

粉煤灰中非晶态硅赋存形态及定量分析方法研究

张建波^{1,2}, 李占兵^{1,2}, 杨晨年^{1,2}, 李少鹏^{1,2}, 李会泉^{1,2,3}

(1. 中国科学院 过程工程研究所 中国科学院绿色过程与工程重点实验室, 北京 100190; 2. 湿法冶金清洁生产技术国家工程实验室, 北京 100190; 3. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要:粉煤灰作为大型煤电基地的重要固体废弃物,年排放量超过6亿t,目前利用率仅为60%左右,大部分粉煤灰以堆存为主,造成严重污染,其资源化利用意义重大。以山西、内蒙古等大型能源基地产生的高铝粉煤灰为例,通过基础物性分析发现,粉煤灰中主要包括铝、硅、铁、钙等主量元素,主要以莫来石相、非晶相、铁质微珠相三类矿相形式赋存,其中莫来石相结构稳定,非晶相铝硅酸盐反应活性较高,但其配位结构复杂,反应活性不一。目前针对其丰富的铝硅资源,氧化铝提取和铝硅复合材料制备是主要高值化研究方向,其中非晶相硅的深度脱除是关键处理技术。针对非晶相硅的赋存形态及定量分析,首先采用核磁分析结合电子探针手段,明确非晶相中铝硅酸盐赋存结构复杂,其中硅原子主要以 $Q^4(4Al)$ 、 $Q^4(3Al)$ 、 $Q^4(2Al)$ 、 $Q^4(0Al)$ 、 $Q^2(1Al)$ 五种配位结构形式存在,其中 $Q^4(0Al)$ 含量高达56.5%;其次采用酸碱联合法,通过逐步削弱铝氧硅沸石自发反应可能性,选择性分离活性铝,促进活性作用位点大量暴露,从而实现非晶态铝硅酸盐的逐步梯级分离,进一步通过ICP、XRF、XRD、扫描电镜、电子探针等分析表征,明确莫来石晶相与铝硅酸盐非晶相之间的高效分离,并开展了2组平行试验,试验结果误差较小。结果表明:非晶相中硅含量为57%~58%,非晶相“鼓包峰”消失,其包裹的莫来石晶粒结构显现,证明非晶相二氧化硅得到高效脱除。该方法具有反应条件温和、误差小、操作弹性大等优点,对粉煤灰铝硅资源高值转化利用具有重要的指导意义。

关键词:粉煤灰;赋存状态;定量分析;非晶相二氧化硅;深度脱硅

中图分类号:TQ536;TQ133.1

文献标志码:A

文章编号:1006-6772(2019)03-0116-06

Investigation on the occurrence morphology and quantitative analysis of amorphous silicon in coal fly ash

ZHANG Jianbo^{1,2}, LI Zhanbing^{1,2}, YANG Chennian^{1,2}, LI Shaopeng^{1,2}, LI Huiquan^{1,2,3}

(1. CAS Key Laboratory of Green Process and Engineering, Institute of Process Engineering, Chinese Academy of Science, Beijing 100190, China;

2. National Engineering Laboratory for Hydrometallurgical Cleaner Production Technology, Beijing 100190, China;

3. Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Coal fly ash is regarded as the important solid waste in the large coal power base, and above 600 million tons coal fly ash is generated annually. The utilization ratio is only 60% approximately, the most of fly ash is mainly stored in piles, which can cause serious environmental problems, and its resource utilization is of great significance. In this paper, the high alumina coal fly ash (HAF) generated in Shanxi and the north of Inner Mongolia was adopted and researched. The basic physical property analysis shows that aluminum, silicon, iron, calcium are the main elements in the coal fly ash, which are in the form of mullite, amorphous silica and ferruginous spheres. Mullite is a stable phase. The reactivity of amorphous phase aluminum silicate is high, but its coordination structure is complex and the reactivity is different. Nowadays, in terms of its abundant aluminum/silicon resources, the main high-value research directions focus on the extraction of alumina and preparation of aluminum-silicon composite, in which the removal of amorphous silica is the key processing tech-

收稿日期:2019-04-01;责任编辑:白娅娜 DOI:10.13226/j.issn.1006-6772.19040101

基金项目:国家自然科学基金青年基金资助项目(51804293);国家自然科学基金联合基金重点资助项目(U1810205);山西省科技重大专项资助项目(20181102017, MC2016-05)

作者简介:张建波(1987—),男,山东烟台人,助理研究员,从事大宗工业/冶金固废资源高值转化利用及粉体改性重构研究。

E-mail: zhangjianbo@ipe.ac.cn

引用格式:张建波,李占兵,杨晨年,等.粉煤灰中非晶态硅赋存形态及定量分析方法研究[J].洁净煤技术,2019,25(3):116-121.

ZHANG Jianbo, LI Zhanbing, YANG Chennian, et al. Investigation on the occurrence morphology and quantitative analysis of amorphous silicon in coal fly ash[J]. Clean Coal Technology, 2019, 25(3): 116-121.



移动阅读

nology. In view of the occurrence morphology and quantitative analysis of amorphous silicon, firstly, the NMR analysis combined with EP-MA was used to determine the complex structure of aluminium-silicate in amorphous phase. The silicon atoms mainly exist in five coordination structures: $Q^4(4Al)/Q^4(3Al)/Q^4(2Al)/Q^4(0Al)/Q^2(1Al)$, and the content of $Q^4(0Al)$ is occupied about 56.5% in the amorphous phase. Secondly, by means of acid-base combination method, the possibility of spontaneous reaction in alumina-silica zeolite was gradually weakened, active aluminium was selectively separated, and the active sites were exposed in large quantities, so as to realize the step-by-step separation of amorphous aluminium-silicate. Further, the efficient separation between mullite crystalline phase and aluminium-silicate amorphous phase was identified by ICP, XRF, XRD, SEM and EPMA. Two groups of parallel experiments were carried out, and the error of the test results was small. The results indicate that the content of silicon in amorphous phase is 57% -58%. The "bulging peak" of amorphous silica has disappeared, the grain structure of mullite enwrapped by the amorphous silica is exposed, which proves that amorphous silicon dioxide can be removed efficiently. There are three advantages of mild experimental conditions, minor error and wide operating flexibility, which provides an important guiding significance for high value conversion and utilization of fly ash aluminium-silicon resources.

Key words: coal fly ash; occurrence state; quantitative analysis; amorphous silica; deep desilication

0 引 言

我国煤炭年开采量高达 30 亿 t 以上,主要用于燃煤发电和煤化工生产过程,其中燃煤发电比例超过 60%,年排放粉煤灰高达 5 亿 t 以上,主要用于建工建材、混凝土、水泥等^[1-3],综合利用率仅为 70% 左右,累计堆存量高达数十亿吨^[4]。随着我国基础设施建设日趋完善,建设速度放缓,建材化利用等方向日趋饱和^[5]。粉煤灰中含有丰富的铝硅铁等资源,主要以非晶相铝硅酸盐、莫来石、刚玉相、铁质微珠相形式存在^[3]。目前主要以氧化铝提取^[6-8]、氧化硅提取^[9]、莫来石基产品制备^[10-11]、陶瓷制备^[12-13]、轻质聚合物制备^[14]等高值化利用方式为主,为粉煤灰综合高值转化利用提供新方向,富硅非晶相高效分离是其高值化利用的关键^[15]。因此,非晶相中硅组分的赋存形态及其定量分析研究对粉煤灰铝硅资源高值转化具有重要的指导意义。

非晶相硅定量分析分析主要包括 XRD 精修半定量分析法、氢氟酸溶解法、碱脱硅方法。XRD 精修半定量分析法主要是将样品与 10% ZnO 充分混合进行 XRD 分析,并以其为基准,对晶相谱峰进行精修,得到晶相总含量,从而计算得到非晶相含量^[16-17]。氢氟酸溶解法作为矿相定量分析的常用

方法,基于非晶相与晶相反应活性的差异性及氢氟酸的强酸性特点,氢氟酸与非晶相硅反应生成氟化硅以气相形式与固体分离,莫来石及刚玉相与氢氟酸基本不反应,但该方法会导致部分发育不完善晶体反应,使定量分析不准确^[18-19]。碱法脱硅是利用非晶相易与碱反应的原理,通过脱硅实现非晶相硅的高效分离^[20-22],但该方法存在沸石副反应发生严重^[23-24]、惰性非晶相硅分解不完全^[26]等问题。

针对上述问题,本文首先通过 XRD 及 NMR 分析测定非晶相硅的赋存形态,基于此,进一步提出了一种碱-酸-碱-酸-碱联合法,通过温和酸碱介质逐步剥离非晶相硅,从而精确分析了非晶相硅含量。并通过 XRD 矿相分析及 SEM 形貌分析验证了非晶相的高效剥离。该方法较传统分析方法具有分析误差小、操作弹性大、反应条件温和等特点,对其高值化利用具有重要的指导意义。

1 试 验

1.1 试验原料

试验所用粉煤灰来自内蒙古鄂尔多斯某燃煤电厂,其组成见表 1。试验过程中所使用的盐酸来自于北京化工厂,含量在 36% ~ 38%,氢氧化钠来自于北京化工厂,含量大于 96%。

表 1 粉煤灰化学组成
Table 1 Chemical compositions of coal fly ash

组成	Al ₂ O ₃	SiO ₂	Fe ₂ O ₃	CaO	Na ₂ O	MgO	TiO ₂	LOI
含量/%	50.64	40.21	1.97	2.51	0	0	3.27	2.78

1.2 试验过程及方法

酸碱联合法主要包括预脱硅(1T)、酸活化(1A)、二次脱硅(2T)、二次酸活化(2A)、三次脱硅

(3T)。

预脱硅过程:粉煤灰与 20% 氢氧化钠溶液进行混合,在温度 $T=95\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、液固比 $L/S=3:1$ 条件下反

应1.5 h,反应结束后进行过滤-洗涤分离,滤液及洗液混合体积记为 V_1 ,其硅浓度记为 C_1 ,得到的脱硅粉煤灰用于酸活化过程。

酸活化过程:脱硅粉煤灰与质量分数10%的盐酸溶液充分混合,在 $T=65\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $L/S=4:1$ 条件下反应1 h,反应结束后进行过滤-洗涤分离,滤液及洗液混合体积记为 V_2 ,其硅浓度记为 C_2 ,得到的活化粉煤灰用于第2次脱硅过程。

二次脱硅过程:活化粉煤灰与质量分数12%的氢氧化钠溶液充分混合,在 $T=80\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $L/S=5:1$ 条件下反应0.5 h,反应结束后进行过滤-洗涤分离,滤液及洗液混合体积记为 V_3 ,其硅浓度记为 C_3 ,得到的二次脱硅粉煤灰用于第2次酸活化过程。

二次酸活化过程:二次脱硅粉煤灰与质量分数10%的盐酸溶液充分混合,在 $T=75\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $L/S=4:1$ 条件下反应1 h,反应结束后进行过滤-洗涤分离,滤液及洗液混合体积记为 V_4 ,其硅浓度记为 C_4 ,得到的二次活化粉煤灰用于第3次脱硅过程。

三次脱硅过程:活化粉煤灰与质量分数12%的氢氧化钠溶液充分混合,在 $T=80\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $L/S=5:1$ 条件下反应0.5 h,反应结束后进行过滤-洗涤分离,滤液及洗液混合体积记为 V_5 ,其硅浓度记为 C_5 ,得到的最终脱硅滤饼。

上述试验重复2次,保证试验结果的准确性。

1.3 试验仪器

核磁分析仪(NMR),X射线荧光光谱仪(XRF),电感耦合等离子体发射光谱元素分析仪(ICP-Avio200),扫描电镜(SEM),X射线衍射仪(XRD),恒温水浴锅,电热鼓风干燥箱,循环水式真空泵,电动搅拌器(D2010W),电子天平(Mettler AE163)。

2 结果与讨论

2.1 粉煤灰中元素赋存形态

粉煤灰中不同元素的赋存形态对非晶相硅的高

效分离具有重要作用,本文将从矿相构成、形貌、赋存形态、铝硅价键配位结构等方面进行深入讨论。

2.1.1 粉煤灰矿相分析

粉煤灰经高温燃烧-急速冷却过程形成(图1),主要存在晶相和非晶相两大类矿相。其中晶相主要是在 $1\text{ }100\text{ }^{\circ}\text{C}$ 条件下,煤炭中无机铝硅组分熔融,形成稳定的莫来石矿相,部分氧化铝转化为稳定的刚玉相;在粉煤灰排放过程中,粉煤灰颗粒遇冷急速收缩,形成非晶相,包括玻璃体铝硅酸盐和非晶态二氧化硅2部分,其中非晶相部分为富硅相,且反应活性较高,实现高效分离意义重大。

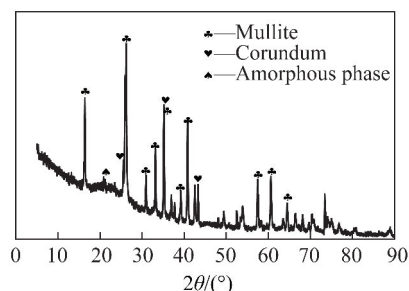


图1 粉煤灰矿相构成分析

Fig. 1 Analysis of mineral phase of coal fly ash

2.1.2 粉煤灰形貌及元素分布

粉煤灰颗粒形貌及铝硅元素分布如图2所示,粉煤灰中颗粒多以球形与不规则颗粒形式存在,颗粒之间弥散分布,主要是由于煤粉颗粒在煤粉炉与氧气充分燃烧后,有机物转化为能源,无机物则在排放过程中遇冷急速冷却收缩,表面张力原因导致生成大量球形颗粒。粉煤灰中颗粒组成多以铝硅元素为主,且铝硅元素重合叠加区域较多,说明该重合区域为铝硅酸盐。结合图1分析,粉煤灰中以铝硅元素为主体形成的矿相主要为非晶相铝硅酸盐和莫来石相两类矿相,因此,可以推断粉煤灰中莫来石晶体与非晶相铝硅酸盐相互之间嵌黏包裹,主要是由于冷却过程煤粉颗粒中大量含硅矿物结晶不完善,与晶体颗粒形成熔融体,复杂的矿物赋存结构导致非晶相难以直接高效分离。

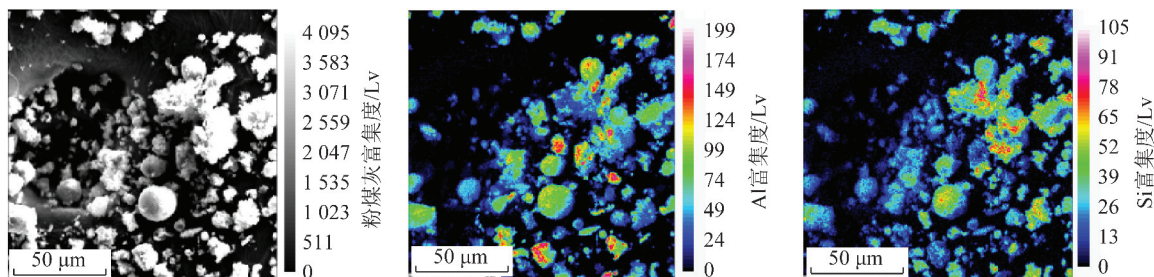


图2 粉煤灰形貌及元素分布

Fig. 2 Morphology and elements distribution in HAFB

2.1.3 粉煤灰形貌及元素分布

粉煤灰中铝硅配位结构复杂,其中 -79×10^{-6} 、 -87×10^{-6} 、 -93×10^{-6} 、 -96×10^{-6} 和 -108×10^{-6} 代表5种不同铝硅配位体的结构,其中 -108×10^{-6} 峰处是 $Q^4(0Al)$ 峰位,表示该配位体重硅氧键结构周围连接4个以硅原子为主体形成的空间网格链的四面体,其主要赋存的矿相为石英相和非晶相 SiO_2 ,而图1矿相构成分析中粉煤灰中石英相峰位未检测出,因此可推断该峰主要是非晶态 SiO_2 峰,结构排列无序,反应活性较高。 -87×10^{-6} 处为 $Q^4(4Al)$ 峰位,表示铝硅酸盐矿相中硅氧配位键周围连接4个以铝原子为主体的配位结构,结合其矿相构成可分析,粉煤灰中主要赋存矿相为稳定的莫来石相($3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$),形成以铝氧硅配位结构为主体的稳定骨架结构,反应活性极低。 -79×10^{-6} 峰位代表 $Q^2(1Al)$ 配位结构,其铝硅酸盐矿相结构主要是硅氧原子链端仅存在一个以铝原子为主体的四面体,呈链状结构,为非晶相铝硅酸结构中的一种铝硅配位结构。 -96×10^{-6} 和 -93×10^{-6} 分别代表 $Q^4(3Al)$ 和 $Q^4(2Al)$ 铝氧硅配位结构,分别表示硅氧配位周围连接3个和2个以铝原子为主体形成的四面体,属于非晶相不同铝硅配位结构中的2种结构。如图3所示, -108×10^{-6} 和 -96×10^{-6} 峰代表 $Q^4(0Al)$ 和 $Q^4(3Al)$ 两类配位结构。非晶态 $Q^4(0Al)$ 结构呈无规则排列,极易在稀碱体系下分解, $Q^4(3Al)$ 结构为形成莫来石晶体结构过程的一类中间体,原子排列多数以规则有序结构,反应活性较低,硅氧解离难度较大。

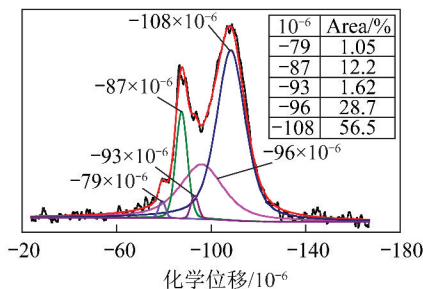


图3 粉煤灰的 ^{29}Si MAS NMR谱图

Fig. 3 ^{29}Si MAS NMR spectrums of HAFA

2.2 非晶相中二氧化硅定量分析

本文基于粉煤灰中硅元素的赋存状态研究,采用酸碱联合法(碱-酸-碱-酸-碱)逐步将非晶相中二氧化硅活化-分离,从而实现其高效分离,进一步明确非晶相中二氧化硅含量。

2.2.1 矿相变化分析

酸碱联合法分析过程矿相结构变化如图4所

示,可知,莫来石是粉煤灰中主要晶相结构,在XRD谱图中 $15^\circ \sim 25^\circ$ 出现的“鼓包峰”是非晶相铝硅酸盐,其反应活性较高。通过预脱硅(1T)处理后,鼓包峰大幅降低,同时产生沸石相,表明部分非晶相铝硅酸盐分解,硅酸根和铝酸根在碱介质下自发生成沸石相。通过酸活化(1A)处理后,沸石峰消失,表明沸石相被质子酸完全分解,二氧化硅反应活性提高。通过二次脱硅(2T)处理后,非晶相硅得到高效分离,鼓包峰基本消失,沸石相形成较少,表明非晶相铝硅酸盐基本被分解。为了防止惰性玻璃相未被脱除,进一步采用二次酸活化(2A)后,峰位基本不发生变化,主要矿相为莫来石和刚玉相。对该二次活化粉煤灰进行三次脱硅(3T),粉煤灰中残余的非晶相硅完全脱除,从而表明非晶相被完全脱除。

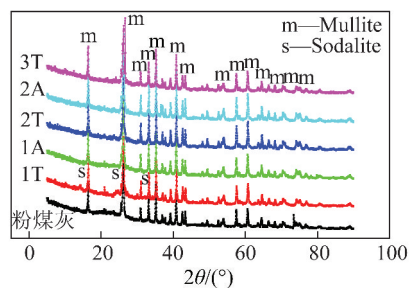


图4 酸碱联合法过程XRD谱图

Fig. 4 XRD spectrums of HAFA during the method of acid and alkali combination

2.2.2 形貌变化

酸碱联合法处理过程粉煤灰颗粒形貌变化如图5所示,由图5可知,粉煤灰原料颗粒微观形貌多以球形颗粒为主,主要是高温急速冷却过程晶相与非晶相相互包裹形成的球形颗粒。经过预脱硅处理后(1T),粉煤灰球形颗粒表面及孔道附着大量沸石颗粒,阻碍了稀碱介质分解颗粒表面非晶相硅氧机构,同时降低了 OH^- 进入孔道内部分解非晶相 SiO_2 可能性。通过酸活化(1A)处理后,颗粒表面及孔道内部沸石基本完全分解,颗粒表面孔道结构显现,促进 H^+ 进入孔道内部分解非晶相惰性硅氧铝配位体,形成大量活性较高的硅羟基结构。经过二次脱硅后(2T),因其活性铝在第1步脱硅和酸活化过程被高效分离,降低了沸石自发反应过程铝离子的供应,从而降低沸石生成量,此时颗粒表面覆盖的非晶相大部分消失,小棒状莫来石晶粒显现,说明此时大部分非晶相得到高效脱除。然后对其进行第2次酸活化处理(2A),莫来石棒状结构间残余的非晶相结构被破坏,颗粒结构基本被分解,非晶相完全显现。最后采用脱硅处理(3T)将显现的非晶相结构完全分解,

玻璃相铝硅酸盐基本完全剥离,活性铝硅元素大量降低,进一步削弱沸石自发反应的可能性,从而实现非晶相硅的完全脱除。

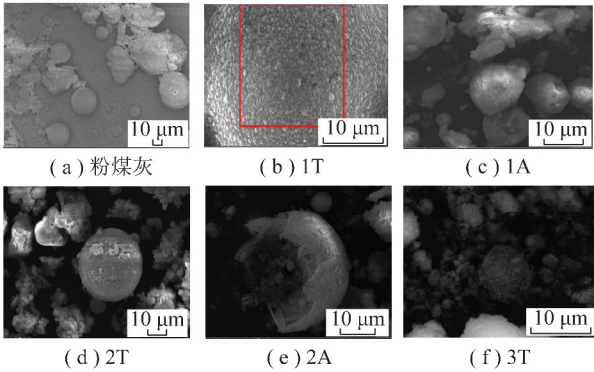


图 5 酸碱联合法过程颗粒微观形貌变化
Fig. 5 Microscopic morphology changes of particles during the method of acid and alkali combination

2.2.3 非晶相二氧化硅定量分析

酸碱联合法分析非晶相中二氧化硅含量,采用了 2 组平行试验,由于酸活化过程硅酸根离子形成偏硅酸存在于固相中,活化酸液中基本无硅酸根离子,因此酸液中硅酸根离子可近似为 0,计算公式为

$$M_x = V_x C_x \tag{1}$$

$$M = M_1 + M_2 + M_3 \tag{2}$$

$$R = M / (M_{\text{HAFA}} \times 40.21\%) \times 100\% \tag{3}$$

式中, M_x 为第 x 次脱硅液中二氧化硅含量; V_x 为第 x 次脱硅液体积; C_x 为第 x 次脱硅液中二氧化硅浓度; M_1 、 M_2 、 M_3 分别为第 1、2、3 三次脱硅液中二氧化硅含量; R 为脱硅率; M 为 3 次总计脱除的二氧化硅含量; M_{HAFA} 为原料粉煤灰总质量。

不同脱硅过程脱硅率试验结果见表 2。可知,第 1 次脱硅率>第 2 次脱硅率>第 3 次脱硅率,第 1 次脱硅过程脱硅率在 38.12%~39.42%,非晶相中二氧化硅脱除效果较好;因第 1 次脱硅过程大部分活性非晶相二氧化硅被脱除,第 2 次脱硅率仅为 16.21%~16.77%;第 3 次脱除后非晶相二氧化硅残余量较少,脱硅仅为 2.16%~3.23%,说明非晶相基本被完全脱除,非晶相二氧化硅得到彻底分解。

表 2 不同脱硅过程脱硅率

项目	1T 脱硅率/%	2T 脱硅率/%	3T 脱硅率/%
平行 1	38.12	16.21	3.23
平行 2	39.42	16.77	2.16

基于表 2 试验结果,对 2 次平行试验进行总脱硅率计算,其结构见表 3。可知 200 g 粉煤灰中氧化

硅含量为 80.6 g,经过多步酸碱联合处理后,二氧化硅总脱除量在 46.40~47.03 g,误差在 1% 左右,总脱硅率为 57.57%~58.35%,因此得出非晶相中二氧化硅含量为 57.5%~58.5%。

表 3 非晶相二氧化硅脱除总量及脱硅率

Table 3 Total mass and desilication ratio of amorphous silica

项目	SiO ₂ 含量/g	SiO ₂ 总脱除量/g	总脱硅率/%
平行 1	80.6	46.40	57.57
平行 2	80.6	47.03	58.35

第 3 次脱硅粉煤灰化学组成见表 4。粉煤灰中非晶相彻底分解后,氧化铝含量由 50% 提高至 70% 以上,氧化硅含量由 40% 降至 25% 以下,原料铝硅比由 1.25 提高至 3.0 以上,为其高端化利用提供优质原料。

表 4 第 3 次脱硅粉煤灰化学组成

Table 4 Chemical compositions of the third desilication coal fly ash

组成	Al ₂ O ₃	SiO ₂	Fe ₂ O ₃	CaO	Na ₂ O	MgO	LOI
含量/%	71.56	24.31	0.63	0.22	0	0.16	3.16

3 结 论

1) 针对粉煤灰非晶相中硅元素的赋存形态及其定量分析展开系统研究,从原子尺度上结合多种表征分析,明确非晶相中硅元素赋存形态,基于此提出了酸碱联合法定量分析非晶相中二氧化硅含量。

2) 粉煤灰中矿相主要为莫来石、刚玉和铝硅酸盐玻璃三相,晶相与非晶相嵌黏夹裹,非晶相中硅元素配位结构复杂,主要包括 Q⁴(4Al)、Q⁴(3Al)、Q⁴(2Al)、Q⁴(0Al)、Q²(1Al) 五种配位结构形式存在,其中 Q⁴(0Al) 含量高达 56.5%。

3) 针对粉煤灰碱法脱除非晶相二氧化硅过程中副反应严重、惰性铝硅酸盐脱除难等问题,提出了酸碱联合法定量精确分析非晶相中二氧化硅含量,结合 XRD 及 SEM 分析证明,该粉煤灰样品中非晶相二氧化硅含量在 57.5%~58.5%,误差在 1% 以内,为粉煤灰及其他含硅固废资源高值化利用提供借鉴。

参考文献(References):

[1] 汪潇,王宇斌,杨留栓,等. 高性能大掺量粉煤灰混凝土研究[J]. 硅酸盐通报,2013,32(3):523-532.
WANG Xiao, WANG Yubin, YANG Liushuan, et al. High-per-

- formance high-volume fly ash concrete[J]. Bulletin of The Chinese Ceramic Society, 2013, 32(3): 523-532.
- [2] 郝斐, 赵大传. 轻质/超轻粉煤灰陶粒的研制及陶粒膨胀机理的探讨和应用[J]. 功能材料, 2011, 3(41): 518-523.
- XI Fei, ZHAO Dachuan. Preparation of ultra-lightweight fly ash ceramic (ULFAC), investigation and application of the bloating mechanism[J]. Journal of Functional Materials, 2011, 3(41): 518-523.
- [3] 李坦平, 谢华林, 何晓梅. 煅烧电解锰渣-粉煤灰复合掺合料的试验研究[J]. 硅酸盐通报, 2007, 26(3): 567-592.
- LI Tanping, XIE Hualin, HE Xiaomei. Experimental study of calcined electrolysis manganese residue and fly ash complex admixture[J]. Bulletin of The Chinese Ceramic Society, 2007, 26(3): 567-592.
- [4] 李会泉, 张建波, 王晨晔, 等. 高铝粉煤灰伴生资源清洁循环利用技术的构建与研究进展[J]. 洁净煤技术, 2018, 24(2): 1-8.
- LI Huiquan, ZHANG Jianbo, WANG Chenye, et al. Construct and research advance in clean and cyclic utilizations of associated resources in high alumina coal fly ash[J]. Clean Coal Technology, 2018, 24(2): 1-8.
- [5] 胡文豪, 张建波, 李少鹏, 等. 煤气化渣制备聚合氯化铝工艺研究[J]. 洁净煤技术, 2019, 25(1): 154-159.
- HU Wenhao, ZHANG Jianbo, LI Shaopeng, et al. Study on the preparation of poly aluminium chloride from coal gasification residue[J]. Clean Coal Technology, 2019, 25(1): 154-159.
- [6] TANG Y, CHEN F L. Extracting alumina from fly ash by soda lime sintering method[J]. Mining and Metallurgical Engineering, 2008, 28(6): 73-75.
- [7] WU G D, YE Y P, QIAN W L. Reserch on the rules of leaching silicon and aluminum from fly ash in alkaline solution at low temperature[J]. Research of Environment Science, 2006, 1(19): 53-56.
- [8] JI H M, LU H X, HAO X G. Hign purity alumina powders extracted from fly ash by the calcining-leaching process[J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2007, 35(12): 1657-1660.
- [9] 王瑞, 赵辉, 王永旺, 等. 粉煤灰提取白炭黑研究进展[J]. 矿产综合利用, 2018(6): 32-36.
- WANG Rui, ZHAO Hui, WANG Yongwang, et al. Research progress of extracting white carbon from fly ash[J]. Multipurpose Utilization of Mineral Resources, 2018(6): 32-36.
- [10] 孙俊民, 程照斌, 李玉琼, 等. 利用粉煤灰与工业氧化铝合成莫来石的研究[J]. 中国矿业大学学报, 1999, 28(3): 247-250.
- SUN Junmin, CHENG Zhaobin, LI Yuqiong, et al. Research on sythesizing mullite with fly ash and alumina[J]. Journal of China University of Mining & Technology, 1999, 28(3): 247-250.
- [11] GUO A R, LIU J C, XU R, et al. Preparation of mullite from desilication-fly ash[J]. Fuel, 2010, 89(12): 3630-3636.
- [12] 熊林, 刘小荣. 用粉煤灰制备多孔陶瓷过滤材料的研究[J]. 矿冶工程, 2010, 84(30): 91-94.
- XIONG Lin, LIU Xiaorong. Study on preparing porous ceramic filter materials using fly ash[J]. Mining and Metallurgical Engineering, 2010, 84(30): 91-94.
- [13] 包启富, 董伟霞, 周健儿, 等. 利用粉煤灰和玻璃废料制备泡沫陶瓷的烧成工艺[J]. 稀有金属材料与工程, 2015, 44(S1): 358-360.
- BAO Qifu, DONG Weixia, ZHOU Jianer. Firing process of foam ceramics using fly ash and waste glass[J]. Rare Metal Materials and Engineering, 2015, 44(S1): 358-360.
- [14] 王英明, 姜亮, 董彦博, 等. 粉煤灰地质聚合物制备条件和孔隙结构与 Cu^{2+} 吸附性能[J]. 洁净煤技术, 2018, 24(5): 120-125, 131.
- WANG Yingming, JIANG Liang, DONG Yanbo, et al. Preparation condition and Cu^{2+} adsorption properties of fly ash based geopolymer[J]. Clean Coal Technology, 2018, 24(5): 120-125, 131.
- [15] ZHANG J B, LI S P, LI H Q, et al. Acid activation for pre-desilicated high-alumina fly ash[J]. Fuel Processing Technology, 2016, 151: 64-71.
- [16] CHANCE R T, STUTZMAN P, JUENGER M C G, et al. Comprehensive phase characterization of crystalline and amorphous phases of a Class F fly ash[J]. Cement and Concrete Research, 2010, 40: 146-156.
- [17] WINBURN R S, GRIER D G, MCCARTHY G J, et al. Rietveld quantitative X-ray diffraction analysis of NIST fly ash standard reference materials[J]. Powder Diffraction, 2000, 15: 163-171.
- [18] LI, C, LI, Y, SUN H H, et al. The composition of fly ash glass phase and its dissolution properties applying to geopolymeric materials[J]. Journal of the American Ceramic Society, 1994, 6: 1773-1778.
- [19] LIANG D, READEY D W. Dissolution kinetics of crystalline and amorphous silica in hydrofluoric-hydrochloric acid mixtures[J]. Journal of the American Ceramic Society, 1987, 70: 570-577.
- [20] LIU X T, WANG B D, XIAO Y F, et al. Pre-desilication process of alumina-rich fly ash in alkali solution[J]. China Powder Science and Technology, 2013, 19: 24-27.
- [21] FERNÁNDEZ-JIMÉNEZ A, DE LA TORRE A G, PALOMO A, et al. Quantitative determination of phases in the alkali activation of fly ash. Part I: Potential ash reactivity[J]. Fuel, 2006, 85: 625-634.
- [22] SU S Q, YANG J, WENMA H, et al. Preparation of ultrafine aluminum hydroxide from coal fly ash by alkali dissolution process[J]. Integrated Ferroelectrics, 2011, 128: 155-162.
- [23] ZHANG J B, LI S P, LI H Q, et al. Preparation of mullite ceramic from high-alumina coal fly ash through mechanical-chemical synergistic activation[J]. Ceramics International, 2017, 43: 6532-6541.
- [24] ZHU G R, TAN W, SUN J M, et al. Effects and mechanism research of the desilication pretreatment for high-aluminum fly ash[J]. Energy & Fuels, 2013, 27: 6948-6954.
- [25] ZHANG J B, LI H Q, LI S P, et al. Mechanism of mechanical-chemical synergistic activation for preparation of mullite ceramics from high-alumina coal fly ash[J]. Ceramics International, 2018, 44: 3884-3892.