XRD) and scanning electron microscope (SEM). The results show that the main product of fly ash activated by ammonium sulfate is $\text{NH}_4\text{Al}(\text{SO}_4)_2$, and the surface of the roasted product is corroded. The optimum process parameters of activation roasting of fly ash are as follows: roasting temperature is $438\text{ }^\circ\text{C}$, roasting time is 63.8 min, molar ratio of ammonium sulfate to Al_2O_3 in fly ash is 7.31. Under the optimum process conditions, the leaching rate of Al is 95.30%, and the leaching effect is better.

Key words: fly ash; activation roasting; response surface method; aluminum; leaching; optimization