

粉煤灰湿式化学法合成沸石及其对重金属的吸附脱除研究

王文霞¹, 郑梓涵¹, 张轩², 乔瑜¹, 徐明厚¹

(1. 华中科技大学 煤燃烧国家重点实验室, 湖北 武汉 430074; 2. 中国舰船研究设计中心, 湖北 武汉 430064)

摘要:针对粉煤灰固废的处理/处置问题,采用湿式化学的方法将其合成沸石,探索粉煤灰的资源化高值利用方式。通过设计四因素、三水平的正交合成试验,结合阳离子交换容量的评价,确定湿式化学方法下粉煤灰合成沸石的最佳工况。为了检验合成的沸石对阳离子重金属的吸附脱除效果,进行 9 种正交工况下合成的沸石对重金属 Pb(II) 的吸附脱除试验,同时研究了合成的沸石对阴离子基团的吸附脱除。采用湿式化学法,粉煤灰合成沸石的最优工况为:NaOH 浓度 4 mol/L、液固比 4 mL/g、研磨时间 24 h、转速 350 r/min,对沸石合成效果影响较大的因素是研磨时间,其次是液固比、碱液浓度,行星球磨机的转速影响最小。该试验条件下合成的沸石对重金属 Pb 的吸附脱除结果表明,不同正交工况合成的沸石对 Pb(II) 的吸附以物理吸附为主,其脱除率均达 70% 以上,最高可达 92.5%,主要依赖于合成沸石的阳离子交换容量;对重金属 Cr 的吸附脱除结果表明,不同正交工况合成的沸石对 Cr(VI) 的吸附既有物理吸附也有化学吸附,对 Cr(VI) 的吸附脱除率最高可达 35.7%,说明湿式化学法合成的沸石对重金属阳离子和阴离子基团均有一定的吸附脱除效果。

关键词:粉煤灰;湿式化学;沸石;重金属;吸附

中图分类号:TQ172;TK17

文献标志码:A

文章编号:1006-6772(2020)05-0097-06

Study on zeolite synthesis from coal fly ash by wet milling method and adsorption of heavy metals

WANG Wenxia¹, ZHENG Zihan¹, ZHANG Xuan², QIAO Yu¹, XU Minghou¹

(1. State Key Laboratory of Coal Combustion, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China;

2. China Ship Development and Design Center, Wuhan 430064, China)

Abstract: In view of the treatment/disposal problem of coal fly ash, which is a solid waste with large output, wet milling method to synthesize zeolite was used to explore the high value utilization of fly ash as resource. Through the design of four factors, three levels orthogonal synthesis experiments, combined with the evaluation of cation exchange capacity, the best condition of synthesis of zeolite from fly ash under wet milling method was determined. In order to test the adsorption and removal effect of cation heavy metals of the zeolite synthesized by this method, the adsorption and removal of heavy metal Pb(II) under nine orthogonal conditions were carried out, and the adsorption and removal of anionic groups with less attention under the orthogonal conditions were also studied. According to the average value and range of cation exchange capacity of different factors under different orthogonal conditions, the optimal combination to synthesize zeolite is NaOH concentration of 4 mol/L, liquid-solid ratio of 4 mL/g, grinding time of 24 h and rotating speed of 350 r/min. The range of cation exchange capacity demonstrates that the most important factor for zeolite synthesis is grinding time, followed by liquid-solid ratio and alkali concentration, and the speed of planetary ball mill has the least influence. The results of adsorption and removal of Pb(II) by zeolite synthesized under the experimental conditions show that the adsorption of Pb(II) is mainly physical adsorption, and the removal rate is more than 70%, up to 92.5%, which mainly depends on the cation exchange capacity of synthetic zeolite. The results of adsorption and

收稿日期:2020-08-10;责任编辑:张晓宁 DOI:10.13226/j.issn.1006-6772.IF20081001

基金项目:装备预研教育部联合基金资助项目(6141A02022529)

作者简介:王文霞(1988—),女,河南周口人,博士研究生,研究方向为固体废弃物资源化利用。E-mail:wangwenxia@hust.edu.cn. 通讯作者:乔瑜,教授,博士生导师,研究方向为固废处理及燃烧污染物治理。E-mail:yuqiao@hust.edu.cn

引用格式:王文霞,郑梓涵,张轩,等.粉煤灰湿式化学法合成沸石及其对重金属的吸附脱除研究[J].洁净煤技术,2020,26(5):97-102.

WANG Wenxia, ZHENG Zihan, ZHANG Xuan, et al. Study on zeolite synthesis from coal fly ash by wet milling method and adsorption of heavy metals[J]. Clean Coal Technology, 2020, 26(5): 97-102.



移动阅读

removal of heavy metal Cr on the zeolite synthesized under the experimental conditions show that the adsorption and removal of heavy metal Cr is both physical and chemical adsorption. The adsorption and removal rate of Cr(VI) on the synthesized zeolites is up to 35.7%. The zeolite synthesized by wet milling method has certain adsorption and removal effect on heavy metal cations and anions.

Key words: coal fly ash; wet milling; zeolite; heavy metal; adsorption

0 引言

粉煤灰是在燃煤电厂电力生产过程中产生的固体废弃物,据统计,2017年我国的煤炭消费量达38.57亿t^[1],若按照18%的粉煤灰产生量计算,预计粉煤灰产量高达6.94亿t,且在未来仍会保持增长趋势。粉煤灰的大量堆积会造成严重的环境问题和资源浪费,其综合利用亟待开发。目前粉煤灰主要应用于建筑材料和路基等方面,产品附加值不高^[2]。其主要化学成分为Si和Al^[3],与沸石相似,且含量较高,可作为沸石合成的前驱体。沸石表面呈负电荷特性及中空四面体结构,可用于吸附脱除重金属。因此,利用粉煤灰合成沸石是粉煤灰的高值综合利用方式之一。

自1985年Höller and Wirsching等^[4]首次利用粉煤灰合成沸石后,国内外学者开始进行粉煤灰合成沸石的研究。粉煤灰合成沸石的方法主要有水热法、碱熔-水热多步法、熔盐处理法、微波加热法及超声预处理法。传统的水热过程中,Al³⁺和Si⁴⁺的反应活性较低;而碱熔-水热多步法和熔盐法成本较高;超声预处理法和微波加热预处理法有利于灰中Al³⁺和Si⁴⁺的溶解,但合成的沸石只适用于实验室规模。Murayama等^[5]分别以NaOH、Na₂CO₃、K₂CO₃和KOH为碱源,研究了水热法合成机理,认为NaOH为溶解Si⁴⁺和Al³⁺的最优碱源。Hollman等^[6]采用两步水热法合成沸石,粉煤灰转化率可达45%,合成沸石的阳离子交换容量达2.4 meq/g。Molina等^[7]、Rayalu等^[8]研究表明,碱熔法及碱熔预处理法合成沸石的阳离子交换容量更高。以上方法均需要高温条件,特别是水热法需要高压反应釜,设备要求较高,有一定的操作风险。因此,急需开发更加节能、应用范围广的沸石合成方法。湿式化学法是通过力促进反应物质之间的物理、化学转化的一个科学分支,由于没有尾气污染,被认为是一种环保的处理方式,其中湿式研磨是湿式化学法的一种处理方式。Wu等^[9]、Prokof'ev等^[10]分别通过湿式研磨处理方法合成了钙长石和LTA型沸石,表明湿式研磨方式可用来合成新材料。

沸石表面呈负电荷,对阳离子重金属的脱除能力较强。前人对沸石吸附脱除重金属的研究

主要集中在阳离子重金属,如Cu、Pb、Zn、Cd和Ni等的脱除^[11-13],而对脱除以阴离子基团形式存在的重金属研究较少。重金属铬在废水中存在的形态主要有三价和六价,根据US EPA的要求,饮用水中Cr含量必须低于0.1 mg/L,重金属铬超标会对肝肾及神经造成伤害。由于溶液中六价铬的毒性是三价铬的100倍,需对溶液中六价铬的吸附脱除进行重点研究,同时对Pb(II)进行对比研究。

本文采用湿式化学法,利用粉煤灰合成沸石;通过设计不同工况的正交试验,研究湿式化学过程中不同影响因素对沸石合成的影响,并确定合成沸石的最优工况。同时,研究合成沸石对重金属阳离子Pb(II)和阴离子基团Cr₂O₇²⁻的吸附脱除,以期粉煤灰的资源化高值利用提供参考。

1 试验

1.1 沸石的合成

采用湿式化学法制备沸石,行星球磨机(型号为QM-3SP2)原理如图1所示。行星球磨机有4个容量为250 mL的氧化铝球磨罐,并配有直径6 mm和20 mm的氧化铝磨球。行星球磨机工作时,球磨罐中的物质在围绕球磨罐轴心自转的同时,也会围绕着4个罐子的主轴进行公转,使球磨罐中的物质充分接触碰撞,增强反应和能量传递。

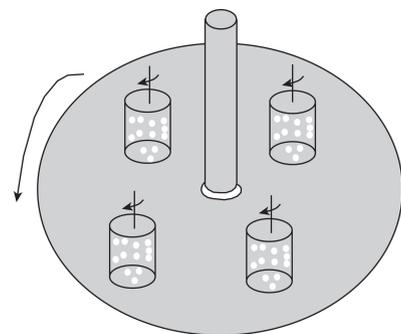


图1 行星球磨机原理

Fig.1 Mechanism of planetary ball milling

1.2 正交试验设计方法

本文采用4个因素、3个水平的正交合成试验(表1),通过测试不同条件下合成沸石的阳离子交换容量,确定合成沸石的最佳合成条件。

表1 沸石合成的正交试验设计

Table 1 Orthogonal experimental design of zeolite synthesis

编号	A:NaOH 浓度/(mol · L ⁻¹)	B:液固比/(mL · g ⁻¹)	C:研磨时间/h	D:转速/(r · min ⁻¹)
1	1(0.5)	1(2)	1(1)	1(200)
2	1	2(4)	2(8)	2(350)
3	1	3(8)	3(24)	3(500)
4	2(2)	1	2	3
5	2	2	3	1
6	2	3	1	2
7	3(4)	1	3	2
8	3	2	1	3
9	3	3	2	1

1.3 试验流程

试验用样品取自湖北某燃煤电厂的粉煤灰,并在 105 ℃ 下干燥。通过 TCLP EPA 1311 的标准方法对样品中常见的 5 种重金属元素 Cu、Pb、Zn、Cd 和 Cr 的浸出浓度进行测试,以确定样品的重金属浸出是否达标。具体的测试步骤为:① 浸提剂的选择。经测试粉煤灰样品的 pH=12(型号 STARTER 3100,美国 OHAUS 公司),因此浸出过程的浸提剂 pH=2.88±0.05。② 称取一定质量的粉煤灰,与配置好的浸提剂按液固比为 20:1 混匀,并将混合液放于翻转的震荡器上,转速为(30±2) r/min,温度为室温,翻转时间为(18±2) h。③ 离心、分离、过滤,将上清液酸化处理,待测。

粉煤灰样品中典型重金属浸出浓度见表 2,Cr、Cu、Zn、Cd 和 Pb 浸出浓度分别为 2.90、6.88、10.26、0.06 和 0.14 mg/L,其中 Cr、Cu、Zn 的浸出浓度略高于 Cd 和 Pb。样品中 5 种重金属的浸出浓度均低于 TCLP 要求限值,可用于合成沸石。

表 2 样品中重金属元素的浸出浓度及 TCLP 标准限值

Table 2 Leaching concentration of heavy metals in samples and TCLP standard limits

项目	重金属浓度/(mg · L ⁻¹)				
	Cr	Pb	Cu	Zn	Cd
原样品	2.90	0.14	6.88	10.26	0.06
TCLP 限值	5	5	15	—	1

采用湿式研磨方式,粉煤灰合成沸石的流程如图 2 所示。取特定浓度的 NaOH 溶液与一定质量的粉煤灰按照一定的液固比混合成悬浊液,置于行星球磨罐中,按照氧化锆磨球和飞灰的质量比 12,加入一定量的磨球,在设定转速下正反转交替运行,研磨程序执行完毕后,取出混合液,离心分离,固体在 105 ℃ 下干燥 12 h,即为合成的沸石。为了探究不同因素对合成沸石的影响,分别设定:NaOH 溶液浓度 0.5、2.0 和 4.0 mol/L,液固比 2、4、8 mL/g,时间

1、8、24 h,转速 200、350、500 r/min。

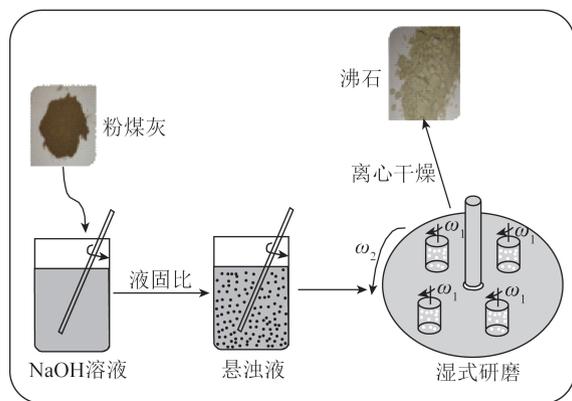


图 2 湿式研磨法合成沸石的流程

Fig.2 Flow of zeolite synthesis by wet milling

2 试验结果与分析

2.1 阳离子交换容量

评价沸石品质的重要指标是阳离子交换容量。阳离子交换容量一般根据 US EPA SW-846, Method 9081 的标准方法测定,本文根据文献[14]的测试步骤对 9 种合成条件下制备的沸石样品进行阳离子交换容量(CEC)测试,结果见表 3。

表 3 合成沸石的阳离子交换容量

Table 3 Cation exchange capacity of synthetic zeolites

沸石编号	阳离子交换容量/(mmol · kg ⁻¹)
1	1 094
2	10 104
3	7 409
4	8 972
5	11 469
6	1 565
7	17 280
8	10 647
9	3 792

由表3可以看出,9种工况中,工况7(NaOH浓度为4 mol/L,液固比为2 mL/g,研磨时间为24 h,转速为350 r/min)合成的沸石,阳离子交换容量最大。

K_{jm} 为第j列因素m水平对应的CEC值之和, $K_{jm}/3$ 为第j列因素m水平的平均值,极差 R_j 为最大平均值与最小平均值的差值。 R_j 值越大,因素越重要。 $K_{jm}/3$ 和极差 R_j 的计算结果见表4。可以看出,4个因素K的最大值分别为 K_{A3} 、 K_{B2} 、 K_{C3} 和 K_{D2} ,可以确定本文试验条件下,合成沸石的最优组合为A3B2C3D2,即NaOH浓度为4 mol/L,液固比为4 mL/g,研磨时间为24 h,转速为350 r/min。 R 值从大到小依次为 R_C 、 R_B 、 R_A 、 R_D ,说明对合成结果影响最大的因素是研磨时间,其次是液固比、碱液浓度,球磨机转速影响最小。

表4 各因素水平对应的 $K_{jm}/3$ 和 R 值

Table 4 $K_{jm}/3$ and R value of each factor level

因素	水平	$K_{jm}/3$	极差 R_j
A	1(0.5)	62.02	43.71
	2(2)	73.35	
	3(4)	105.73	
B	1(2)	91.15	64.85
	2(4)	107.40	
	3(8)	42.55	
C	1(1)	44.35	76.17
	2(8)	76.22	
	3(24)	120.52	
D	1(200)	54.51	41.98
	2(350)	96.49	
	3(500)	90.09	

2.2 化学组成及矿物组成变化

根据正交试验确定的最优工况将粉煤灰合成沸石,采用X射线荧光光谱表征粉煤灰原样和合成沸石的化学元素组成(表5)。可以看出,粉煤灰原样中含量较高的为Al和Si,与传统沸石的组成相似。由于沸石合成的介质为NaOH溶液,合成的种类为Na-X型沸石,因此经湿式化学处理后,样品中Na含量明显增加。

表5 湿式研磨前后样品的主要化学元素组成

Table 5 Chemical composition of main elements in samples before and after wet milling %

样品	Na ₂ O	Al ₂ O ₃	SiO ₂	SO ₃	K ₂ O	CaO	Fe ₂ O ₃
原样	3.34	40.68	45.50	0.41	0.42	2.55	1.98
沸石	44.24	18.34	20.24	0.84	0.26	1.79	1.86

采用X射线衍射仪测试样品中的主要晶体组成,试验参数为0°~60°。最优工况下合成的沸石和粉煤灰原样的矿物元素组成如图3所示。可知,粉煤灰原样中的主要矿物组成为石英、碳酸钙、氧化

钙、磁铁矿和莫来石,经湿式研磨处理后,样品的主要矿物组成为X型沸石、石英、磁铁矿和莫来石^[15]。

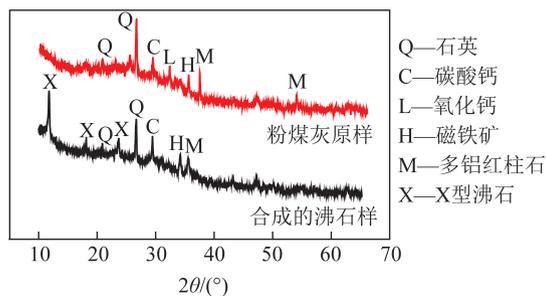


图3 原粉煤灰和合成沸石中矿物组成^[15]

Fig.3 Mineral composition of raw fly ash and synthetic zeolite^[15]

采用XRD测试分析样品中矿物成分,根据XRD图谱可得到每种晶相物质的最强峰积分强度和参比强度RIR值(reference intensity ratio),根据绝热原理,若一个样品中含有N个相,则任意物相的质量分数 W_i 可表达为

$$W_i = \frac{\frac{I_i}{RIR_i}}{\sum_{i=1}^N \frac{I_i}{RIR_i}}, \quad (1)$$

式中, I_i 为第i种晶相物质的最强峰积分强度; RIR_i 为第i种晶相物质的参比强度,即晶相物质与Al₂O₃最强峰积分强度的比值^[16]。

湿式化学处理前后,样品中矿物组分的半定量结果如图4所示。粉煤灰原样中石英和多铝红柱石质量占比略高,分别为38%和20%,碳酸钙、磁铁矿和氧化钙的质量分数均为14%。沸石样品中,X型沸石占比为33%,石英和莫来石占33%和10%,碳酸钙和磁铁矿占17%和13%。表明,合成沸石后,粉煤灰原样中的氧化钙发生反应生成碳酸钙,导致沸石中碳酸钙含量增加,而莫来石和石英含量降低。

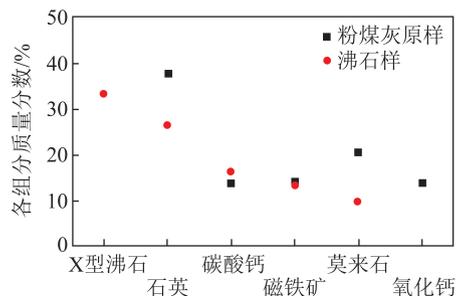


图4 湿式研磨前后样品中的矿物组分的半定量结果

Fig.4 Semi quantitative results of mineral components in samples before and after wet milling

2.3 合成沸石对重金属的吸附脱除

2.3.1 Pb(II)的吸附脱除

在去离子水中加入0.08 g Pb(NO₃)₂样品,用容

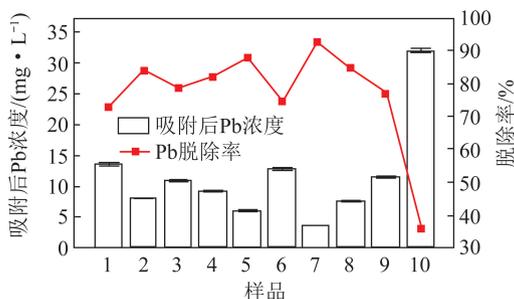
量瓶定容到 1 L,配制成 Pb(II)浓度为 50 mg/L 的溶液^[17],以此模拟被重金属污染的溶液。吸附脱除试验步骤:取 40 mL Pb(II)模拟溶液置于带旋盖的离心管中,加入 0.4 g 沸石样品后放于翻转振荡器上,为了保证吸附过程达到平衡,翻转振荡器的转速为 75 r/min,反应时间为 180 min。反应结束后,离心分离、过滤,取上清液,采用 ICP-MS 测试吸附后溶液中 Pb²⁺浓度。

定义脱除率 Φ (%) 表征重金属的脱除效果,其计算公式为

$$\Phi = \left(1 - \frac{C_1 V_1}{C_0 V_0} \right) \times 100\%, \quad (2)$$

式中, C_0 和 C_1 分别为溶液中重金属的初始浓度和吸附后浓度, mg/L; V_0 和 V_1 分别为溶液的初始体积和吸附处理后的体积, mL。

图 5 为粉煤灰原样及沸石对重金属 Pb²⁺ 的吸附脱除结果。可以看出,粉煤灰原样对阳离子重金属 Pb²⁺ 脱除率为 35.76%,这主要是因为粉煤灰样品中含有未燃尽碳等具有吸附性的物质且含有吸附性位点,可与 Pb(II) 结合^[18]。工况 7 合成的沸石对 Pb(II) 的脱除率最高,达 92.50%,吸附脱除后溶液中的残留 Pb(II) 浓度为 3.75 mg/L,这与表 3 的结果一致,说明湿式研磨法合成的沸石对重金属 Pb(II) 的吸附主要是物理吸附。工况 2~5、8 合成的沸石对重金属 Pb(II) 的脱除率分别为 83.96%、78.16%、81.56%、87.86% 和 84.86%。工况 1、6、9 合成的沸石对重金属 Pb(II) 的脱除率分别为 72.88%、74.34% 和 76.88%,这主要是由于沸石对重金属 Pb(II) 的吸附以物理吸附为主,吸附脱除效果主要依赖于阳离子交换容量。



1~9—正交工况下合成的沸石; 10—粉煤灰原样

图 5 粉煤灰原样及合成沸石对重金属 Pb²⁺ 的吸附脱除

Fig.5 Adsorption and removal of heavy metal Pb²⁺ by fly ash and synthetic zeolite

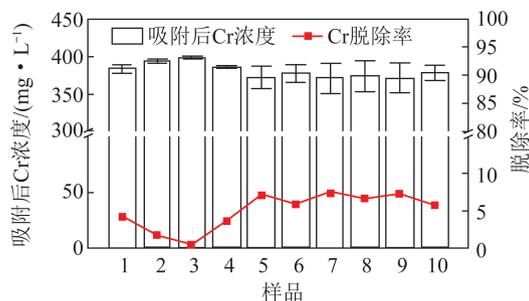
2.3.2 Cr 的吸附脱除

在去离子水中加入 1.131 4 g K₂Cr₂O₇ 样品,并定容到 1 L,配制成 Cr(VI)浓度为 400 mg/L 的溶

液^[19],以此模拟被重金属污染的溶液。吸附脱除试验步骤为:取 40 mL 模拟溶液于带旋盖的离心管中,加入 0.4 g 沸石样品并放于翻转振荡器上,翻转振荡器转速为 75 r/min,反应时间为 180 min。反应结束后,离心分离、过滤,取上清液,采用 ICP-MS 测试吸附后溶液中 Cr 总浓度;通过 EPA 3060a 方法,利用分光光度计(UV 1800)测定溶液中 Cr(VI)含量。

1) Cr 总量

图 6 为粉煤灰原样及合成的沸石对 Cr(VI) 的吸附脱除结果。可知,粉煤灰原样及其合成的沸石对重金属 Cr 吸附脱除能力较弱,脱除率均低于 8%。这是由于沸石吸附脱除重金属以物理吸附为主,依赖于其阳离子交换容量,但重金属 Cr(VI) 以阴离子基团形式(Cr₂O₇²⁻)存在,故吸附脱除能力较弱。工况 7 合成的沸石比其他工况对重金属铬总量的脱除率略高,这与其较高的 CEC 值有关。



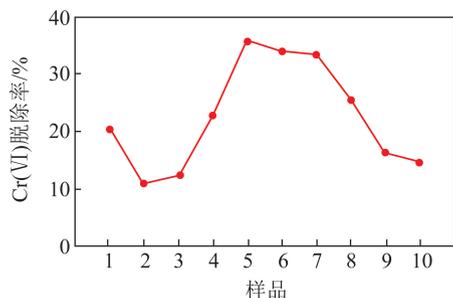
1~9—正交工况下合成的沸石; 10—粉煤灰原样

图 6 粉煤灰原样及合成的沸石对重金属 Cr 的吸附脱除

Fig.6 Adsorption and removal of heavy metal Cr by raw coal fly ash and synthetic zeolite

2) Cr(VI)

粉煤灰原样和合成的沸石中存在一定量铁,以 Fe₃O₄ 为主^[15]。Fe₃O₄ 本身具有一定还原性,可能与 Cr(VI) 发生氧化还原反应生成 Cr(III),而 Cr(VI) 的毒性是 Cr(III) 的 100 倍,因此化学吸附过程可改变 Cr(VI) 化学形态,降低溶液中 Cr(VI) 浓度,减少溶液毒性。Cr(VI) 吸附脱除结果如图 7 所示。



1~9—正交工况下合成的沸石; 10—粉煤灰原样

图 7 Cr(VI) 的吸附脱除

Fig.7 Adsorption and removal of Cr(VI)

由图7可知,经粉煤灰原样及沸石样吸附脱除后,Cr(VI)浓度变化较大。粉煤灰原样对溶液中的Cr(VI)的脱除率为14.6%。工况5~7合成的沸石对Cr(VI)的脱除率较高,分别为35.7%、33.8%和33.4%;工况2、3合成的沸石对Cr(VI)的脱除率略低,分别为11.1%和12.4%。Cr总量(图6)和Cr(VI)的脱除率变化说明,粉煤灰和合成的沸石对Cr(VI)的吸附脱除过程包括物理吸附和化学吸附。

3 结 论

1) 研磨时间是影响湿式研磨法合成沸石最重要因素。在NaOH浓度为4 mol/L、液固比为4 mL/g、研磨时间为24 h、转速为350 r/min的条件下,可得到最大的阳离子交换容量。

2) 粉煤灰原样及合成沸石对Pb(II)的吸附主要是物理吸附,吸附脱除效果较好,最高脱除率达92.5%,脱除效果与阳离子交换容量基本一致。

3) 对于重金属阴离子基团形式存在的Cr(VI),经粉煤灰原样及合成沸石的吸附后,Cr总量变化不大,脱除率均在8%以下,但Cr(VI)浓度降低幅度较大,最高脱除率达35.7%,说明粉煤灰原样及合成沸石对Cr(VI)的吸附既有物理吸附又有化学吸附。

参考文献(References):

[1] 国家统计局. 中国统计年鉴 2019[M]. 北京: 中国统计出版社, 2019.
National Bureau of Statistics. China statistical yearbook[M]. Beijing: China Statistics Press, 2019.

[2] 雷瑞, 付东升, 李国法, 等. 粉煤灰综合利用研究进展[J]. 洁净煤技术, 2013, 19(3): 106-109.
LEI Rui, FU Dongsheng, LI Guofa, et al. Research progress of fly ash comprehensive utilization[J]. Clean Coal Technology, 2013, 19(3): 106-109.

[3] QUEROL X, MORENO N, UMAÑA J C, et al. Synthesis of zeolites from coal fly ash: An overview[J]. International Journal of Coal Geology, 2002, 50(1): 413-423.

[4] HÖLLER H, WIRSCHING U. Zeolites formation from fly ash Fortschr[J]. Mineral, 1985, 63: 21-43.

[5] MURAYAMA N, YAMAMOTO H, SHIBATA J. Mechanism of zeolite synthesis from coal fly ash by alkali hydrothermal reaction[J]. International Journal of Mineral Processing, 2002, 64(1): 1-17.

[6] STEENBRUGGEN G, HOLLMAN G. The synthesis of zeolites from fly ash and the properties of the zeolite products[J]. Journal of Geochemical Exploration, 1998, 62(1): 305-309.

[7] MOLINA A, POOLE C. A comparative study using two methods to produce zeolites from fly ash[J]. Minerals Engineering, 2004, 17(2): 167-173.

[8] RAYALU S, MESHARAM S, HASAN M Z. Highly crystalline faujasitic zeolites from fly ash[J]. Journal of Hazardous Materials, 2000, 77(1): 123-131.

[9] WU C W, SUN C J, GAU S H, et al. Mechanochemically induced synthesis of anorthite in MSWI fly ash with kaolin[J]. Journal of Hazardous Materials, 2013, 244: 412-420.

[10] YU V PROKOF'EV, GORDINA N E, ZHIDKOVA A B, et al. Mechanochemical synthesis of granulated LTA zeolite from metakaolin[J]. Journal of Materials Science, 2012, 47(14): 5385-5392.

[11] SHUKLA E A, JOHAN E, HENMI T, et al. Arsenate adsorption on iron modified artificial zeolite made from coal fly ash[J]. Procedia Environmental Sciences, 2013, 17: 279-284.

[12] KISELEV A, RYZHIK L. Factors affecting adsorption characteristics of Zn²⁺ on two natural zeolites[J]. Journal of Hazardous Materials, 2006, 131(1): 59-65.

[13] MEDVIDOVIČN V, PERIČJ, TRGO M. Column performance in lead removal from aqueous solutions by fixed bed of natural zeolite-clinoptilolite[J]. Separation & Purification Technology, 2006, 49(3): 237-244.

[14] 冯献芳, 汪曼洁, 王晓燕, 等. 土壤阳离子交换量两种分析方法的比较[J]. 广东化工, 2013, 40(3): 37-38.
FENG Xianfang, WANG Manjie, WANG Xiaoyan, et al. A comparison study of two methods for measurement of soil cation exchange capacity[J]. Guangdong Chemical Industry, 2013, 40(3): 37-38.

[15] WANG W X, QIAO Y, LI T, et al. Improved removal of Cr(VI) from aqueous solution using zeolite synthesized from coal fly ash via mechano-chemical treatment[J]. Asia-pacific Journal of Chemical Engineering, 2017, 12(2): 259-267.

[16] 吕为智. 氧燃料燃烧条件下黄铁矿的转化行为研究[D]. 武汉: 华中科技大学, 2016.
LYU Weizhi. Study on the transformation behavior of pyrite during oxy-fuel combustion[J]. Wuhan: Huazhong University of Science & Technology, 2016.

[17] MISHRA P, PATEL R. Removal of lead and zinc ions from water by low cost adsorbents[J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 168(1): 319-325.

[18] BHATTACHARYYA K G, SHARMA A. Adsorption of Pb(II) from aqueous solution by a zadirachta indica (Neem) leaf powder[J]. Journal of Hazardous Materials, 2004, 113(1): 97-109.

[19] SUI Y, WU D, ZHANG D, et al. Factors affecting the sorption of trivalent chromium by zeolite synthesized from coal fly ash[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2008, 322(1): 13-21.