

二氧化硅对二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料性能的影响

张 勇, 宗晨宇, 王钰婷, 刘欣雨

(江西农业大学 国土资源与环境学院, 江西 南昌 330045)

[摘 要] 国内二次铝灰产量大,且总铝含量不低,堆放过程中受到雨水淋溶,导致自然水体被污染和土壤盐碱化等危害。在前期研究的基础上,以再生铝行业产生的二次铝灰为主要原料,采用固相烧结法开展二氧化硅含量对二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料性能影响的研究,并采用XRD、SEM及红外谱图等手段分析烧结产物。研究表明,二次铝灰和氧化镁质量分数比为1:0.2时,在1400℃条件下烧结,保温3h,二次铝灰可以烧结制备镁铝尖晶石材料;二氧化硅对二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料性能有影响,添加5%二氧化硅时,所得镁铝尖晶石材料性能最佳,体积密度为2.03 g/cm³,线变化率为0.42,抗压强度为91.1 MPa;含5%~20%二氧化硅的原料样品在1400℃烧结,烧结材料主要物相为MgAl₂O₄,随二氧化硅含量增加,MgAl₂O₄衍射峰强度减弱,烧结体中出现较厚纤维状组织,材料致密性提高,适量二氧化硅的存在对二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料起到促进作用;在烧结过程中,产物的晶胞常数和晶胞体积都经历先变大后减小的过程,也是离子溶进和溶出的过程。该研究中,二次铝灰能得到经济、高效的治理,既减少环境污染,又解决含铝资源紧张问题,对实现二次铝灰综合利用具有一定意义。

[关键词] 二次铝灰; 镁铝尖晶石; 二氧化硅; 固体烧结法; 体积密度; 线变化率; 抗压强度

[中图分类号] TF09; X758 [文献标志码] A [文章编号] 1672-6103(2023)03-0057-09

DOI:10.19612/j.cnki.cn11-5066/tf.2023.03.009

0 引言

2020年,中国原铝生产量高达3708万t。据估算,目前全国二次铝灰产量约400万t^[1]。二次铝灰的总铝含量为10%~80%,因来源不同、回收工艺不同等而成分各异。一般而言,二次铝灰主要成分为氧化铝、氮化铝、碳化铝、少量的金属铝、镁铝尖晶石和一定量的氟化物、氰化物、氯化钠、氯化钾和二氧化硅,其中氮化铝、碳化铝、氟化物和氰化物等为有毒有害物质^[2]。二次铝灰堆放过程中受到雨水淋溶,会导致有毒有害物质溶出。其中,氟化物和氰

化物遇水溶出致自然水体被污染^[3-4];氮化铝、碳化铝与雨水发生化学反应释放氨气和甲烷;盐类受到雨水淋溶溶解,容易造成土壤盐碱化^[5]。若二次铝灰能得到经济、高效的治理,既能减少环境污染,又能解决含铝资源紧张问题,则对实现二次铝灰出路问题有一定意义^[6-7]。

根据二次铝灰物相组成,通过添加一定比例的其他物质,调控二次铝灰中物相成分构成,可制备铝灰基镁铝尖晶石耐火材料,实现其资源化利用^[3,8-10]。本文作者前期探讨调控二次铝灰和氧化镁质量比,通过固相烧结法制备镁铝尖晶石材料,得出:1400℃烧结,保温3h时,所制备的镁铝尖晶石材料体积密度2.02 g/cm³,线变化率0.38和抗压强度89.8 MPa^[11]。但二次铝灰含有的二氧化硅在烧结过程中容易形成低黏度液相^[12],对烧结制备的镁铝尖晶石材料性能存在一定影响,但目前对材料性能如何影响以及影响机制报道较少。

基于前期研究形成的二次铝灰制备镁铝尖晶石

[收稿日期] 2022-12-06 [修订日期] 2023-01-08

[录用日期] 2023-01-12 [出版日期] 2023-06-28

[第一作者] 张勇(1989—),男,博士,讲师,主要从事固体废物资源化利用研究。

[基金项目] 国家自然科学基金资助项目(52004113)。

[引用格式] 张勇,宗晨宇,王钰婷,等.二氧化硅对二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料性能的影响[J].中国有色冶金,2023,52(3):57-65.

的优化工艺条件^[11,13-15],本文通过探究二氧化硅在烧结过程中反应行为,进一步研究二氧化硅含量在烧结过程中对镁铝尖晶石材料性能影响,并分析影响机理,为二次铝灰资源的综合利用提供技术和理论支撑。

1 原料与方法

1.1 试验原料

本试验采用江西某再生熔炼铝厂产生二次铝灰,筛分预处理至 75 μm 后封袋保存备用。XRD 分析二次铝灰主要物相为 Al、α-Al₂O₃、MgAl₂O₄ 和 AlN (图 1)。二次铝灰物相分析得出:金属铝占铝灰质量 23.67%,刚玉相占铝灰质量 23.57%,镁铝尖晶石占铝灰质量 9.10%,氮化铝占铝灰质量 2.19%。

二次铝灰主要化学成分见表 1。原料氧化镁、二氧化硅均为分析纯(纯度 99.8%)。

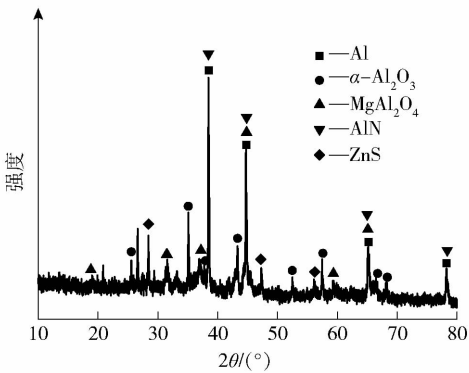


图 1 二次铝灰 XRD 图谱
Fig.1 XRD pattern of the secondary aluminum dross

表 1 二次铝灰化学成分

Table 1 Chemical compositions of the secondary aluminum dross %

元素	Al	Mg	Si	Ca	Fe	Na	Ti	O	其他
含量	39.61	6.39	7.26	3.47	1.20	1.03	1.61	32.67	6.76

1.2 试验方法

前期研究^[11,15-16]表明,当二次铝灰和氧化镁质量分数比为 1:0.2 时,在 1 400 ℃ 条件下烧结,保温 3 h,得到的 MA 材料体积密度为 2.02 g/cm³,显气孔率 9.65%,线变化率为 38%,抗压强度为 89.8 MPa,超过《镁砖和镁铝砖》(GB/T 2275—2007)强度要求(40 MPa)。在此基础上,设计不同二氧化硅掺量(分别为 5%、10%、15% 和 20%)对二次铝灰烧制镁铝尖晶石材料性能影响试验,以探究二氧化硅在二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料体系中反应行为。二次铝灰、氧化镁和二氧化硅三者置于混料机中混炼 10 min,添加 3% 聚乙烯醇(PVA)为黏结剂,均化后物料置于液压成型机中,压制成圆柱体生坯(成型压力 25 MPa,保压 1 min,圆柱体高 1 cm,直径 2.5 cm)。生坯圆柱体在 105 ℃ 烘箱中干燥 24 h,恒重后在管式烧结炉中烧结,反应结束,熟料冷却后取出。材料制备和烧结流程示意如图 2 所示。

1.3 测试方法

采用 D/MAX 2500X 型 X 射线衍射仪(日本理学公司)分析样品中物相组成^[17];AXIOS 型 X 荧光光谱仪(荷兰 PANalytical 公司)用于分析二次铝灰

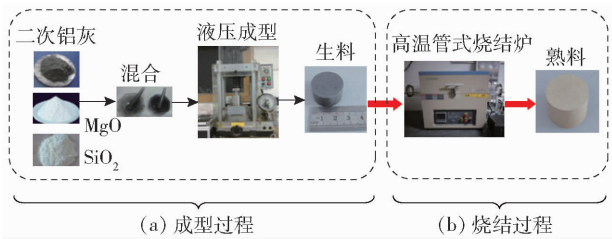


图 2 材料制备和烧结流程示意
Fig.2 Schematics of the raw materials prepared from the secondary aluminium dross

中元素及含量^[18-19];采用化学物相滴定法分析含铝物相及含量^[20];采用 TYA-100C 型电液式抗折抗压试验机分析产品抗压强度^[21-22];采用阿基米德法测量体积密度;采用高径比计算材料线变化率。

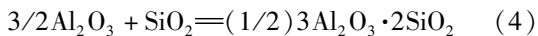
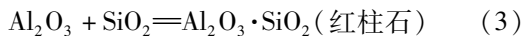
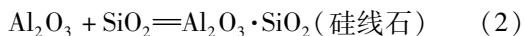
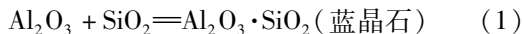
2 结果与分析

2.1 二氧化硅在体系中热力学计算

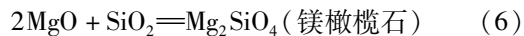
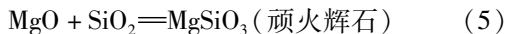
根据 Factsage 8.1 计算二次铝灰体系中二氧化硅可能发生的化学反应^[23],SiO₂-Al₂O₃ 体系发生的反应见式(1)~(4);SiO₂-MgO 体系发生的反应见式(5)~(6);SiO₂-MgO-Al₂O₃ 体系发生的反应见

式(7)~(8)。

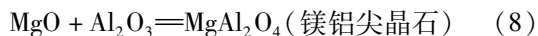
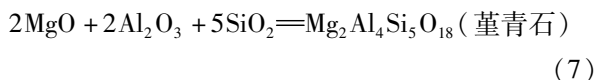
1) $\text{SiO}_2-\text{Al}_2\text{O}_3$ 体系。



2) SiO_2-MgO 体系。



3) $\text{SiO}_2-\text{MgO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 体系。



标准状态下,上述反应的吉布斯自由能与温度的关系如图 3 所示。

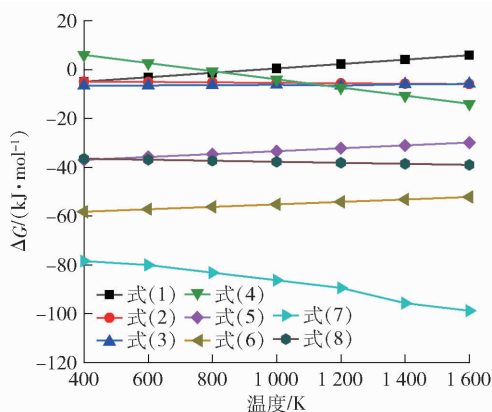


图 3 式(1)~(8)反应吉布斯自由能与温度关系

Fig. 3 The relationship between Gibbs free energy and T of (1)~(8)

图 3 分析表明,反应式(7)形成 $\text{MgAl}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$ (堇青石)的 ΔG 是反应式(1)~(8)中最低的,表明二氧化硅的存在,热力学上更易出现 $\text{MgAl}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$ (堇青石),其次是 Mg_2SiO_4 (镁橄榄石);同时,试验温度范围(1 200~1 500 $^{\circ}\text{C}$)内, $\text{SiO}_2-\text{MgO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 体系下可生成镁铝尖晶石,这与后面 XRD 分析检测一致。

2.2 二氧化硅添加量对镁铝尖晶石材料性能的影响

2.2.1 对镁铝尖晶石材料体积密度的影响

有研究表明,1 400 $^{\circ}\text{C}$ 保温 3 h 烧结制备的镁铝尖晶石材料体积密度为 2.02 g/cm^3 ^[11]。不同烧结温度(1 200~1 500 $^{\circ}\text{C}$)下,考察不同二氧化硅添加

量对镁铝尖晶石材料体积密度影响,如图 4 所示。

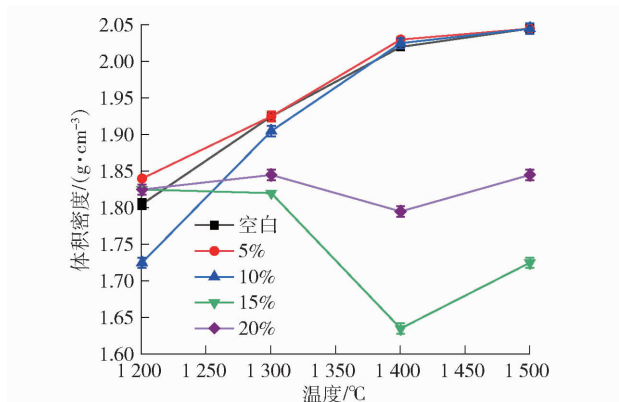


图 4 1 200~1 500 $^{\circ}\text{C}$ 不同二氧化硅含量对镁铝尖晶石材料影响

Fig. 4 The effect of different SiO_2 contents on the density of MgAl_2O_4 at 1 200~1 500 $^{\circ}\text{C}$

由图可知,温度在 1 200~1 500 $^{\circ}\text{C}$ 内,二氧化硅含量为 5% 时,随温度上升体积密度呈线性增加,当温度超过 1 400 $^{\circ}\text{C}$ 以上时,对材料体积密度略有提高,1 400 $^{\circ}\text{C}$ 时烧结材料体积密度由无二氧化硅材料的 2.02 g/cm^3 提高到 2.03 g/cm^3 ,1 500 $^{\circ}\text{C}$ 时烧结材料体积密度由 1 400 $^{\circ}\text{C}$ 1.99 g/cm^3 提高到 2.05 g/cm^3 ;1 200~1 500 $^{\circ}\text{C}$ 下,15% 和 20% 二氧化硅烧结材料的体积密度均无明显变化规律,其中 1 400 $^{\circ}\text{C}$ 体积密度最小。这是因为二氧化硅在高温烧结过程中形成液相,液相的均匀流动使得烧结体致密性提高,从而材料体积密度增加。但过量二氧化硅在高温烧结过程中形成过多液相,造成烧结体局部过烧,导致材料内部微观结构不均一,致使材料体积密度减小^[24-25]。

2.2.2 对镁铝尖晶石材料线变化率和抗压强度的影响

1 400 $^{\circ}\text{C}$ 保温 3 h 烧结制备的镁铝尖晶石材料线变化率为 0.38,抗压强度为 89.8 MPa ^[11]。多次测量取平均值,试验数据进行误差分析,绘制不同二氧化硅含量对材料线变化率和抗压强度影响,结果见图 5。

由图可知:材料烧结过程越紧密,材料抗压强度越大,线变化率越小;在 1 300~1 400 $^{\circ}\text{C}$ 烧结,5%~20% 二氧化硅的烧结材料线变化规律呈现“鞍马”状,中间低两端高,材料有一个体积收缩过程,烧结低温与高温端,材料线变化率较大,二氧化硅含量增

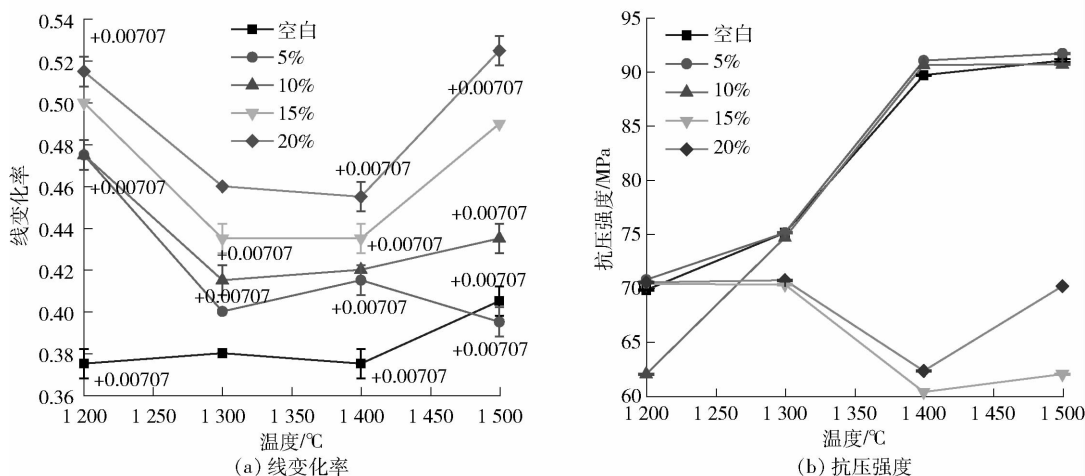


图5 1 200 ~ 1 500 °C 不同二氧化硅含量对镁铝尖晶石材料线变化率和抗压强度影响

Fig. 5 The effect of different SiO₂ contents on the linear expansivity and the compressive strength of MgAl₂O₄ at 1 200 ~ 1 500 °C

加,材料线变化率增大,5% 二氧化硅对烧结材料线变化率影响较小;在 1 200 ~ 1 500 °C 烧结,较低含量二氧化硅对二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料抗压强度有一定提升,较高含量二氧化硅则不利于材料的致密性;含 5% 二氧化硅原料样品随烧结温度的提高,材料抗压强度提高,相比未增加二氧化硅的空白样,材料抗压强度整体变化规律相似。

由扩散系数方程^[26-27] ($D = D_0 \exp(-Q/RT)$) 可知,温度是扩散系数的主要决定因素,升温有利于杂质氧化物形成低熔点液体,低黏度的液相流动,填充孔洞,最终提高材料致密性,提高材料抗压强度^[28];但在烧结过程中,过多的液相导致微观颗粒流动性变差,造成材料微观结构局部液相增多,致使材料微观结构局部发泡膨胀,从而烧结体微观组织不均匀。综合考虑,5% 二氧化硅对二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料材料的线变化率和抗压强度起到促进作用。

2.3 二氧化硅对材料性能影响机制

2.3.1 烧结产物成分 XRD 分析

含 5% ~ 20% 二氧化硅的样品在 1 200 ~ 1 400 °C 烧结和含 5% 二氧化硅的样品在 1 200 ~ 1 500 °C 烧结产物的 XRD 见图 6。含 5% ~ 15% 二氧化硅的样品在 1 200 °C 烧结,材料主要物相为 MgAl₂O₄、Al₂O₃、Mg₂SiO₄ 和 (Ca, Na)(Si, Al)₄O₈; 含 20% 二氧化硅的样品在 1 200 °C 烧结,材料主要物相为 MgAl₂O₄、Al₂O₃、Mg₂SiO₄ 和 (Ca, Na)(Si,

Al)₄O₈, 还出现 SiO₂ (过量)。含 5% ~ 20% 二氧化硅的样品在 1 300 °C 烧结,材料主要物相为 MgAl₂O₄、Al₂O₃ 和 (Ca, Na)(Si, Al)₄O₈, 而 Mg₂SiO₄ 物相消失, Mg₂SiO₄ 转化规律符合热力学规律, Mg₂SiO₄ 在低温烧结情况下优先生成,在高温烧结条件下不稳定。含 5% ~ 20% 二氧化硅的样品在 1 400 °C 烧结,材料主要物相为 MgAl₂O₄, 随二氧化硅含量增加, MgAl₂O₄ 衍射峰强度减弱。

2.3.2 烧结产物 SEM 分析

含 5% 二氧化硅原料样品在 1 200 ~ 1 500 °C 烧结,材料粉体 SEM 见图 7。

1 200 °C 下烧结,粉体 SEM 中出现棒状物,经微区 EDS 分析主要元素 Mg、Al、O 和 Si 含量,结合 XRD 分析,表明区域 1 棒状物主要物相为 Mg₂SiO₄; 温度升高至 1 300 °C, SEM 中出现较厚纤维状组织,纤维状组织结构与矩阵结合良好并均匀分散在矩阵中,此时材料受到负荷压力则会有效转移至纤维状组织上,所受压力不会影响主晶粒^[21],因此纤维状微观组织结构有利于提高材料的微观硬度,对孔隙减小、材料组织结构致密性提高有利^[22]。微区元素含量分析见表 2。1 400 °C 下烧结,粉体 SEM 中出现主要晶粒通过 XRD 结合 EDS 分析的主要元素 Mg、Al 和 O 含量,该晶粒成分主要为 MgAl₂O₄, MgAl₂O₄ 结晶行为的改变往往是通过改变表面张力和烧结体黏度,升高烧结温度或延长烧结时间,烧结体流动充分,从而使烧结体致密^[29]。1 500 °C 下烧结,晶粒间

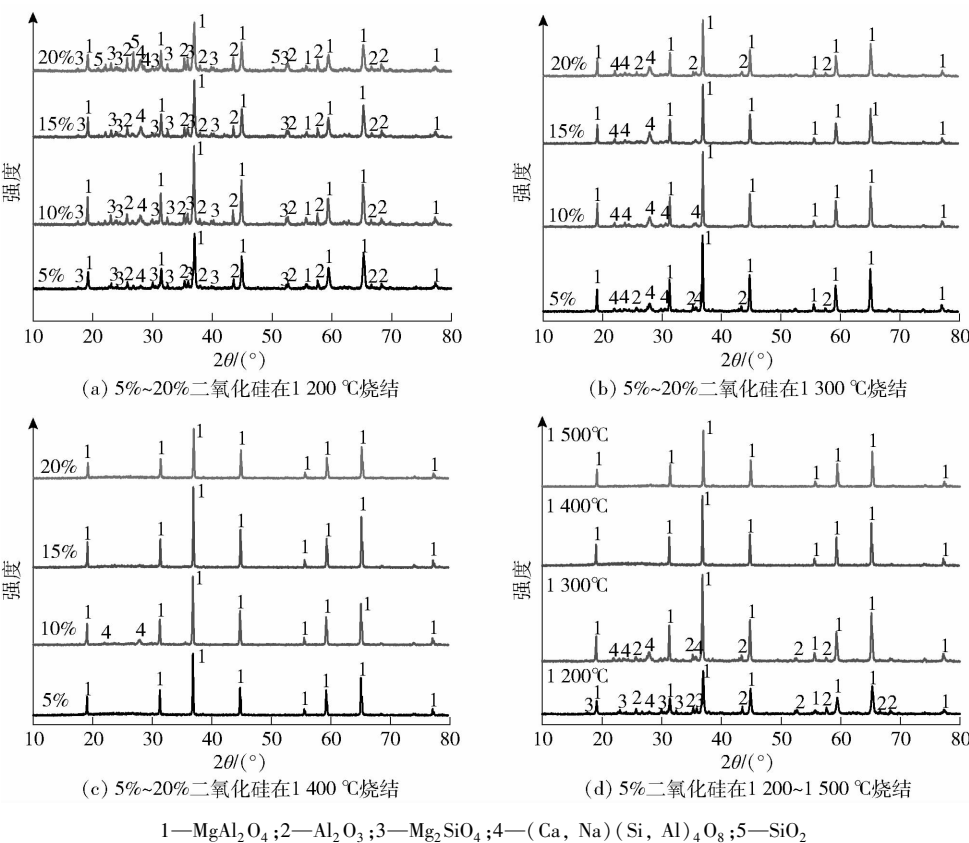


图 6 5% ~20% 二氧化硅在 1 200 ~1 400 °C 烧结 3 h 和 5% 二氧化硅在 1 200 ~1 500 °C 烧结试样 XRD

Fig. 6 XRD patterns of spinel with different contents of SiO_2 at 1 200 ~1 500 °C

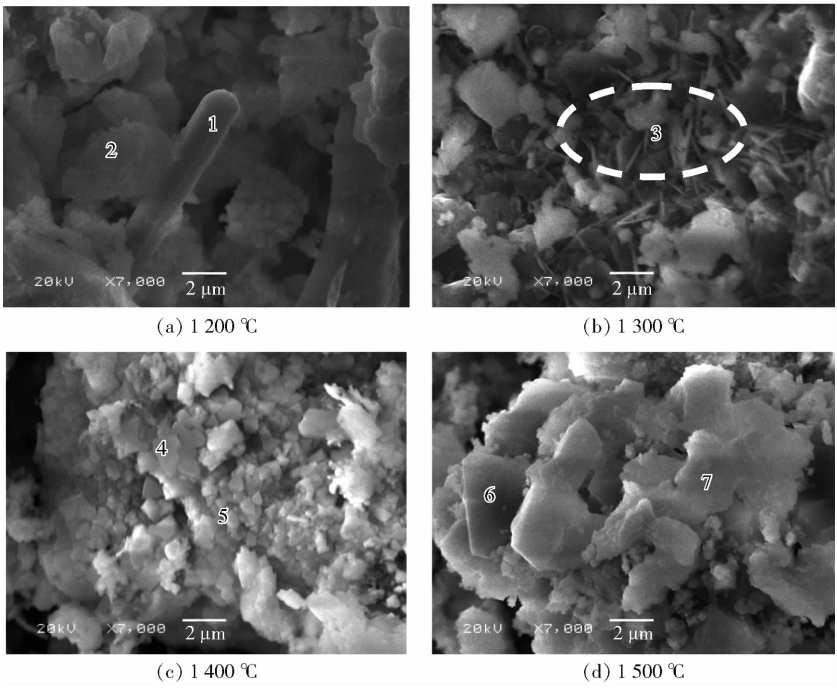


图 7 5% 二氧化硅样品在 1 200 ~1 500 °C 烧结试样粉体 SEM

Fig. 7 SEM images of spinel powders with 5% SiO_2 at 1 200 ~1 500 °C

表 2 图 7 试样微区成分分析(质量分数)

Table 2 Analysis on sample microzone compositions in Fig. 7							%
Region	O	Mg	Al	Si	Ca	Fe	Ti
1	11.43	15.28	51.79	17.64	3.85	—	—
2	10.99	12.95	69.69	4.75	1.62	—	—
3	10.88	15.90	63.73	2.66	3.10	—	—
4	13.05	20.10	60.21	2.32	2.98	—	—
5	13.20	18.51	62.34	1.08	1.87	—	—
6	20.68	16.42	57.33	2.10	2.48	—	—
7	9.73	14.88	69.05	2.54	2.80	—	—

注: 表格中—表示 EDS 未检测到 Fe 和 Ti。

填充玻璃相,材料微观组织出现团聚,这是因为通过高温烧结或延长烧结时间结晶过程超过一定限度,烧结体有可能形成新的气孔(二次气孔)^[28-30],而气孔和晶粒尺寸影响材料的强度,气孔率和晶粒尺寸加大不利于提高材料强度^[23]。

2.3.3 烧结产物的红外谱图

不同烧结温度下含 5% 二氧化硅的烧结材料红外谱图见图 8。690 cm⁻¹、530 cm⁻¹附近是 Mg-O-Al 红外特征峰;在 1 200 °C 和 1 300 °C 生成的烧结材料谱图中还出现 1 000 cm⁻¹左右的峰,这是体系中 SiO₄⁴⁻位置,这与 1 200 °C 出现 Mg₂SiO₄, 1 300 °C 出现 (Ca, Na)(Si, Al)₄O₈ 吻合;烧结温度提升至 1 400 °C, 1 000 cm⁻¹左右位置峰宽化,这是烧结温度提高,体系中原主要物相 MgAl₂O₄, Mg₂SiO₄ 和 (Ca, Na)(Si, Al)₄O₈ 消失,剩余主要物相为 MgAl₂O₄ 的

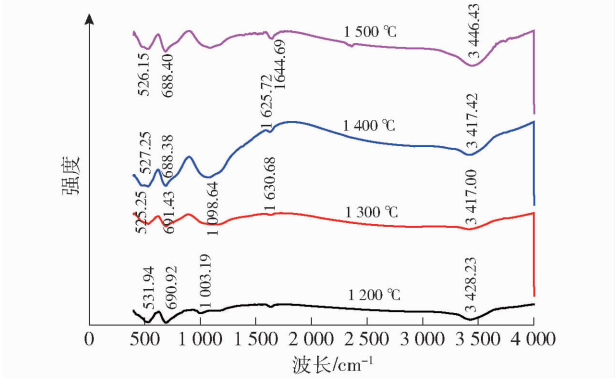


图 8 5% 二氧化硅样品在 1 200 ~ 1 500 °C 烧结材料的 FTIR

Fig. 8 FTIR patterns of spinel with 5% SiO₂ at 1 200 ~ 1 500 °C

结果,即 Al³⁺ 替代 Si⁴⁺ 的结果^[31]。1 500 °C 红外谱图的规律与 1 400 °C 相似,主要峰的位置为 MgAl₂O₄。

2.3.4 镁铝尖晶石材料的晶格常数和晶胞体积

烧结原料含 5% 二氧化硅对二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料晶格常数和晶胞体积的影响,如图 9 所示。

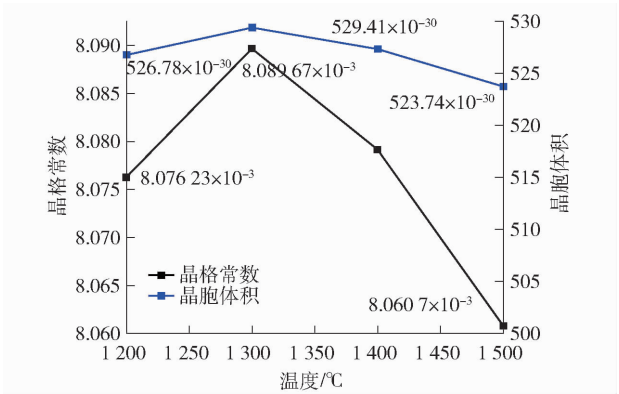


图 9 5% 二氧化硅样品在 1 200 ~ 1 500 °C 烧结镁铝尖晶石晶格常数和晶胞体积

Fig. 9 MgAl₂O₄ particle lattice constants and cell volume with 5% SiO₂ at 1 200 ~ 1 500 °C

样品在 1 200 ~ 1 300 °C 下烧结, MgAl₂O₄ 晶胞常数和晶胞体积增大; 1 300 ~ 1 500 °C 下烧结, MgAl₂O₄ 晶胞常数和晶胞体积减小。晶胞常数和晶胞体积都经历先变大后减小的过程,也就是离子溶进和溶出的过程。

烧结原料含 5% 二氧化硅对材料烧结过程影响示意如图 10 所示。镁铝尖晶石是由氧化铝和氧化镁反应生成,二氧化硅在烧结过程中形成液相,同时与其他离子一起作用,溶出和溶进是镁铝尖晶石晶格常数变化的原因。

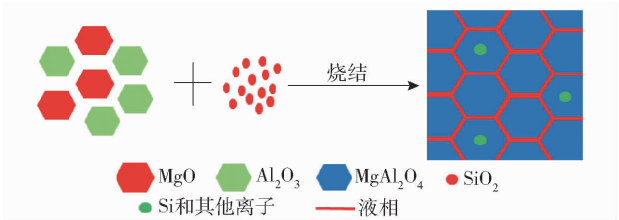


图 10 5% 二氧化硅对材料烧结过程影响示意

Fig. 10 Schematic diagram of 5% SiO₂ influence on sintering process

3 结论

1) 二次铝灰烧结可制备镁铝尖晶石材料, 同时二氧化硅影响烧结材料性能。含 5% ~ 20% 二氧化硅的原料样品在 1 400 °C 下烧结, 烧结材料主要物相为 MgAl_2O_4 , 随二氧化硅含量增加, MgAl_2O_4 衍射峰强度减弱。1 400 °C 下烧结 3 h, 原料含 5% 二氧化硅使得材料致密性提高, 材料体积密度为 2.03 g/cm³, 线变化率为 0.42, 抗压强度为 91.1 MPa, 适量的二氧化硅对二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料线变化率和抗压强度的改善起到促进作用。

2) 在 1 200 ~ 1 500 °C 进行焙烧, 烧结体中出现较厚纤维状组织, 材料致密性提高, 二氧化硅含量增加, 材料体积密度减小, 线变化率增大, 抗压强度变小。在烧结过程中, 产物的晶胞常数和晶胞体积都经历先变大后减小的过程, 即离子溶进和溶出的过程。

[参考文献]

[1] 杨航, 申士富, 刘海营, 等. 二次铝灰工艺矿物学特性研究[J]. 有色金属工程, 2019, 9(10): 117-125.
YANG Hang, SHEN Shifu, LIU Haiying, et al. Study on mineralogical characteristics of secondary aluminum ash[J]. Nonferrous Metals Engineering, 2019, 9(10): 117-125.

[2] 张含博. 电解铝厂铝灰处理工艺现状及发展趋势[J]. 有色冶金节能, 2019, 35(2): 11-15.
ZHANG Hanbo. Current status and development trend of treatment process of aluminum ash in electrolytic aluminum factory[J]. Energy Saving of Nonferrous Metallurgy, 2019, 35(2): 11-15.

[3] 李玲玲, 宋明, 靳强. 铝灰回收利用的研究进展[J]. 无机盐工业, 2018, 50(8): 6-11.
LI Lingling, SONG Ming, JIN Qiang. Research progress of recovery and utilization of aluminum dross[J]. Inorganic Chemicals Industry, 2018, 50(8): 6-11.

[4] 钟超. 二次铝灰渣检验及应用前景探讨[C]//2021年中国铝加工产业年度大会暨中国(湖州)铝加工绿色智造高峰论坛论文集(下册), 2021: 76-84.
ZHONG Chao. Inspection and application prospect of secondary aluminum ash and slag[C]//2021 China Aluminum Processing Industry Annual Conference and China (Huzhou) Aluminum Processing Green Intelligent Manufacturing Summit Forum Collection (Volume 2), 2021: 76-84.

[5] XUE S G, KONG X F, ZHU F, et al. Proposal for management and alkalinity transformation of bauxite residue in China[J]. Environmental Science and Pollution Research, 2016, 23(13): 12822-12834.

[6] ZHANG M, LIU J H, ZHOU J W. Effect of Eu_2O_3 on sintering densification and corrosion resistance of magnesium aluminate spinel[J]. Ceramics International, 2022, 48(6): 7557-7563.

[7] ZHU X Y, JIN Q, YE Z. Life cycle environmental and economic assessment of alumina recovery from secondary aluminum dross in China[J]. Journal of Cleaner Production, 2020, 277: 123291.

[8] TAVANGARIAN F, EMADI R. Synthesis and characterization of pure nanocrystalline magnesium aluminate spinel powder[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2010, 489(2): 600-604.

[9] BONNEFONT G, FANTOZZI G, TROMBERT S, et al. Fine-grained transparent MgAl_2O_4 spinel obtained by spark plasma sintering of commercially available nanopowders[J]. Ceramics International, 2012, 38(1): 131-140.

[10] 邢修君, 吴跃东. 国内外铝灰资源化利用技术发展现状[J]. 环境工程, 2021, 39(3): 148-152.
XING Xiujun, WU Yuedong. Review on development on the utilization of aluminum dross[J]. Environmental Engineering, 2021, 39(3): 148-152.

[11] 张勇, 何小娟, 喻成龙, 等. 二次铝灰烧结制备镁铝尖晶石材料[J]. 有色金属科学与工程, 2021(6): 33-40.
ZHANG Yong, HE Xiaojuan, YU Chenglong, et al. Sintering fabrication of magnesia-alumina spinel by secondary aluminum[J]. Nonferrous Metals Science and Engineering, 2021(6): 33-40.

[12] 张勇, 郭朝晖, 王硕, 等. 二次铝灰烧结制备钙铝黄长石/镁铝尖晶石复相材料[J]. 中国有色金属学报, 2018, 28(2): 334-349.
ZHANG Yong, GUO Zhaohui, WANG Shuo, et al. Calcium-aluminum yellow feldspase/magnesium-aluminum spinel compound material was prepared by secondary aluminum ash sintering[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2018, 28(2): 334-349.

[13] 李登奇, 秦庆伟, 刘文科, 等. 从再生铝二次铝灰中浸出铝的动力学试验研究[J]. 湿法冶金, 2020, 39(5): 371-375.
LI Dengqi, QIN Qingwei, LIU Wenke, et al. Leaching kinetics of aluminum from secondary aluminum dross[J]. Hydrometallurgy of China, 2020, 39(5): 371-375.

[14] 韩金珊, 左正平, 赵洪亮, 等. 二次铝灰处置及利用现状及其在炼钢中的应用[J]. 中国冶金, 2022, 32(5): 1-10.
HAN Jinshan, ZUO Zhengping, ZHAO Hongliang, et al. Disposal and utilization of secondary aluminum dross and its application in steelmaking[J]. China Metallurgy, 2022, 32(5): 1-10.

[15] SHI M, LI Y, SHI J J. Fabrication of periclase and magnesium aluminate spinel refractory from washed residue of secondary aluminum dross[J]. Ceramics International, 2022, 48(6): 7668-7676.

[16] PENG W D, CHEN Z, YAN W, et al. Advanced lightweight periclase-magnesium aluminate spinel refractories with high mechanical properties and high corrosion resistance[J]. Construc-

- tion and Building Materials, 2021, 291: 123388.
- [17] ZHANG Y, GUO Z H, HAN Z Y, et al. Effects of AlN hydrolysis on fractal geometry characteristics of residue from secondary aluminium dross using response surface methodology[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2018, 28(12): 2574–2581.
- [18] 刘大强, 刘桂媛, 何云龙. 铝灰生产棕刚玉的工艺[J]. 哈尔滨理工大学学报, 1996, 1(2): 48–50.
- LIU Daqiang, LIU Guiyuan, HE Yunlong. The process of producing brown corundum by aluminum ash[J]. Journal of Harbin University of Science and Technology, 1996, 1(2): 48–50.
- [19] 刘瑞琼, 智利彪, 智国彪. 利用铝灰低温冶炼制备棕刚玉[J]. 耐火材料, 2014, 48(2): 145–146.
- LIU Ruiqiong, ZHI Libiao, ZHI Guobiao. Brown corundum was prepared by low-temperature smelting of aluminum ash[J]. Refractories, 2014, 48(2): 145–146.
- [20] HAN Z Y, GUO Z H, ZHANG Y, et al. Adsorption-pyrolysis technology for recovering heavy metals in solution using contaminated biomass phytoremediation[J]. Resources, Conservation and Recycling, 2018, 129: 20–26.
- [21] YU Z Y, ZHAO N Q, LIU E Z, et al. Fabrication of aluminum matrix composites with enhanced mechanical properties reinforced by *in situ* generated MgAl_2O_4 whiskers[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2012, 43(4): 631–634.
- [22] SALMAN S M, SALAMA S N, DARWISH H, et al. The role of MgO on the structural properties of $\text{CaO}-\text{Na}_2\text{O}(\text{MgO})-\text{P}_2\text{O}_5-\text{CaF}_2-\text{SiO}_2$ derived glass ceramics[J]. Ceramics International, 2010, 36(1): 55–61.
- [23] DEAN J A. Lange's Chemistry Handbook[M]. Beijing: Science Press, 2003.
- [24] JOHN M. PAPPAS, DONG X Y. Porosity characterization of additively manufactured transparent MgAl_2O_4 spinel by laser direct deposition[J]. Ceramics International, 2020, 46(5): 6745–6755.
- [25] HU S Y, WANG D Y, HOU D, et al. Research on the preparation parameters and basic properties of premelted calcium aluminate slag prepared from secondary aluminum dross[J]. Materials, 2021, 14(19): 5855–5855.
- [26] 卓磊, 陈文革, 张洋, 等. 成型方法对纳米二氧化硅陶瓷烧结行为及微观结构的影响[J]. 人工晶体学报, 2014, 43(9): 2313–2318.
- ZHUO Lei, CHEN Wenge, ZHANG Yang, et al. Influence of molding methods on the sintering behavior and microstructure of silica nanoceramics[J]. Journal of Synthetic Crystals, 2014, 43(9): 2313–2318.
- [27] 王飞, 刘钰玲, 都昌发, 等. 放电等离子烧结电场下 Ni–Al 体系 FCC 相的扩散行为[J]. 粉末冶金材料科学与工程, 2021, 26(5): 412–418.
- WANG Fei, LIU Yuling, DU Changfa, et al. Diffusion behavior of FCC Ni–Al system in spark plasma sintering electric field[J]. Materials Science and Engineering of Powder Metallurgy, 2021, 26(5): 412–418.
- [28] GUO A R, LIU J C, XU R, et al. Preparation of mullite from desilication-fly ash[J]. Fuel, 2010, 89(12): 3630–3636.
- [29] ALIZADEH P, YOUSEFI M, YEKTA B E, et al. Sintering behavior of $\text{SiO}_2-\text{CaO}-\text{MgO}(\text{Na}_2\text{O})$ glass-ceramics system[J]. Ceramics International, 2007, 33(5): 767–771.
- [30] TULYAGANOV D U, AGATHOPOULOS S, FERNANDES H R, et al. Processing of glass-ceramics in the $\text{SiO}_2-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{B}_2\text{O}_3-\text{MgO}-\text{CaO}-\text{Na}_2\text{O}-(\text{P}_2\text{O}_5)-\text{F}$ system *via* sintering and crystallization of glass powder compacts[J]. Ceramics International, 2006, 32(2): 195–200.
- [31] TEMUJIN J, OKADAB K, MACKENZIE K J D. Effect of mechanochemical treatment on the crystallization behaviour of di-phasic mullite gel[J]. Ceramics International, 1999, 25(1): 85–90.

Effect of silicon dioxide on properties of magnesium-aluminum-spinel sintered from secondary alumina dross

ZHANG Yong, ZONG Chenyu, WANG Yuting, LIU Xinyu

(School of Land Resources and Environment, Jiangxi Agricultural University, Nanchang 330045, China)

Abstract: The output of secondary aluminum ash in China is large, and the total aluminum content is not low. In the process of stacking, it is leached by rain, resulting in pollution of water and soil salinization. On the basis of previous studies, the secondary aluminum ash produced in the recycled aluminum industry was used as the main raw material, and the effect of silica content on the properties of magnesium-aluminum spinel materials sintered from secondary aluminum ash was studied by solid-phase sintering method, and the sintered products were analyzed by means of XRD, SEM and infrared spectroscopy. The results show that when the mass fraction ratio of secondary alumina ash to magnesium oxide is 1:0.2, the secondary alumina ash can be sintered into MgAl_2O_4 spinel materials at 1400 °C and held for 3 h. Silicon dioxide has an effect on the properties of MgAl_2O_4 spinel materials prepared by secondary alumina ash sintering. When 5% silicon dioxide was added, the performance of MgAl_2O_4 spinel was the