

离心干燥制备含镧钼酸铵的焙解机制

张 晓^{1,2,3,4}, 王快社^{1,2}, 牛 帅^{3,4}, 任宝江^{3,4}, 刘旭洋^{3,4}

(1. 西安建筑科技大学 冶金工程学院, 陕西 西安 710055)

(2. 西安建筑科技大学 功能材料加工国家与地方联合工程研究中心, 陕西 西安 710055)

(3. 金堆城钼业股份有限公司, 陕西 西安 710077)

(4. 陕西省“四主体一联合”先进钼化合物功能材料校企联合研究中心, 陕西 西安 710077)

摘要: 本实验采用离心干燥法, 含镧钼酸铵为原料, 将其焙解为含镧三氧化钼。通过 XRD 和 TG-MS 对含镧钼酸铵在空气中的热分解过程进行了分析, 并研究了不同焙解温度制备含镧三氧化钼的形貌及理化性能。结果表明, 含镧钼酸铵为非晶态、中空近球形颗粒, 在热分解过程中经历了 3 个阶段: 室温至 196.5 ℃, 离心干燥粉发生从非晶态到晶态的转变; 196.5~337.8 ℃, 铵根离子完全分解, 有亚稳态 $h\text{-MoO}_3$ 生成; 337.8~410.1 ℃, $h\text{-MoO}_3$ 发生相变生成 $\alpha\text{-MoO}_3$ 。含镧三氧化钼“遗传”了离心干燥粉形貌, 为近球形, 随着焙解温度升高, 颗粒表面越粗糙, 破碎颗粒增多, 内部小颗粒由不规则的粘结颗粒向规则的片状转变。焙解温度对含镧三氧化钼杂质元素含量影响不大, 但随着温度升高, 含镧三氧化钼的粒度和松装密度稍有减小。

关键词: 含镧钼酸铵; 焙解; 离心干燥

中图法分类号: TG146.4⁺¹²

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2024)05-1349-06

钼及钼合金由于强度高、热膨胀系数低、导热导电性好、耐磨性好、耐熔融金属与玻璃腐蚀性强等特点, 得到了广泛应用。近年来, 随着新能源、电子行业、先进医疗、核电的发展, 钼及钼合金 3D 打印粉末、靶材、集成电路等高附加值产品年用量逐渐增加。然而这些新兴产品的质量要求严苛, 对钼及钼合金粉的杂质含量、颗粒形貌、粒度分布等提出了更高的要求^[1-9], 这使得制备钼粉及后续钼深加工产品的主要原料钼酸铵的性能也要同步提高。为了进一步提高钼酸铵的性能, 业内对钼酸铵的制备工艺不断改进、创新^[10-15]。离心干燥是将溶液分散为小液滴, 液滴在热空气中瞬间实现干燥的一种高效率制粉方法, 研究表明, 采用该方法制备粉末的特性得到有效改善, 颗粒近球形、粒度分布均匀、松装密度与流动性高^[16-26], 同时由于溶液雾化、干燥几乎瞬时完成, 粉末元素均匀分布程度高、组分含量易于精确控制^[23-26]。

钼酸盐的热分解过程较为复杂, 原料对产物的形貌与性能影响较大^[27-30]。目前, 钼酸铵热分解研究多集中在仲钼酸铵、二钼酸铵、四钼酸铵等钼酸盐^[27-33], 针对离心干燥制备钼酸铵特别是含掺杂元素钼酸铵的

热分解研究较少, 本实验采用离心干燥法, 含镧钼酸铵为原料, 研究了其在空气中的热分解过程以及不同温度下焙解产物的形貌与性能, 以期为控制三氧化钼粉形貌和性能提供依据。

1 实验

首先, 用去离子水将硝酸镧溶解待用, 再将去离子水加入稀释氨水, 然后将二钼酸铵(优级纯, 金堆城钼业股份有限公司生产)加入到稀释氨水中溶解, 获得一定浓度(0.5~0.6 mol/L)的澄清溶液, 之后按实验设计量(三氧化钼含 La 量为 0.20%)取硝酸镧溶液加入澄清溶液, 混合均匀。采用实验室用小型离心干燥器对混合溶液进行离心干燥, 干燥温度为 180 ℃, 得到含 Mo、La 的离心干燥粉末即含镧钼酸铵。再将含镧钼酸铵置于天津中环真空/气氛管式电炉(SK-G06123K-3-655)中, 在自然通风条件下, 加热到 120~550 ℃温区内不同温度点保温 1.5 h, 保温结束后迅速拉至冷却区, 待样品降至室温出炉。

采用 JSM-6700F 扫描电子显微镜(日本电子株式会社)观察粉末形貌, 采用 XRD-7000 型 X 射线衍射

收稿日期: 2023-11-20

基金项目: 陕西省青年科技新星项目(2019KJXX-005)

作者简介: 张晓, 女, 1984 年生, 硕士, 高级工程师, 西安建筑科技大学, 陕西 西安 710055, 电话: 029-88411102, E-mail: zhangxiaoxa029@163.com

仪检测相组成，采用德国-耐驰-STA449C+QMS 403 (MS) 型热重-质谱联用 (TG-MS) 对试样进行热分析，测量气氛为空气，升温速率为 10 K/min；采用 Mastersizer 3000 智能型粒度测量仪测试样品粒度（英国马尔文仪器），采用美国-Aglient-5110 (OES) 型电感耦合等离子体光谱/质谱测试元素含量。

2 结果与讨论

2.1 离心干燥制备含镧钼酸铵形貌及 XRD 分析

图 1a 为离心干燥制备含镧钼酸铵的微观形貌。从图 1a 可见，离心干燥制备粉末为中空近球形颗粒，粉末粒度 20~75 μm，平均粒度为 43 μm，表面光滑，部分粉末破碎、起皱。这是由于离心盘将含有大量水分的钼酸铵混合液高速甩出形成液滴，这些微小的液滴在干燥室内被高温气流包围，表面水分快速干燥。颗粒干燥时内部的水分到颗粒表面迁移距离较长，在颗粒外表面水分蒸干结壳后还有部分水分残留在颗粒内部。在毛细管的作用下通过外表面壳层的微细孔隙移动至液滴表面，形成中空近球形颗粒；如果颗粒外表面壳层透气性太差，颗粒内部水分未及时迁出导致球体破损；部分颗粒在水分迁出后外表面壳层依然具有较好的塑性在低温时发生收缩变形，颗粒表面出现褶皱、凹坑。

图 1b 为离心干燥制备粉末的 X 射线衍射图谱。从图 1b 可见，发现所得离心干燥粉末为非晶态。这是由于离心干燥液滴快速干燥，干燥时间 1~3 s，这使得液滴水分蒸发后溶质来不及结晶，形成非晶态粉末。

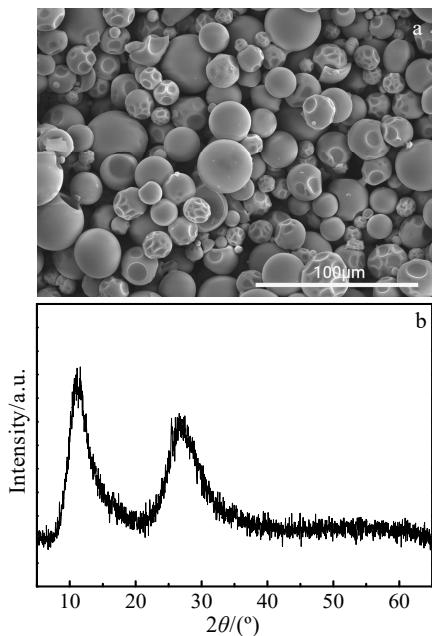


图 1 离心干燥制备含镧钼酸铵的微观形貌及 XRD 图谱

Fig.1 Micromorphology (a) and XRD pattern (b) of ammonium molybdate with lanthanum prepared by centrifugal drying

2.2 含镧钼酸铵不同温度分解产物的分析

图 2 为离心干燥制备含镧钼酸铵在不同温度焙解 1.5 h 后样品的 X 射线衍射图谱。从图 2 可以看出，焙解温度为 120 °C 时产物依然为非晶态，150 °C 出现部分晶化峰，到 200 °C 时粉末完全晶化，为 $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ (PDF 卡片 97-009-2503)；当焙解温度为 215 °C 时，物相主要由 $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ 与 $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}$ (PDF 卡片 80-0757) 组成；215 °C 后温度升高， $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ 衍射峰逐渐减弱， $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}$ 衍射峰逐渐增强，到 270 °C 时主要为 $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ ；310 °C 时焙解物相主要为 $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}$ ，并出现 $h\text{-MoO}_3$ (PDF 卡片 21-0569)，在 350 °C 又出现新物相 $\alpha\text{-MoO}_3$ (PDF 卡片 76-1003)，随着焙解温度持续升高， $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}$ 持续减少， $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}$ 、 $h\text{-MoO}_3$ 、 $\alpha\text{-MoO}_3$ 依次消失，仅 $\alpha\text{-MoO}_3$ 。由此可知，随着焙解温度(120~395 °C)升高，焙解产物的物相变化为：非晶态→ $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}\rightarrow(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}+(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}\rightarrow(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}\rightarrow(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}+h\text{-MoO}_3\rightarrow(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}+h\text{-MoO}_3+\alpha\text{-MoO}_3\rightarrow h\text{-MoO}_3+\alpha\text{-MoO}_3\rightarrow\alpha\text{-MoO}_3$ 。离心干燥粉体经过 395 °C 热处理 1.5 h 后全部转化为 $\alpha\text{-MoO}_3$ 。整个热分解过程中由于镧含量低（三氧化钼含 La 量为 0.20%），均未有效检测出含镧化合物。

2.3 含镧钼酸铵的 TG-MS 曲线分析

图 3 为含镧钼酸铵样品在空气中热分解的 TG/DSC 曲线。从图 3 可看出，含镧钼酸铵在热分解过程出现 4 次失重。由 TG 曲线可求得，样品总失重为 15.94%，在室温到 196.5 °C 温区内样品失重 4.81%，196.5~238.7 °C 内样品失重 3.47%，238.7~337.8 °C 温区内样品失重 6.98%，337.8~410.1 °C 温区内样品失重 0.68%。从 DSC 曲线可以观察到有明显的 3 个吸热峰分别位于 130.5、204.9 和 315.1 °C，1 个吸热峰位于 394.6 °C。

为了进一步分析含镧钼酸铵热分解，考察了含镧钼酸铵受热焙解过程中 NH_3 、 H_2O 的逸出曲线，如图 4 所示。由图 4 可见，在室温~670 °C 范围内，DTG 曲线上的 4 个峰值温度分别为 128.1、203.8、312 和 386.8 °C。水和氨气均出现了 4 个逸出峰，水的逸出峰分别位于 137.1、212.2、321.7 和 403.2 °C，氨气的逸出峰分别位于 139.6、214.1、322.4 和 404 °C。水和氨气逸出峰区间分布和峰形基本一致，可认为水和氨气同时溢出。仔细观察发现，水和氨气逸出峰的区间分布和峰形基本与 DTG 曲线的失重峰的区间分布和峰形一致，峰值温度滞后接近 10 °C，这是由于溢出气体需要一定的时间到达离子化室实现气体检测。

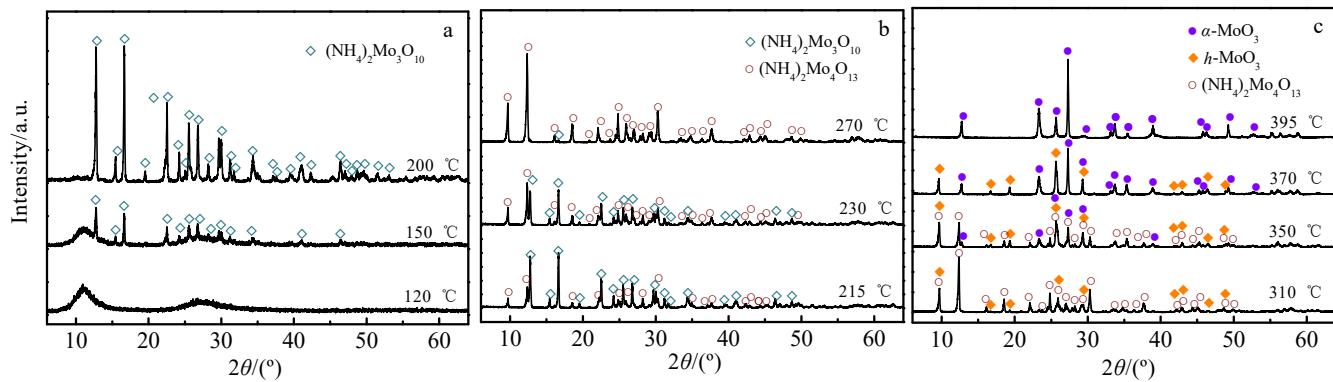


图2 不同温度焙解后产物的XRD图谱

Fig.2 XRD patterns of samples calcined at different temperatures: (a) 120-200 °C, (b) 215-270 °C, and (c) 310-395 °C

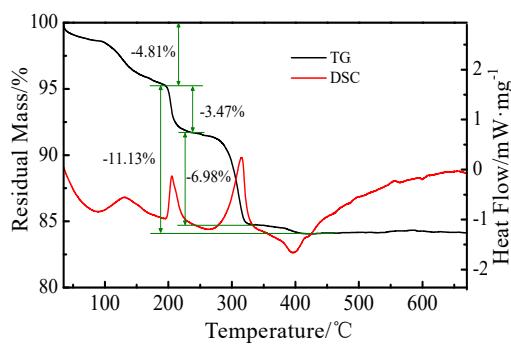
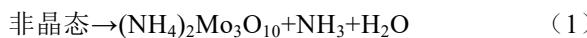


图3 含镧钼酸铵的TG/DSC曲线

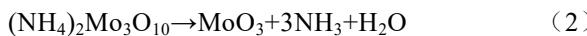
Fig.3 TG/DSC curves of ammonium molybdate with lanthanum

与文献[27-33]中报道的钼酸铵在空气中热分解过程相比较,结合XRD与TG-MS分析可以推断含镧钼酸铵在空气中的热分解过程经历了3个阶段。

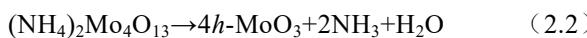
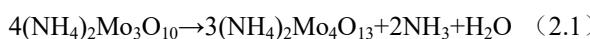
首先,是从室温至196.5 °C(出现吸热峰位于130.5 °C)之间粉体吸附水的脱除,从非晶态粉末到(NH₄)₂Mo₃O₁₀粉末转变过程中,非晶态粉末内部存在游离态的铵根离子释放,由此造成失重4.81%(图3),其反应(1)为:



其次,从196.5~337.8 °C(出现2放热峰,分别位于204.9和315.1 °C)之间(NH₄)₂Mo₃O₁₀完全分解,生成氨气、水和氧化钼,其热分解方程式(2)为:



式(2)实际失重11.13%与理论失重10.95%相符。在热分解反应(2)中,可能存在以下反应:



在196.5~337.8 °C,(NH₄)₂Mo₃O₁₀热分解符合两步热解:(NH₄)₂Mo₃O₁₀首先分解成(NH₄)₂Mo₄O₁₃;由于TG-MS升温过程中几乎没有保温时间,使得

(NH₄)₂Mo₃O₁₀分解延迟到(NH₄)₂Mo₄O₁₃分解生产成h-MoO₃的某温度区间,这两段分解在某温度区间内同时进行同时发生,直至第一步分解优先结束。这就造成式(2.1)实际失重大于理论失重(理论失重2.67%,实际失重3.47%),式(2.2)实际失重小于理论失重(理论失重8.28%,实际失重6.98%)。

最后,从337.8~410.1 °C(出现吸热峰位于394.6 °C),h-MoO₃转化成α-MoO₃^[30]其反应(3)为:



该温区内样品失重0.68%,可能是由于亚稳定的h-MoO₃发生相变生成稳定的α-MoO₃吸收热量使得样品局部温度低于反应温度,(NH₄)₂Mo₄O₁₃少量残余,且热重升温速度快,在温度升高后才能充分反应。

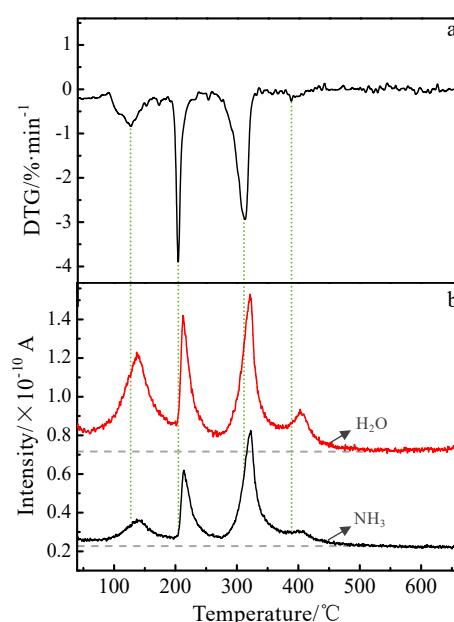


图4 含镧钼酸铵热分解过程中的热失重曲线与质谱曲线

Fig.4 Thermogravimetric (a) and mass spectrometric curves (b) for the decomposition of ammonium molybdate with lanthanum

2.4 焙解温度对最终含镧三氧化钼粉形貌的影响

图 5 为不同温度焙解产物的微观形貌。由图 5 可见, 焙解产物含镧三氧化钼颗粒“遗传”了离心干燥粉的原始形貌(近球形), 随着焙解温度的升高, 颗粒表面越粗糙, 破碎颗粒增多。高倍下发现 350 °C 时颗粒表面相对光滑, 出现较多的裂纹与孔洞, 细小的不规则颗粒粘结在一起; 随着温度升高, 出现规则细小的片状颗粒, 他们相互依附长大, 并且逐渐变得松散; 到 400 °C 时, 片状颗粒依附长大减少, 多为较大的片状单颗粒。造成不同温度下粉末热分解产物形貌差异的原因是在较低的温度下, 粉末受热后在热应力作用下发生分裂后原位转变引起了裂纹与孔洞; 随着焙解温度的升高, 产物三氧化钼之间的相互作用、迁移和

重组逐渐加剧^[30], 形成片状颗粒, 并逐渐长大, 在 500 °C 下三氧化钼的挥发与沉积将进一步加剧单颗粒的分散与长大。

2.5 焙解温度对最终含镧三氧化钼粉理化指标的影响

表 1 为含镧钼酸铵与三氧化钼的理化指标。由表 1 可见, 由于热分解, 钼、镧含量增加, 铁、铜、钾等杂质元素含量变化较小, 各项元素含量均满足国标的要求。与原料钼酸铵相比较, 热分解后获得三氧化钼的费氏粒度减小、松装密度增大。这是原料中氨气与水溢出后颗粒收缩、材料本身的密度增大所致。然而随着焙解温度提高, 三氧化钼颗粒进一步收缩、破碎(见图 5), 粒度和松装密度稍有减少。

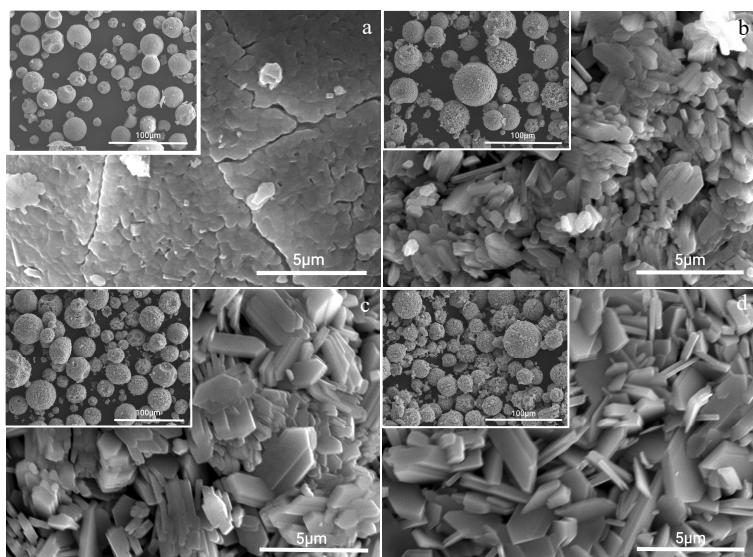


图 5 不同温度制备含镧三氧化钼粉的微观形貌

Fig.5 Micromorphologies of MoO_3 powders prepared at different temperatures: (a) 350 °C, (b) 400 °C, (c) 450 °C, and (d) 500 °C

表 1 含镧钼酸铵与三氧化钼的理化指标

Table 1 Physics and chemistry indexes of the ammonium molybdate and MoO_3 with lanthanum calcinated at different temperatures

Index	Not calcinated	350 °C	400 °C	450 °C	500 °C
Mo/wt%	55.82	66.65	66.68	66.69	66.67
La/wt%	0.168	0.191	0.195	0.191	0.194
Fe/wt%	0.0002	0.0002	0.0002	0.0002	0.0002
Cu/wt%	0.0002	0.0002	0.0002	0.0002	0.0002
Ca/wt%	0.0002	0.0006	0.0006	0.0006	0.0006
Mg/wt%	0.0002	0.0002	0.0002	0.0002	0.0002
K/wt%	0.0074	0.0075	0.0075	0.0076	0.0078
Na/wt%	0.0009	0.0012	0.0011	0.0009	0.0011
FSSS/ μm	8.50	4.75	4.65	4.60	4.08
Bulk density/ $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	0.48	1.03	1.02	1.02	0.98

3 结 论

1) 含镧钼酸铵为非晶态、中空近球形颗粒, 在热分解过程中经历了 3 个阶段: 室温至 196.5 °C, 离心干燥粉发生从非晶态到晶态的转变; 196.5~337.8 °C, 铵根离子逐渐分解, 从 $(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_3\text{O}_{10} \rightarrow (\text{NH}_4)_2\text{Mo}_3\text{O}_{10+}(\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13} \rightarrow (\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13} \rightarrow (\text{NH}_4)_2\text{Mo}_4\text{O}_{13} + h\text{-MoO}_3 \rightarrow h\text{-MoO}_3$ 依次反应生成亚稳态 $h\text{-MoO}_3$; 337.8~410.1 °C, 亚稳态 $h\text{-MoO}_3$ 发生相变生成稳定 $\alpha\text{-MoO}_3$ 。

2) 含镧三氧化钼“遗传”了离心干燥制备含镧钼酸铵的形貌, 为近球形, 随着焙解温度的升高, 颗粒表面越粗糙, 破碎颗粒增多, 内部小颗粒由不规则的粘结颗粒向规则的片状转变。

3) 焙解温度对含镧三氧化钼杂质元素含量影响不

大,但随着温度升高,含镧三氧化钼的粒度和松装密度稍有减小。

参考文献 References

- [1] Li Xingyu, Zhang Lin, Wang Guanghua et al. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*[J], 2020, 92: 105294
- [2] Pitts R A, Carpentier S, Escourbiac F et al. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2011, 415(1): S957
- [3] Duan Zhengang, Yang Hui long, Satoh Yuhki et al. *Nuclear Engineering and Design*[J], 2017, 316: 131
- [4] Li An(李安), Liu Shifeng(刘世峰), Wang Bojian(王伯健) et al. *Journal of Iron and Steel Research(钢铁研究学报)*[J], 2018, 30(6): 4
- [5] Chen Yanfang(陈艳芳), Xie Jingpei(谢敬佩), Wang Aiqin(王爱琴) et al. *Powder Metallurgy Technology(粉末冶金技术)*[J], 2018, 36(5): 393
- [6] Wu Yuhang, Wu Qiong, Li Meng et al. *Additive Manufacturing*[J], 2023, 76: 103783
- [7] Wang Jingze(王敬泽), Yin Jiaqing(尹佳庆), Cui Jianwen(崔建文) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2023, 52(2): 448
- [8] Li Yan(李艳), Chen Wenshuai(陈文帅), Zhou Zenglin(周增林) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2023, 52(4): 1426
- [9] Xue Sa(薛飒), Wang Qingxiang(王庆相), Liang Shujin(梁书锦) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2023, 52(5): 1943
- [10] Zhang Mengping, Liu Chenhui, Zhu Xiongjin et al. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*[J], 2021, 167: 108550
- [11] Yang Liqun, Zhou Kechao, Li Xiaobin et al. *Inorganic Chemistry Communications*[J], 2022, 145: 110016
- [12] Xu Zhichang(徐志昌), Zhang Ping(张萍). *China Molybdenum Industry(中国钼业)*[J], 2019, 43(6): 38
- [13] Cao Huazhen, Tong Chengjian, Zhang Huibin et al. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*[J], 2019, 29(8): 1744
- [14] Yang Xiaohui, Zuo Yufei, Feng Pengfa et al. *Materials Chemistry and Physics*[J], 2023, 302: 127760
- [15] Du Shengmin(杜胜敏), Wang Qingxiang(王庆相), Zhang Shimeng(张石明) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2024, 53(1): 270
- [16] Guo Xueyi(郭学益), Guo Qiusong(郭秋松), Feng Qingming(冯庆明) et al. *Journal of Central South University (Science and Technology)(中南大学学报:自然科学版)*[J], 2010, 41(1): 60
- [17] Zhang Fei, Lu Youyu, Zhu Shaoyan et al. *Particuology*[J], 2024, 85: 280
- [18] Asep Bayu Dani Nandiyanto, Kikuo Okuyama. *Advanced Powder Technology*[J], 2011, 22(1): 1
- [19] Bastan F E, Erdogan G, Moskalewicz T et al. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2017, 724: 586
- [20] Xu Zhichang(徐志昌), Zhang Ping(张萍). *China Molybdenum Industry(中国钼业)*[J], 2005, 29(6): 36
- [21] Yang Xingbo(杨星波), Tang Huiping(汤慧萍), Zhu Jilei(朱纪磊) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2022, 51(8): 3025
- [22] Zhang Xiao(张晓), Fu Jingbo(付静波), Zhuang Fei(庄飞). *China Molybdenum Industry(中国钼业)*[J], 2015, 39(4): 50
- [23] Fan Jinglian(范景莲), Zhu Song(朱松), Liu Tao(刘涛) et al. *Powder Metallurgy Technology(粉末冶金技术)*[J], 2011, 29(1): 8
- [24] Chen Kunkun(陈昆昆), Li Linbo(李林波), Cao Qigao(操齐高) et al. *Rare Metal Materials and Engineering(稀有金属材料与工程)*[J], 2022, 51(8): 3049
- [25] Osi Arutanti, Asep Bayu Dani Nandiyanto, Takashi Ogi et al. *ACS Applied Materials & Interfaces*[J], 2015, 7(5): 3009
- [26] Agnese Stunda Zujeva, Zilgma Irbe, Liga Berzina-Cimdina. *Ceramics International*[J], 2017, 43: 11543
- [27] Thomazeau C, Martin V, Afanasiev P. *Applied Catalysis A: General*[J], 2000, 199(1): 61
- [28] Han Qiang(韩强). *China Molybdenum Industry(中国钼业)*[J], 2008, 32(2): 55
- [29] Fu Xiaoming(傅小明), Liu Zhaowen(刘照文). *Chinese Journal of Rare Metals(稀有金属)*[J], 2011, 35(1): 113
- [30] He Jiangshan(何江山), Si Longxiang(倪龙祥), Liu Tao(刘涛) et al. *China Molybdenum Industry(中国钼业)*[J], 2022, 46(5): 38
- [31] Shen Yirui, Jiang Pingping, Wang Yingchun et al. *Journal of Solid State Chemistry*[J], 2018, 264: 156
- [32] Kovács T N, Hunyadi D, De Lucena A L A et al. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*[J], 2016, 124: 1013
- [33] Fu Xiaoming(傅小明), Yang Zaizhi(杨在志), Liu Zhaowen(刘照文). *China Molybdenum Industry(中国钼业)*[J], 2011, 35(3): 30

Mechanism of Calcination of Ammonium Molybdate with Lanthanum by Centrifugal Drying Method

Zhang Xiao^{1,2,3,4}, Wang Kuaishe^{1,2}, Niu Shuai^{3,4}, Ren Baojiang^{3,4}, Liu Xuyang^{3,4}

(1. College of Metallurgical Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China)

(2. National and Local Joint Engineering Research Center for Functional Materials Processing, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China)

(3. Jinduicheng Molybdenum Co., Ltd, Xi'an 710077, China)

(4. Shaanxi "Four Bodies and One Union" University-Enterprise Joint Research Center for Advanced Molybdenum-based Functional Materials, Xi'an 710077, China)

Abstract: Ammonium molybdate with lanthanum was prepared by centrifugal drying, which was calcined to molybdenum trioxide with lanthanum. The thermal decomposition of ammonium molybdate with lanthanum in air was analyzed by XRD and TG-MS, and the morphology and physicochemical properties of molybdenum trioxide with lanthanum were studied at different calcination temperatures. The result shows that the structure of molybdenum trioxide with lanthanum is amorphous and microspheres exist with hollow space inside. There are three stages in the process of the thermal decomposition of ammonium molybdate with lanthanum. Firstly, the centrifugal drying powder changes from amorphous to crystalline state due to heat-treatment from room temperature to 196.5 °C. Secondly, the residual ammonia ion in ammonium molybdate is decomposed from 196.5 °C to 337.8 °C, and metastable molybdenum trioxide is formed. Finally, metastable $h\text{-MoO}_3$ turns into $\alpha\text{-MoO}_3$ from 337.8 to 410.1 °C. Molybdenum trioxide with lanthanum prepared at different calcined temperatures inherits the morphology of centrifugal drying powder with the increase in temperature, the surface of powder is coarser, the breakage of powder is more serious, and the internal small particles of powder change from irregular bonded state to relatively regular flake. The change of calcined temperature has little effect on the contents of the impurity elements in molybdenum trioxide with lanthanum, but with the increase in calcined temperature, the apparent density and particle size reduce slightly.

Key words: ammonium paramolybdate with lanthanum; calcination; centrifugal drying

Corresponding author: Wang Kuaishe, Ph. D., Professor, College of Metallurgical Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, P. R. China, Tel: 0086-29-82205096, E-mail: wangkuaishe888@126.com