

高渗透氧化铝陶瓷膜的制备与表征

杨茂益^{1,2*}, 陈纲领^{2#}, 唐婉琪^{1,2}, 庄月婷^{1,2}, 伏建康¹, 张千峰¹

¹安徽工业大学分子工程与应用化学研究所, 安徽 马鞍山

²滁州学院材料与化学工程学院, 安徽 滁州

收稿日期: 2025年2月20日; 录用日期: 2025年3月15日; 发布日期: 2025年3月25日

摘要

用甲基纤维素作粘结剂, 硅烷偶联剂作粘结助剂, 聚丙烯酸作分散剂, 设计了一种新涂膜液, 通过一步法浸渍涂膜, 直接在大孔管状支撑体上制备了一种无中间层氧化铝陶瓷膜, 省去了中间过渡层, 缩短了制备时间, 降低了生产成本。采用傅里叶变换红外光谱仪分析涂膜液成分的作用机理, 结果表明: 硅烷偶联剂KH-550与甲基纤维素的氢键作用使涂膜液的稳定性得到增强。通过扫描电子显微镜、比表面积与孔径、孔隙率和纯水渗透通量测试, 研究了陶瓷膜的显微结构和性能。用本研究设计的涂膜液制备的陶瓷膜, 膜层厚度约为35 μm , 平均孔半径约为0.285 μm , 纯水渗透通量高达1990 $\text{L m}^{-2} \text{h}^{-1} \text{bar}^{-1}$ 。通过一步法成功制备出无中间过渡层的陶瓷膜, 节省了制备时间和成本, 并提高了渗透通量。本研究对于低成本制备高性能陶瓷膜有一定的参考价值。

关键词

氧化铝, 陶瓷膜, 一步法, 渗透通量, 高性能

Preparation and Characterization of High Permeability Alumina Ceramic Membrane

Maozhan Yang^{1,2*}, Gangling Chen^{2#}, Wanqi Tang^{1,2}, Yueting Zhuang^{1,2}, Jiankang Fu¹, Qianfeng Zhang¹

¹Institute of Molecular Engineering and Applied Chemistry, Anhui University of Technology, Ma'anshan Anhui

²College of Materials and Chemical Engineering, Chuzhou University, Chuzhou Anhui

Received: Feb. 20th, 2025; accepted: Mar. 15th, 2025; published: Mar. 25th, 2025

Abstract

A new coating solution was designed by using methyl cellulose as binder, silane coupling agent as

*第一作者。

#通讯作者。

文章引用: 杨茂益, 陈纲领, 唐婉琪, 庄月婷, 伏建康, 张千峰. 高渗透氧化铝陶瓷膜的制备与表征[J]. 材料科学, 2025, 15(3): 484-493. DOI: 10.12677/ms.2025.153054

binder and polyacrylic acid as dispersant. A kind of alumina ceramic membrane without intermediate layer was prepared directly on the macroporous tubular support by one-step impregnation coating. The intermediate transition layer was omitted, the preparation time was shortened and the production cost was reduced. The mechanism of the composition of the coating solution was analyzed by Fourier transform infrared spectroscopy. The results showed that the hydrogen bond between silane coupling agent KH-550 and methyl cellulose enhanced the stability of the coating solution. The microstructure and properties of the ceramic membranes were studied by scanning electron microscopy, specific surface area and pore size, porosity and pure water permeation flux tests. The ceramic membrane prepared with the coating solution designed in this study has a membrane thickness of about 35 μm , an average pore radius of about 0.285 μm , and a pure water permeation flux of up to 1990 $\text{L m}^{-2} \text{h}^{-1} \text{bar}^{-1}$. The ceramic membrane without intermediate transition layer was successfully prepared by one-step method, which saved the preparation time and cost, and improved the permeation flux. This study has a certain reference value for the preparation of high-performance ceramic membranes at low cost.

Keywords

Alumina, Ceramic Membrane, One-Step Method, Permeation Flux, High-Performance

Copyright © 2025 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

传统无机陶瓷膜一般由 Al_2O_3 、 ZrO_2 、 TiO_2 和 SiO_2 等无机材料构成[1]，多应用于水处理[2] [3]、食品饮料加工[4] [5]、生物医药[6] [7]等领域。近年来也有用 SiC 材料[8] [9]生产陶瓷膜应用于气体分离[10]，碳化硅陶瓷膜在抗菌方面也有不错的表现[11]。与有机膜相比，陶瓷膜具有耐高温、耐菌、化学稳定性好和机械强度高优势，但是造价较高阻碍了它的工业化发展[12]。陶瓷膜通常具有三层结构，大孔支撑体层、过渡中间层和分离膜层，呈非对称分布。分离行为一般发生在膜层，支撑体提供机械强度，所以陶瓷膜的制备一般先在大孔支撑体上涂覆一层或多层中间过渡层，是为了防止膜层制备过程中颗粒渗透到支撑体造成堵塞，最后在中间过渡层上涂覆膜层。每一步的高温烧结都会耗费更多的时间和成本，这也是陶瓷膜造价高的主要原因之一。为了降低生产成本，近年来很多人用高岭土、粉煤灰、煤矸石、粘土等低成本材料替代传统无机材料[13]-[18]。当然去除中间过渡层也是降低陶瓷膜成本的有效方法之一，同时也有助于提高陶瓷膜的渗透通量。

秦伍等用交联的“PVA-硼酸”水凝胶层[19]和 PVB 层[20]作中间层制备了高渗透性陶瓷微滤膜。Cho 等通过去除氧化石墨烯中间层制备了无缺陷、超薄复合陶瓷中空纤维膜[21]。Zhang 等通过牺牲氧化石墨烯和十水硼砂交联后的中间层制备出了陶瓷超滤膜[11]。这些方法都是通过高温煅烧使中间层分解，从而达到去除中间层的目的。还有一些是将前驱体膜和支撑体分别制备，然后将两者粘贴在一起，通过共烧结工艺一步制备无中间层的陶瓷膜[22] [23]。然而，去除中间层还是要事先涂覆中间过渡层，过程仍然有些繁琐，转移粘贴法操作起来也并不简单。

本研究设计了一种新的涂膜液配方，用 KH-550 来偶联甲基纤维素和氧化铝[24] [25]，增强甲基纤维素粘性的同时，改善涂膜液的分散性和成膜性，从而可以一步涂膜制备出无中间层的陶瓷膜，省略了制备中间层的步骤，缩短了生产时间，降低了生产成本，也在一定程度上提高了陶瓷膜的渗透通量。用该

涂膜液浸渍涂膜, 能够更简单地制备出高通量的氧化铝陶瓷膜。对于低成本制备高性能陶瓷微滤膜具有一定的参考价值。

2. 实验方法

2.1. 制备过程

在 70℃ 的恒温条件下, 将一定量的聚丙烯酸(PAA) (99.9%)和甲基纤维素(MC) (99.9%)溶解在去离子水中, 搅拌使其充分溶解, 制成悬浮液; 停止加热, 将称量好的氧化铝(800 nm, 99.9%)加入悬浮液中, 分散均匀后加入适量硅烷偶联剂 γ -氨丙基三乙氧基硅烷(KH-550) (99%), 搅拌约四个小时, 得到均匀的涂膜液, 静置除泡。将管状多孔氧化铝支撑体, 用去离子水清洗干净, 在 100℃ 烘箱中干燥两个小时备用。采用浸渍涂膜法涂膜, 涂膜 60 s 后, 等待膜管室温干燥 1 h 后, 放入 80℃ 烘箱干燥 2 h。然后在马弗炉中升温至 1200℃ 烧结并保温 2 h, 之后自然冷却至室温, 得到氧化铝陶瓷膜。

2.2. 测试表征

本工作采用傅里叶变换红外光谱仪(FTIR; Nicolet 6700, 美国 Thermo 公司)分析涂膜液成分的作用机理; 采用 X-射线衍射仪(XRD; D8-ADVANCE, 德国布鲁克公司)测定甲基纤维素反应前后的结晶性的变化, 使用 Cu 靶, 扫描范围为 5°~35°; 采用扫描电子显微镜(SEM; JSM-6510LV, 日本电子株式会社)分析陶瓷膜的微观形貌; 采用孔径与比表面积分析仪(BET; Kubo-X1000, 北京彼奥德电子技术有限公司)分析陶瓷膜内部的孔隙结构; 采用膜孔径分析仪(BSD-PB, 北京贝士德仪器科技有限公司)用气体泡压法测定陶瓷膜的孔径分布; 采用阿基米德法测定支撑体的孔隙率(GB/T 25995-2010); 采用称重法测定涂膜前后样品纯水通量的变化。

3. 结果与讨论

3.1. 结构分析

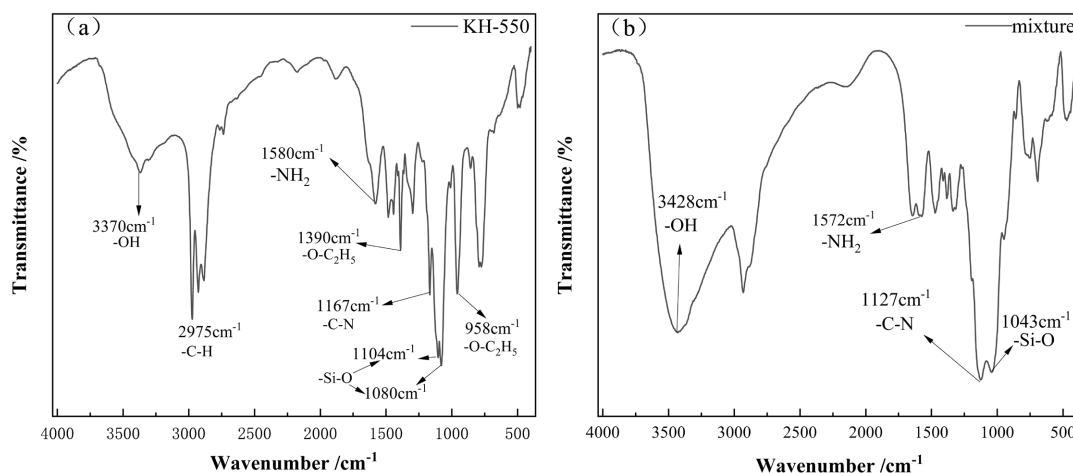


Figure 1. Infrared spectra of KH-550 and mixed solution: (a) KH-550; (b) Mixed liquid

图 1. KH-550 和混合液的红外光谱图: (a) KH-550; (b) 混合液

图 1 为硅烷偶联剂(KH-550)和混合液(MC 与 KH-550)的红外吸收光谱图。从图 1(a)可以看出, 在吸收光谱 KH-550 曲线 1167 cm^{-1} 位置可以观察到属于 C-N 键的弯曲振动峰, 在 958.2 cm^{-1} 位置出现属于 -O-C₂H₅ 的振动峰。在 1104 cm^{-1} 和 1080 cm^{-1} 观察到属于 Si-O 键的位置峰, 这可能是受化学环境变化,

致使二裂峰出现[26]。溶液混合过程中, KH-550 发生水解即 $\text{Si-O-C}_2\text{H}_5$ 变为 Si-OH , 可以发现在混合溶液的吸收光谱中 $\text{-O-C}_2\text{H}_5$ 振动峰消失。混合溶液曲线中 1127 cm^{-1} (C-N) 和 1043 cm^{-1} (Si-O) 位置略低于 KH-550 曲线中 C-N 和 Si-O 的波数位置。这是因为混合过程中, KH-550 水解后的 -OH 和甲基纤维素之间生成氢键[27] [28]。在氢键的作用下, Si-O 和 C-N 的弯曲振动峰位置向低波数移动。此外 KH-550 原有的 -NH_2 和甲基纤维素之间也能形成稳定的氢键作用力[29]。

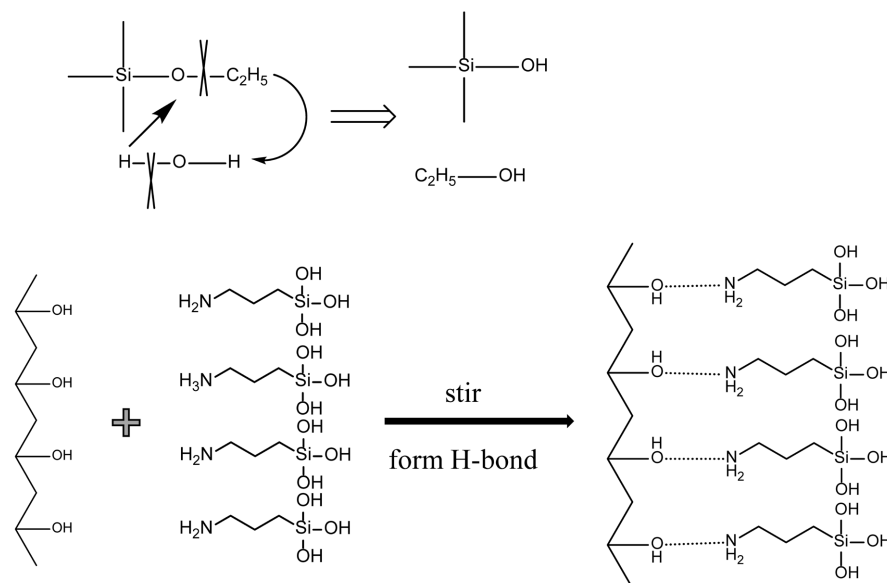


Figure 2. Schematic diagram of the reaction between methyl cellulose and KH-550

图 2. 甲基纤维素与 KH-550 反应示意图

如图 3 所示, 甲基纤维素与 KH-550 反应后, 其结晶性几乎消失[19] [30], 图 2 为甲基纤维素与 KH-550 反应示意图, 因为氢键作用形成了网状结构, 导致甲基纤维素分子旋转自由度的降低, 导致有非晶相的出现。这也与其红外分析结果一致。

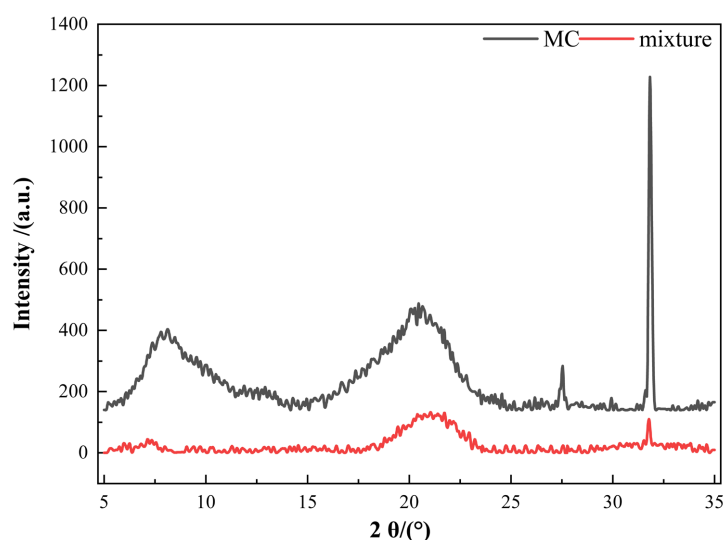


Figure 3. XRD patterns of methyl cellulose before and after reaction with KH-550

图 3. 甲基纤维素与 KH-550 反应前后的 XRD 图谱

3.2. 显微形貌分析

图 4(a)为 2000 倍下支撑体的显微形貌,可以清晰地看到支撑体的大孔结构和氧化铝颗粒,粒径约为 10~15 μm ,氧化铝颗粒之间的孔隙较大。图 4(b)~(d)显示了在 1200 $^{\circ}\text{C}$ 下烧制 2 h 的氧化铝微滤膜的表面和断面形态,图 4(b)和图 4(c)分别为 5000 倍和 500 倍下氧化铝陶瓷膜的表面显微形貌图,从图 4(b)图中可以清晰地看到膜的表面有大量的微孔,氧化铝颗粒紧密地结合在一起,图 4(c)图中可以看到膜表面平整无缺陷,说明涂膜液的成膜性能很好,浸渍涂膜比较成功,烧制出的氧化铝膜层较为完整。图 4(d)图为放大 500 倍的陶瓷膜断面 SEM 显微形貌,从图中可以很清晰地看到膜层厚度约为 35 μm ,膜层与支撑体层紧密结合,支撑体层内部的孔隙远远大于膜层的氧化铝颗粒,但却很少有成膜颗粒渗透进支撑体内部,造成堵塞。由此可见,本工艺涂膜液用来一步法制备无中间层陶瓷微滤膜的可行性。

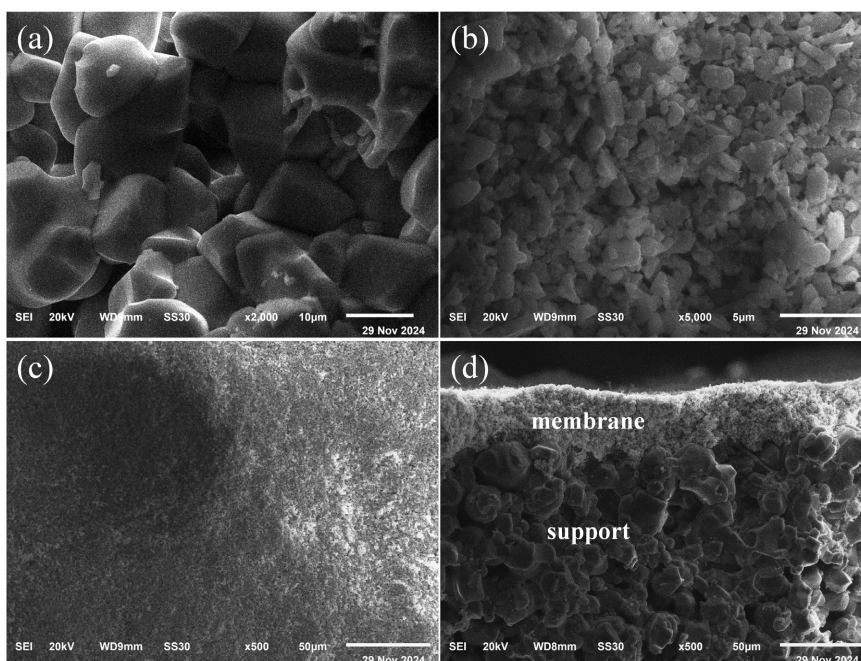


Figure 4. SEM micrographs of the support and ceramic membrane: (a) cross-sectional morphology of the support, 2000 $\times$; (b) Surface morphology of ceramic film, 5000 $\times$; (c) Surface morphology of ceramic film, 500 $\times$; (d) Ceramic membrane cross-sectional morphology diagram, 500 $\times$

图 4. 支撑体和陶瓷膜的 SEM 显微形貌图: (a) 支撑体断面形貌图, 2000 $\times$; (b) 陶瓷膜表面形貌图, 5000 $\times$; (c) 陶瓷膜表面形貌图, 500 $\times$; (d) 陶瓷膜断面形貌图, 500 $\times$

3.3. 比表面积与孔径分析

如图 5(a1), (a2)所示, 氮气吸附-脱附等温线呈现出典型的 IV 型特征, 说明支撑体具有中孔结构。值得注意的是, 在吸附与脱附曲线之间, 存在一个清晰的滞后环, 这反映了孔道中存在着毛细管冷凝效应。

当涂膜处理后, 可以观察到以下变化: 首先, 吸附量整体呈现下降趋势; 其次, 滞后环的尺寸有所减小。这两个现象共同表明, 涂膜过程减少了材料表面可接触的孔道数量, 或者导致了孔径的变窄。

从孔面积曲线(图 5(b1), (b2))可以看出, 支撑体的孔面积分布主要集中在较小的孔径范围内(小于 10 nm)。涂膜后, 大孔径范围内的孔面积显著减少, 这进一步说明了涂膜过程覆盖了部分大孔, 特别是膜层与支撑体结合部位的大孔。

孔体积曲线(图 5(c1), (c2))可以看出, 支撑体原本的总孔体积相对较大。然而, 在涂膜处理后, 孔体

积显著降低，特别是在小孔径范围内的减少更为明显。这一现象说明膜层的总体积远小于支撑体的总体积，膜层中的氧化铝颗粒结合得更为紧密。此外，由于膜层所使用的氧化铝颗粒粒径远小于支撑体的颗粒粒径，这也导致了孔体积的显著变化。

表 1 详细列出了支撑体和陶瓷膜的定量氮吸附数据。从中，我们可以得出以下结论：比表面积的增加、孔体积的降低以及平均孔半径的减小，这些都是膜层存在的直接证据。同时，这些变化也表明膜层结构更为致密，孔隙更小。

综上所述，涂膜引起比表面积、孔体积和孔径分布的综合变化可能来源于以下因素：

- 1) 涂膜覆盖支撑体表面，降低了孔隙的可及性。
- 2) 涂膜可能填充了部分中孔或大孔，导致孔径减小。
- 3) 涂膜材料本身可能引入了较少的新孔隙。

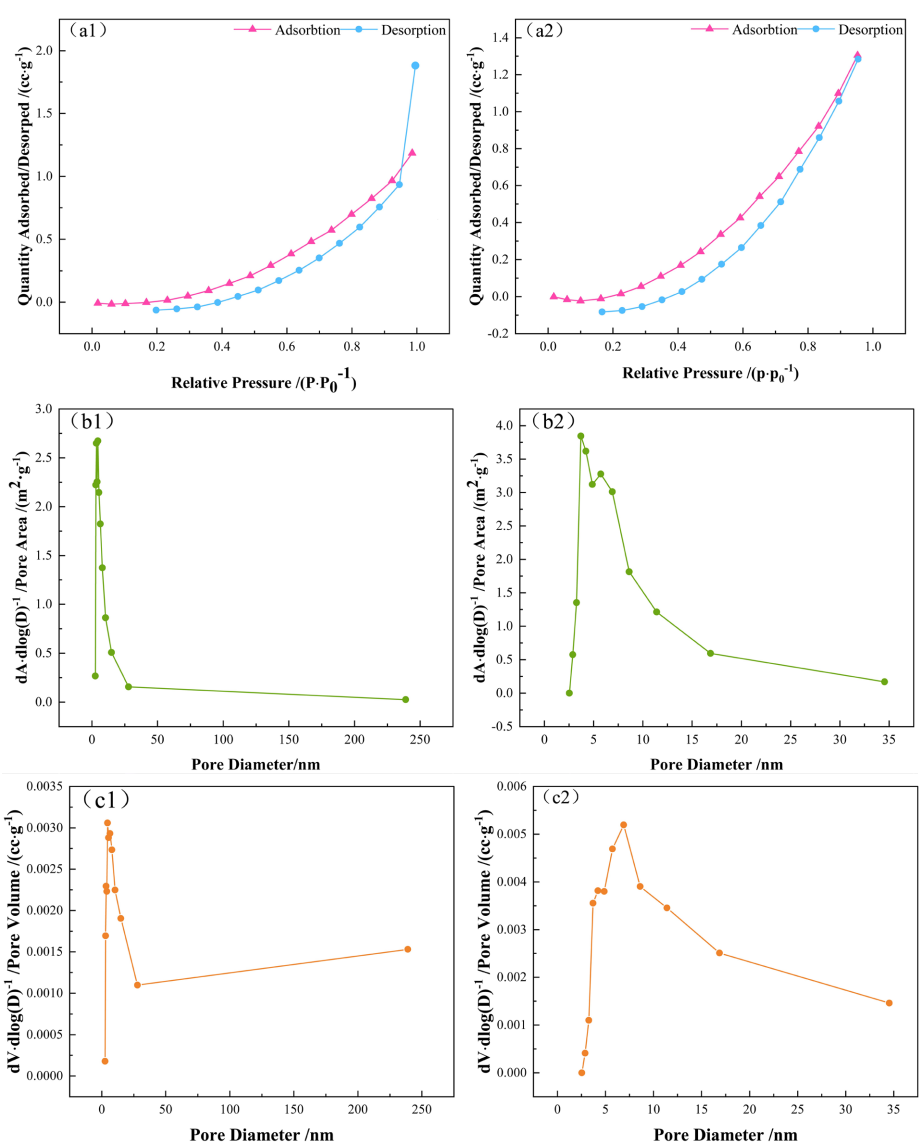
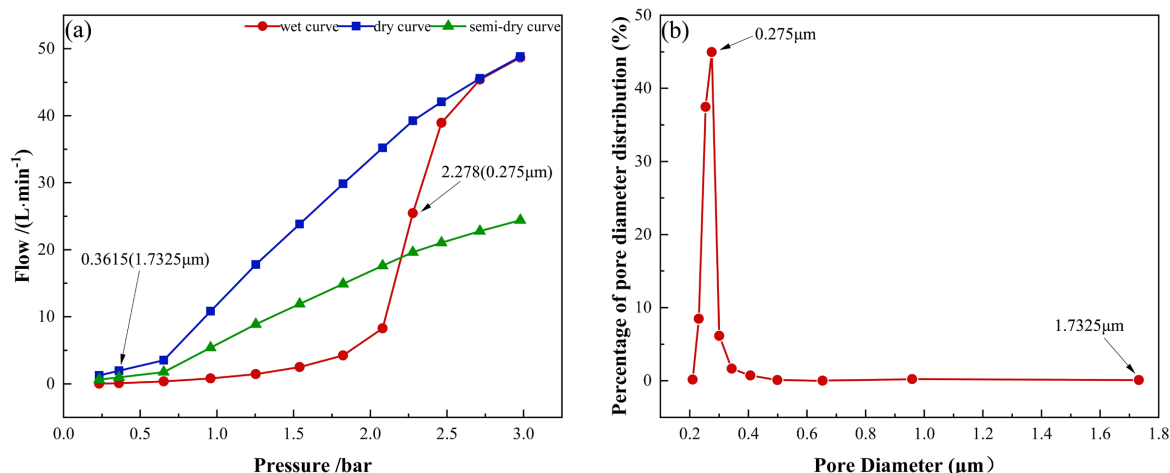


Figure 5. BET analysis: (a) adsorption and desorption isotherms, (b) pore volume distribution, (c) pore area distribution; (1) Support body, (2) ceramic film
图 5. BET 分析: (a) 吸附和脱附等温线, (b) 孔体积分布, (c) 孔面积分布; (1) 支撑体, (2) 陶瓷膜

Table 1. Quantitative nitrogen adsorption data of support and ceramic membrane**表 1.** 支撑体和陶瓷膜的定量氮吸附数据

Component	PA/(m ² ·g ⁻¹)	PV/(cc·g ⁻¹)	MPR/(μm)
Support	2.7925	0.009527	2.5
Membrane	3.8115	0.006943	0.285

**Figure 6.** (a) Flow pressure curve; (b) Aperture distribution curve**图 6.** (a) 流量压力曲线; (b) 孔径分布曲线

在 25℃ 下, 采用气体泡压法测量涂膜后陶瓷膜的孔径分布, 如图 6(a) 所示。当压力升至 0.3615 bar 时, 检测到泡点, 此时对应的孔径为 1.7325 μm, 为最大孔径。随着压力继续增加, 氮气逐渐打开更多湿孔, 导致流量迅速上升。当压力达到 2.278 bar 时, 最可几孔径减小至 0.275 μm (见图 6(b))。待所有孔打开后, 氮气流量随压力呈线性增长, 这符合 Hagen-Poiseuille 方程的描述。从图中还可以看出, 孔径多集中在 0.2 μm~0.3 μm 之间。

3.4. 孔隙率与纯水通量

孔隙率用阿基米德法测量, 分别测量样品的干重(m_0)、饱和样品的悬浮重(m_1)和湿重(m_2), 利用公式 (1) 来计算孔隙率 P , 测得孔隙率为 26.8%。

$$P = \frac{m_2 - m_0}{m_2 - m_1} \quad (1)$$

为了准确测量纯水通量的变化, 本实验室专门设计了一种测试装置(见图 7), 该装置可以有效地测量支撑体与陶瓷膜在涂膜前后的纯水通量差异。陶瓷膜的有效表面积为 $2.42 \times 10^{-2} \text{ m}^2$, 测试在 0.1 至 0.5 MPa 的压力范围内进行。测试装置由料液罐、氮气瓶、压力表、膜组件和阀门等关键部件组成, 所有部件均通过密封圈紧密固定, 确保测试过程中不会出现漏气或泄压的情况。氮气瓶作为压力源, 提供了稳定且可调节的压力。测试开始前, 先在料液罐中加入约 2/3 容量的去离子水。随后, 调节氮气瓶的气压, 当装置中有第一滴水滴下时立即开始计时, 并同时记录天平的读数。

使用公式(2)测量膜的纯水渗透通量:

$$J = \frac{V}{A \cdot t} \quad (2)$$

其中 V 、 A 和 t 分别为纯水的体积(L)、有效膜面积(m^2)和渗透时间(h)。

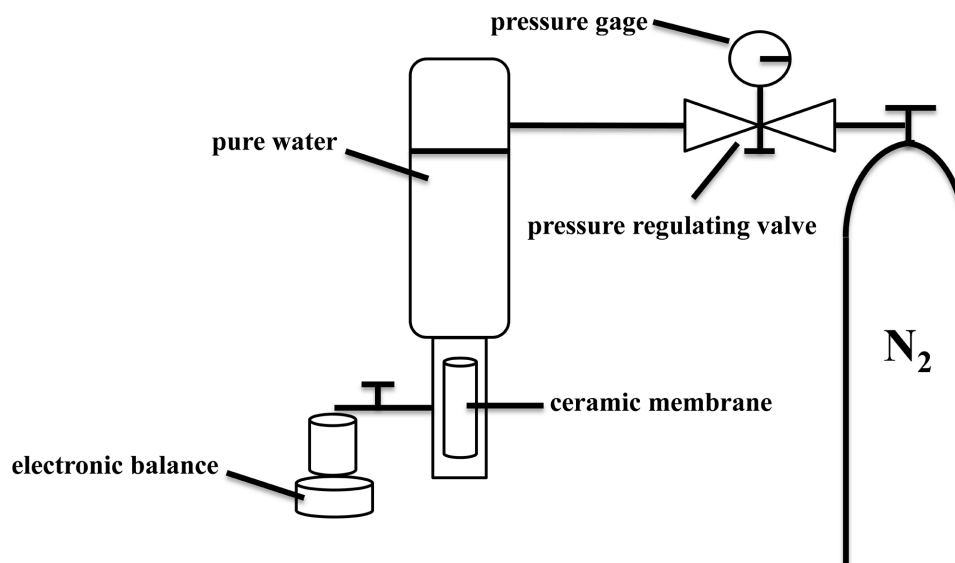


Figure 7. Schematic diagram of pure water flux testing device
图 7. 纯水通量测试装置示意图

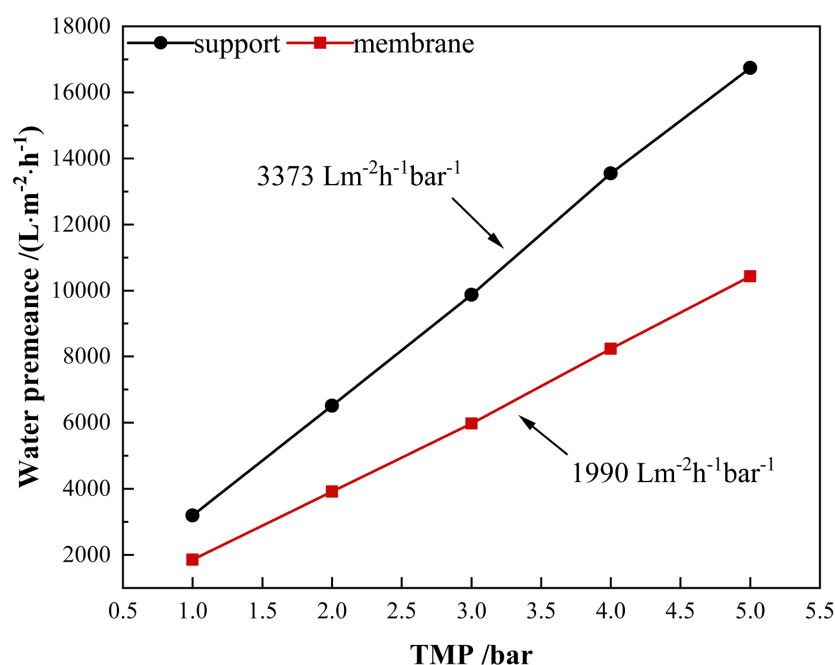


Figure 8. Pure water flux of support and ceramic membrane
图 8. 支撑体和陶瓷膜的纯水通量

如图 8 所示, 经过测试, 支撑体管子的纯水通量为 $3373 \text{ L m}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ bar}^{-1}$, 涂膜后陶瓷膜的纯水通量为 $1990 \text{ L m}^{-2} \text{ h}^{-1} \text{ bar}^{-1}$ 。因为膜层孔径和孔隙小于支撑体, 导致纯水通量比涂膜前略有降低, 但也远远高于其他传统陶瓷膜, 除了支撑体通量高的原因之外, 最主要的原因是涂膜液优异的成膜性能, 使其可以直接在大孔支撑体上成膜, 无需中间层, 大大降低了过滤阻力, 从而提高陶瓷膜的渗透通量。

4. 结论

本研究采用一种新的涂膜液配方,并通过傅里叶变换红外光谱仪和 X-射线衍射仪分析了涂膜液的作用机理,发现在 KH-550 硅烷偶联剂与甲基纤维素两者的氢键作用下,甲基纤维素的粘性和分散性得到增强。同时,KH-550 又可以偶联甲基纤维素和氧化铝颗粒,使配制出的涂膜液具有良好的稳定性和成膜性,使膜层较小的氧化铝颗粒无法渗透到大孔支撑体。从而可以一步涂膜制备出无中间层的陶瓷膜,膜层和支撑体层紧密结合,两者界限清晰可见。膜层厚度约为 35 μm ,平均孔半径约为 0.285 μm ,纯水渗透通量高达 1990 $\text{L m}^{-2} \text{h}^{-1} \text{bar}^{-1}$ 。烧制的陶瓷膜无中间过渡层,大大降低了纯水的过滤阻力,从而使陶瓷膜的纯水通量远高于其他传统工艺制备的陶瓷膜。

基金项目

安徽省教育厅自然科学重点研究项目(2024AH051397);“双创之星”产业创新团队-新型膜材料关键技术研究(00002606)。

参考文献

- [1] Zhang, C., Yuan, R., Chen, H., Zhou, B., Cui, Z. and Zhu, B. (2024) Advancements in Inorganic Membrane Filtration Coupled with Advanced Oxidation Processes for Wastewater Treatment. *Molecules*, **29**, Article No. 4267. <https://doi.org/10.3390/molecules29174267>
- [2] Lin, Z., Liu, L., Zhang, C., Su, P., Zhang, X., Li, X., *et al.* (2024) Emerging Conductive Ceramic Membranes for Water Purification and Membrane Fouling Mitigation. *Chemical Engineering Journal*, **493**, Article ID: 152474. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2024.152474>
- [3] Satyanarayana, K.V.V., Singh, R., Rani, S.L.S., Sreekanth, M., Raja, V.K. and Ahn, Y. (2024) A Paradigm Assessment of Low-Cost Ceramic Membranes: Raw Materials, Fabrication Techniques, Cost Analysis, Environment Impact, Wastewater Treatment, Fouling, and Future Prospects. *Journal of Water Process Engineering*, **68**, Article ID: 106430. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2024.106430>
- [4] Hang, F., Xu, H., Xie, C., Li, K., Wen, T. and Meng, L. (2024) Pretreatment of Glucose-Fructose Syrup with Ceramic Membrane Ultrafiltration Coupled with Activated Carbon. *Membranes*, **14**, Article No. 57. <https://doi.org/10.3390/membranes14030057>
- [5] Satyanarayana, K.V.V., Kumar, R.V., Mathaji, C.B., Singh, R., Ahn, Y. and Chen, S. (2023) Ceramic Membranes for Citrus Fruit Juice Clarification: A Systematic Review. *ChemBioEng Reviews*, **10**, 737-755. <https://doi.org/10.1002/cben.202200048>
- [6] Zhao, T., Liu, X., Huai, L., Feng, R., Yan, T., Xu, W., *et al.* (2024) Fabrication of the $\text{TiO}_2/\text{Ti}_3\text{C}_2$ Loaded Ceramic Membrane Targeting for Photocatalytic Degradation of PPCPS: Ciprofloxacin, Tetracycline, and Ibuprofen. *Frontiers of Environmental Science & Engineering*, **18**, Article No. 123. <https://doi.org/10.1007/s11783-024-1883-5>
- [7] Kamgang-Syapnjeu, P., Njoya, D., Kameu, E., Balme, S., Bechelany, M. and Soussan, L. (2022) Bio-Based Ceramic Membranes for Bacteria Removal from Water. *Membranes*, **12**, Article No. 901. <https://doi.org/10.3390/membranes12090901>
- [8] Miao, K., Song, Y., Guan, K., Liu, J., Matsuyama, H., Zou, D., *et al.* (2024) Robust Hydrophobic Ceramic Membrane for High-Salinity Wastewater Separation via Membrane Distillation. *Desalination*, **592**, Article ID: 118091. <https://doi.org/10.1016/j.desal.2024.118091>
- [9] Han, Y., Zou, D., Kang, Y., Zhong, Z. and Xing, W. (2024) One-Step Sintering Process for High-Performance Sic Membranes for Efficient Filtration of Dust-Laden Gas. *Journal of Membrane Science*, **692**, Article ID: 122265. <https://doi.org/10.1016/j.memsci.2023.122265>
- [10] Wang, Q., Zhou, R. and Tsuru, T. (2022) Recent Progress in Silicon Carbide-Based Membranes for Gas Separation. *Membranes*, **12**, Article No. 1255. <https://doi.org/10.3390/membranes12121255>
- [11] Zhang, N., Dong, H., Wang, Y., Yuan, C., Wang, R., Sun, H., *et al.* (2024) Sacrificial GO-BD Interlayer for High Performance Ceramic Ultrafiltration Membrane. *Materials Today Communications*, **38**, Article ID: 107730. <https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2023.107730>
- [12] Yin, Y., Wang, M., Shi, Y. and Zhang, H. (2023) Midcourse Correction of Earth-Moon Distant Retrograde Orbit Transfer Trajectories Based on High-Order State Transition Tensors. *Astrodynamics*, **7**, 335-349. <https://doi.org/10.1007/s42064-023-0162-8>

- [13] Agarwalla, A. and Mohanty, K. (2024) Fabrication and Characterization of Low-Cost Kaolin Based Tubular Ceramic Membrane for Microalgal Harvesting. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, **12**, Article ID: 112089. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2024.112089>
- [14] Sawunyama, L., Oyewo, O.A., Bopape, M.F. and Onwudiwe, D.C. (2024) Fabrication and Characterization of Low-Cost Ceramic Membranes from Coal Fly Ash and Natural Sand. *Sustainable Chemistry for the Environment*, **8**, Article ID: 100165. <https://doi.org/10.1016/j.sccenv.2024.100165>
- [15] Saxena, A.K.S., Soni, A.B. and Jayapal, A. (2024) Optimization of Ceramic Membrane Fabricated from Coal Flyash Blended with Natural Clay for Separation of Kraft Lignin from Aqueous Solutions. *Biomass Conversion and Biorefinery*. <https://doi.org/10.1007/s13399-024-05876-9>
- [16] Gao, J., Yan, Z., Wang, B., Ma, Z. and Guo, Y. (2024) Preparation of Whisker Mullite Ceramic Membrane from Coal Fly Ash for Efficient Oil-Water Separation. *Ceramics International*, **50**, 32727-32736. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2024.06.082>
- [17] Liu, K., Zhang, M., Li, M. and Tong, Z. (2024) Preparation and Application of Microfiltration Porous Coal Gangue-loess-Based Ceramic Membrane. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, **21**, 1941-1953. <https://doi.org/10.1111/ijac.14649>
- [18] Boutaleb, M., Tabit, K., Mansori, M., Saâdi, L. and Waqif, M. (2024) Development of Low-Cost Clayey Ceramic Filtering Membrane with Controllable Porosity and High Mechanical Strength. *Ceramics International*, **50**, 32771-32782. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2024.06.087>
- [19] 秦伍, 张翼. 预封孔法制备高渗透性陶瓷微滤膜[J]. 中国陶瓷, 2022, 58(1): 20-28.
- [20] Qin, W., Zhang, Y. and Wu, J. (2020) Preparation of High-Permeance Ceramic Microfiltration Membranes Using a Pore-Sealing Method. *RSC Advances*, **10**, 5560-5565. <https://doi.org/10.1039/c9ra09805d>
- [21] Cho, Y.H., Jeong, S., Kim, S., Kim, Y., Lee, H.J., Lee, T.H., *et al.* (2021) Sacrificial Graphene Oxide Interlayer for Highly Permeable Ceramic Thin Film Composite Membranes. *Journal of Membrane Science*, **618**, Article ID: 118442. <https://doi.org/10.1016/j.memsci.2020.118442>
- [22] Yin, X., Guan, K., Gao, P., Peng, C. and Wu, J. (2018) A Preparation Method for the Highly Permeable Ceramic Microfiltration Membrane-Precursor Film Firing Method. *RSC Advances*, **8**, 2906-2914. <https://doi.org/10.1039/c7ra12314k>
- [23] Zhu, W., Liu, Y., Guan, K., Peng, C., Qiu, W. and Wu, J. (2019) Integrated Preparation of Alumina Microfiltration Membrane with Super Permeability and High Selectivity. *Journal of the European Ceramic Society*, **39**, 1316-1323. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2018.10.022>
- [24] Cheng, F., Yu, S., Zhao, C., Guo, Q., Shao, Z. and Lyu, S. (2023) Properties of Cellulose/Polypropylene Nanocomposites Modified by KH550 Silane Coupling Agent. *Journal of Physics: Conference Series*, **2553**, Article ID: 012002. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/2553/1/012002>
- [25] Derakhshani, K., Alimohammadi, M. and Eslami-Farsani, R. (2024) The Mechanical Behavior of Silane-Modified Nano-Al₂O₃/Basalt Fiber/Polymer Composite Materials. *Journal of Materials Science*, **59**, 15270-15282. <https://doi.org/10.1007/s10853-024-10080-1>
- [26] Tang, S., Chen, Z., Chen, F., Lai, X., Wei, Q., Chen, X., *et al.* (2023) Extraction and Surface Functionalization of Cellulose Nanocrystals from Sugarcane Bagasse. *Molecules*, **28**, Article No. 5444. <https://doi.org/10.3390/molecules28145444>
- [27] 周志刚. 硅烷偶联剂的水解工艺研究[J]. 石化技术, 2022, 29(4): 220-221.
- [28] 董金美, 李颖, 文静, 等. KH550 硅烷偶联剂的水解工艺研究[J]. 盐湖研究, 2020, 28(3): 28-33.
- [29] 张旭, 闫玥儿, 唐颐. 纸张脱酸中硅烷偶联剂与纤维素的相互作用研究[J]. 复旦学报(自然科学版), 2022, 61(5): 598-607.
- [30] Spoljaric, S., Salminen, A., Luong, N.D. and Seppälä, J. (2014) Stable, Self-Healing Hydrogels from Nanofibrillated Cellulose, Poly(vinyl Alcohol) and Borax via Reversible Crosslinking. *European Polymer Journal*, **56**, 105-117. <https://doi.org/10.1016/j.eurpolymj.2014.03.009>