

乔少华, 李剑峰, 陈杰, 等. 2009 零价汞在 $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$ -氯体系中的催化氧化 [J]. 环境科学学报, 29(7): 1475-1479

Qiao SH, Li J F, Chen J *et al*. 2009 Catalytic oxidation of elemental mercury in flue gas over $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$ with chlorine [J]. Acta Scientiae Circumstantiae 29(7): 1475-1479

零价汞在 $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$ -氯体系中的催化氧化

乔少华, 李剑峰, 陈杰, 瞿赞, 晏乃强*, 贾金平

上海交通大学环境科学与工程学院, 上海 200240

收稿日期: 2008-10-28 修回日期: 2009-02-15 录用日期: 2009-05-15

摘要: 为强化烟气中零价汞向二价汞的转化, 利用模拟含汞烟气研究了以 $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$ 作为催化剂、利用氯气作为氧化剂催化氧化零价汞的方法。着重考察了氯气浓度、温度、空速和 SO_2 对催化氧化零价汞性能的影响, 并与 HCl 作为氧化剂的结果进行了对比。同时, 对催化剂进行表征, 探讨了催化剂表面吸附态汞的形态。研究表明, Cl_2 较 HCl 更易活化且活性温度区间更广, 在 100~300℃ 范围内, Cl_2 体积分数为 2.0×10^{-6} 时的催化氧化效率即可达 80% 以上; 在 $1.6 \times 10^4 \sim 6.4 \times 10^4 h^{-1}$ 空速范围内, 零价汞氧化率保持在 90% 以上, 空速继续提高到 $1.92 \times 10^5 h^{-1}$ 时, 零价汞氧化率呈现线性下降趋势; 烟气中的 SO_2 与 Cl_2 反应会消耗 Cl_2 , Cl_2 体积分数低时对催化氧化反应抑制作用显著, 但 Cl_2 体积分数增至 5.0×10^{-6} 时对催化氧化反应的抑制效果较弱, 仅为 10% 左右。

关键词: 燃煤烟气; 零价汞控制; 锰氧化物; 氯气; 催化氧化

文章编号: 0253-2468(2009)07-1475-05 中图分类号: X131.1 文献标识码: A

Catalytic oxidation of elemental mercury in flue gas over $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$ with chlorine

QIAO Shaohua, LI Jianfeng, CHEN Jie, QU Zan, YAN Naiqiang*, JIA Jinping

School of Environmental Science & Engineering, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200240

Received 28 October 2008 received in revised form 15 February 2009; accepted 15 May 2009

Abstract In order to enhance the oxidation of elemental mercury to oxidized mercury, which is readily captured by flue gas desulfurization (FGD), $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$ was employed as the catalyst to convert Hg^0 to Hg^{2+} in the presence of chlorine gas. The main factors that affect the catalytic performance were investigated, such as the concentration of Cl_2 , temperature, space velocity and SO_2 . The results revealed that Cl_2 was more reactive than HCl over a wider temperature range, and more than 80% of Hg^0 oxidation efficiency was achieved with a 2.0×10^{-6} volume fraction of Cl_2 between 100~300°C. The oxidation efficiency remained over 90% while the space velocity increased from $1.6 \times 10^4 h^{-1}$ to $6.4 \times 10^4 h^{-1}$. The Hg^0 oxidation efficiency was inhibited by SO_2 when the volume fraction of Cl_2 was less than 2.0×10^{-6} , but the inhibitory effect was only 10% when Cl_2 was above 5.0×10^{-6} .

Keywords coal-fired flue gas; elemental mercury; manganese oxide (MnO_x); chlorine; catalytic oxidation

1 引言 (Introduction)

燃煤已成为主要的人为汞排放源, 各国正积极寻求加强控制燃煤汞排放的对策, 正在进行各种控制措施的深入研究 (Stephen *et al*, 2005)。目前, 最经济的烟气除汞措施是利用现有烟气净化装置, 如除尘和烟气脱硫 (FGD) 等, 结合吸附剂或催化氧化反应器等辅助措施以增强除汞效率。然而现有的控制措施主要作用于易被除尘装置捕集的颗粒汞

(Hg^p) 和易溶于水的气态二价汞 (Hg^{2+}) (赵毅等, 2008)。烟气中的气态零价汞 (Hg^0) 因其不溶于水而很难用常规方法进行有效脱除。因此, 促进 FGD 上游烟气中 Hg^0 的氧化是目前高效脱汞的关键以及难点所在 (Fujiwara *et al*, 2002)。

氯对烟气中汞的形态变化有很大的作用, 并有助于脱除以上形态的汞 (Kellie *et al*, 2005)。煤中含有的微量氯化物在高温燃烧时首先以氯原子的形态 (Cl) 释放, 然后在烟气降温过程中逐渐转化为

基金项目: 国家高技术研究发展计划 (863) 项目 (No 2007AA06Z340)

Supported by the National High-Tech Research and Development Program of China (No 2007AA06Z340)

作者简介: 乔少华 (1983-), 男; * 通讯作者 (责任作者), E-mail: nqyan@sjtu.edu.cn

Biography: QIAO Shaohua (1983-), male; * Corresponding author. E-mail: nqyan@sjtu.edu.cn

HC 和 Cl_2 (Cao *et al.*, 2005; Shao *et al.*, 1994), 并对零价汞进行氧化. 但研究者对 HCl 和 Cl_2 在零价汞氧化中哪一个起主导作用尚存争议 (Granite *et al.*, 2000). 有研究表明, HC 或 Cl_2 参与的纯气相反应对零价汞氧化的贡献量较小 (罗光前等, 2007), 当烟气中存在一定浓度的飞灰时, 有飞灰参与的多相反应对零价汞的氧化贡献量相对较大.

研究还表明, 飞灰的成分 (特别是部分金属氧化物的含量) 对零价汞的多相氧化反应影响较大, 其中, 元素锰的催化作用较为明显 (Kellie *et al.*, 2005). 考虑到飞灰中锰含量较低, 而且飞灰与烟气的接触不够充分, 难以取得理想的效果. 因此, 若将锰氧化物制备而成的催化剂用于烟气中零价汞的催化转化可望取得较好的效果. 另外, 本课题组前期实验还发现, 氯气在反应器壁的固相催化作用下, 对零价汞的氧化速率较 HC 快得多 (Yan *et al.*, 2005). 而有关锰氧化物 (MnO_x) 催化作用下氯气对零价汞的氧化反应特性及实际效果研究目前还未见报道. 为此, 本文将以前述锰氧化物 (MnO_x) 为催化剂, 并向模拟含汞烟气中添加 Cl_2 测试其催化氧化 Hg^0 的性能, 研究结果与以 HCl 为氧化剂的研究结果进行比较, 以期为该工艺的反应机理和实际应用提供一定的参考.

2 材料与方 法 (Materials and methods)

2.1 催化剂的制备

本研究采用由山东铝业公司研究院提供的情性 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 小球作为催化剂载体, 其粒径为 $(2.0 \pm 0.5) \mu\text{m}$, 比表面积 $S_{\text{BET}} = 0.392 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$. 因其比表面积较小, 可减小表面催化的影响而便于评价活性组分的催化效果.

催化剂采用浸渍法制备, 以硝酸锰为前驱体 (国药集团, $\text{Mn}(\text{NO}_3)_2$ 水溶液, 质量分数 50%). 将干燥过的 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 载体加入 0.92 mol L^{-1} 的硝酸锰溶液中, 于室温下浸渍. 浸渍后的固样自然干燥 12 h 转置马弗炉中 300°C 焙烧 1 h, 400°C 焙烧 3 h 即制得锰负载量质量分数为 1% 的 $\text{MnO}_x/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 催化剂.

2.2 催化剂的表征

样品表面各元素的结合能和相对含量比例采用美国 PHI 公司的 PHI 5000C ESCA X-ray 光电子能谱 (XPS) 进行分析 (铝/镁靶, 高压 14.0 kV, 功率 250 W), 并以 $\text{C } 1s = 284.6 \text{ eV}$ 为基准进行结合能校

正, 采用 XPS Peak 4.1 软件进行分峰拟合. 催化剂上的吸附态汞用 RA-915+ 汞分析仪 (Lumex Co., Russia) 结合热解析附件 RP-91C 进行分析.

2.3 实验装置

实验装置如图 1 所示, 主要由气体钢瓶、汞渗透蒸发器、催化反应器和在线测汞仪等组成. 汞渗透管浸于恒温油浴中, 在恒定流量载气下可提供浓度稳定的汞蒸气. 催化反应器由程序控温的管式电炉和 2 根石英玻璃管 (内径 10 mm, 长 400 mm) 组成, 分别填充 3.2 g 催化剂和氧化铝小球作为固定床反应器和空白参比, 通过玻璃三管三支切换气流. 模拟烟气由压缩空气、 SO_2 、 Cl_2 和 HCl 在常温下混合组成, 经质量流量计 (北京七星华创) 精确控制后流入反应器. 汞在线检测仪为 SG-921 型冷原子光谱测汞仪 (江苏江分), 并用 RA-915+ 汞分析仪进行校正. 废气经 KMnO_4 溶液吸收后排出.

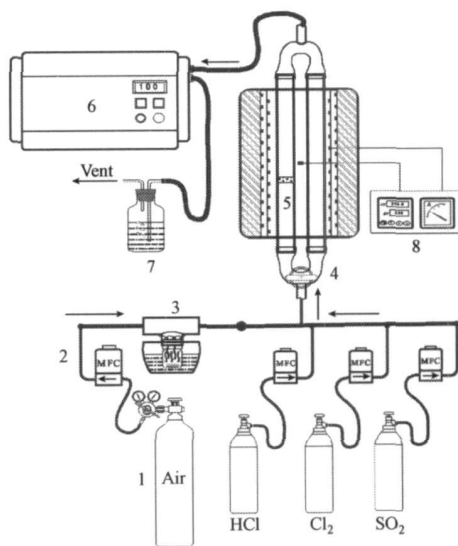


图 1 催化实验装置图 (1. 气体钢瓶; 2. 质量流量计; 3. 汞渗透蒸发器; 4. 玻璃三管三支; 5. 催化反应器; 6. 在线测汞仪; 7. 吸收瓶; 8. 温控仪)

Fig. 1 Diagram of the catalytic reaction system (1. gas cylinder; 2. mass flow meter; 3. mercury generator; 4. switch valve; 5. catalytic reactor; 6. mercury analyzer; 7. absorb in pingers; 8. temperature controller)

2.4 实验方法

据报道, 锰、钒和钴等金属的氧化物具有一定的汞吸附性能 (Granite *et al.*, 2000). 本实验旨在考察锰氧化物的催化性能, 因此, 催化剂在进行催化实验前均暴露于汞蒸气中, 直至出口浓度稳定以排除吸附对测试催化转化效率的干扰.

填充 3.2 g 催化剂于反应器中,并将其暴露于 $100\text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ 含 Hg^0 体积分数为 2.0×10^{-8} 的模拟烟气中 10 h 使出口零价汞浓度达到稳定后再通入体积分数为 $1.0\times 10^{-6}\sim 1.0\times 10^{-5}$ 的 Cl_2 进行催化实验.通过调节电炉温度考察温度对催化反应的影响;通过改变载气流量测试了空速 $1.6\times 10^4\sim 1.92\times 10^5\text{ h}^{-1}$ 对催化效果的影响;实验还添加了体积分数为 $5.0\times 10^{-4}\sim 2.0\times 10^{-3}$ 的 SO_2 来考察 SO_2 对催化反应的影响.

3 结果 (Results)

3.1 温度对零价汞氧化的影响

本试验在空速为 $3.2\times 10^4\text{ h}^{-1}$ 条件下测试了 $100\sim 500^\circ\text{C}$ 范围内温度对 Hg^0 催化氧化的影响,结果见图 2.从图 2 可以看出,在 $100\sim 300^\circ\text{C}$ 范围内 Hg^0 的催化氧化效率随温度增加而略有上升, 300°C 时氧化效率达到最大, Cl_2 体积分数为 2.0×10^{-6} 时即可获得 86.4% 的转化效率;随着温度继续增加,氧化效率略有下降, 500°C 时体积分数为 2.0×10^{-6} Cl_2 的处理效率降至 63.8% .与 HCl 相比, Cl_2 对温度的适应性更好,在 $100\sim 500^\circ\text{C}$ 范围均取得 60% 以上的氧化率;而 HCl 仅在 $300\sim 500^\circ\text{C}$ 高温段才能发挥其氧化活性.这是由于 Cl_2 可直接与 Hg^0 发生反应生成 $HgCl_2$, 亦可在催化剂作用下分解为 Cl 参与反应,且该反应很快;但是,反应温度过高将阻碍催化剂吸附、捕获零价汞,降低了反应物在催化剂表面的反应几率,且整个反应受到热力学平衡限制,从而导致氧化效率降低(詹靖等, 2004).而 HCl 自身没有氧化性,需要在一定温度下经 Deacon 途径活化生成具有氧化性的 Cl 和 Cl_2 后参与氧化反应 (Pan *et al.*, 1994), 此为间接反应且受温度制约(高洪亮

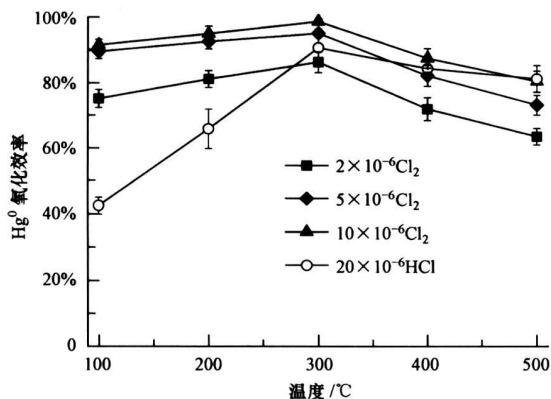


图 2 温度对 Hg^0 催化氧化效果的影响

Fig. 2 Effect of temperature on Hg^0 oxidation efficiency

等, 2007).

从图 2 还可以看出,增大 Cl_2 的体积分数有助于氧化效率的提高,如 300°C 时体积分数为 5.0×10^{-6} Cl_2 的氧化效率达 95.5% ,比 2.0×10^{-6} 时增大 10% .继续增大 Cl_2 体积分数对 Hg^0 的氧化效率影响较小,因为此时的提升幅度有限,通过增加浓度来提高处理效率并不经济.因此,经济适合的 Cl_2 体积分数为 $2.0\times 10^{-6}\sim 5.0\times 10^{-6}$.与 HCl 相比, Cl_2 具有更高的氧化活性和利用效率. $100\sim 300^\circ\text{C}$ 低温段 Cl_2 已充分活化,体积分数为 2.0×10^{-6} Cl_2 的氧化效率比体积分数为 2.0×10^{-5} HCl 的氧化效率还高; $300\sim 500^\circ\text{C}$ 高温段,体积分数为 5.0×10^{-6} Cl_2 的氧化效率与体积分数为 2.0×10^{-5} HCl 的氧化效率相当.由此可见,同等去除率条件下, Cl_2 的消耗量仅为 HCl 的 $1/10\sim 1/4$.

3.2 空速对零价汞氧化的影响

空速(进气气体的体积流量与催化剂体积之比, h^{-1})在 300°C 条件下对零价汞催化氧化的影响如图 3 所示.从图 3 可以看出, $1.6\times 10^4\sim 6.4\times 10^4\text{ h}^{-1}$ 空速范围内,零价汞转化率保持在 85% 以上;空速继续提高到 $1.92\times 10^5\text{ h}^{-1}$ 时,氧化率呈线性下降趋势.与 HCl 相比, $3.2\times 10^4\text{ h}^{-1}$ 之后 Cl_2 的处理效率随空速增大而减小的幅度比 HCl 小很多.这是由于 Cl_2 自身具有氧化性,可直接氧化 Hg^0 .因此,催化氧化零价汞所需的反应时间短,高空速条件下依然表现出良好的催化氧化性能,如体积分数为 1.0×10^{-6} Cl_2 在 $1.92\times 10^5\text{ h}^{-1}$ 空速下依然可以获得 92% 的去除率.这种性能是 HCl 所不具备的,因为 HCl 只能通过非均相反应等多步反应间接地氧化 Hg^0 .

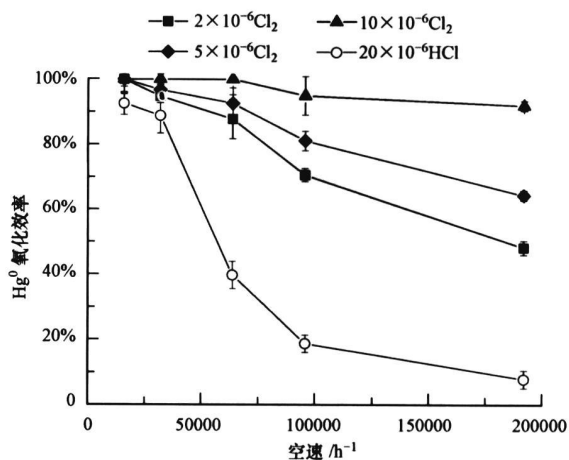


图 3 空速对 Hg^0 催化氧化效果的影响

Fig. 3 The effect of space velocity on Hg^0 oxidation efficiency

(HCl先形成氯气或氯原子后才能参与氧化 Hg^0), 该反应路径较长, 耗时较多. 因此, 在高空速条件下, 由于反应物不能得到充分的反应时间, 致使 $3.2 \times 10^4 h^{-1}$ 之后 Hg^0 的氧化效率大幅降低.

由于本试验体系具有非常高的催化氧化活性, 因此, 实验所选取的空速较常规催化剂略大, 达到 $1.60 \times 10^4 \sim 1.92 \times 10^5 h^{-1}$. 这说明该体系具有很大的工程应用潜力, 更高的空速意味着实际应用时所需的催化剂体积小, 并且烟气通过催化剂前后压降小, 对整个烟气流路影响较小.

3.3 SO_2 对零价汞氧化的影响

为利用 FGD 脱硫, 零价汞催化氧化工艺应置于 FGD 上游. 此时烟气中温度 $200 \sim 300^\circ C$, SO_2 和 NO_x 的浓度范围分别为 $500 \sim 5000 mg m^{-3}$ 和 $300 \sim 1000 mg m^{-3}$. 研究表明, SO_2 对催化剂可能具有毒害作用, 亦或抑制催化反应. SO_2 对零价汞催化氧化的影响如图 4 所示. 从图 4 可以看出, Cl_2 体积分数为 1.0×10^{-6} 时, SO_2 对催化反应的抑制效果显著, SO_2 体积分数为 5.0×10^{-4} 时, Hg^0 氧化效率降低到 40%; 随着 Cl_2 体积分数的提高, SO_2 对催化反应的抑制效果逐渐降低; Cl_2 体积分数为 2.0×10^{-6} 时, Hg^0 的氧化效率下降 20%, Cl_2 体积分数达到 10×10^{-6} 时, Hg^0 的氧化效率仅降低 10% 左右. SO_2 对催化反应的抑制作用可能是由于 SO_2 与 Cl_2 竞争催化剂表面的活性位, 从而减少了 Cl_2 与 Hg^0 反应的几率, 导致零价汞的去除效率降低. 但此处笔者认为 SO_2 通过反应 (1) 消耗部分 Cl_2 , 使实际参与反应的 Cl_2 减少. 此时, 若适量补充 Cl_2 即能相应提高氧化效率, 这一推测与实验结果较为一致, 由此可见反应 (1) 可能是

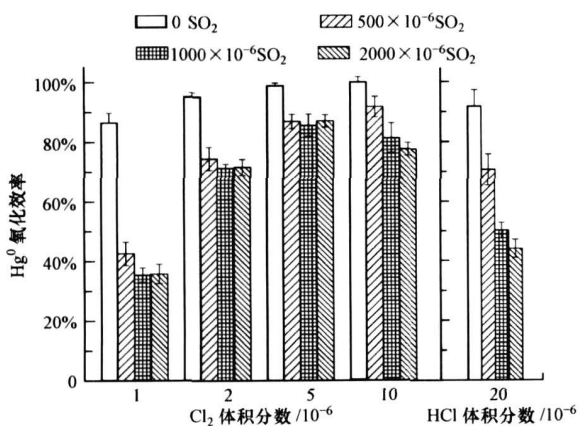
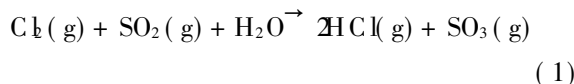


图 4 SO_2 对 Hg^0 催化氧化效率的影响

Fig 4 The effect of SO_2 on Hg^0 oxidation efficiency

SO_2 抑制 Cl_2 氧化 Hg^0 的主要途径.



HCl作为氧化剂抗 SO_2 干扰的能力较弱, 这可能是由于 SO_2 与 HCl竞争吸附活性位抑制 Deacon 过程, 而 HCl经 Deacon 途径生成的 Cl_2 会与 SO_2 反应被消耗掉, 这也是其抑制催化反应的途径之一. 因此, 本研究所选 $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$ 联合 Cl_2 的催化氧化体系能有效地避免 SO_2 的负面影响, 可广泛适用于燃烧低硫煤和高硫煤所产生的烟气脱汞处理.

3.4 催化剂的表征

本研究采用 X 射线光电子能谱 (XPS) 进行了催化剂表面汞的形态分析, 以期揭示 MnO_x 在汞吸附和催化中的作用. $Hg 4f$ 的 XPS 谱图如图 5 所示. 新鲜催化剂未受汞污染时, XPS 图中 (图 5a) 无明显的汞特征峰; 当吸附剂在汞蒸气中暴露 36 h 后 (图 5b), 在 $99 \sim 104 eV$ 处有明显的 $Hg 4f_{7/2}$ 能级峰. 这说明该催化剂对 Hg^0 有一定的吸附能力, 且吸附态汞并非以单一形态存在. 对原谱图进行分峰得到 $100.8 eV$ 和 $100.2 eV$ 两个能级峰, $100.8 eV$ 处可能是 Hg^{2+} (或 HgO), $100.2 eV$ 是弱吸附态汞, 其能级范围介于 Hg^0 ($99.5 eV$) 和 Hg^{2+} ($> 100.4 eV$) 之间, 这可能是汞被 MnO_x 化学吸附所形成的中间体 $[Hg-O-Mn-O_{x-1}]$.

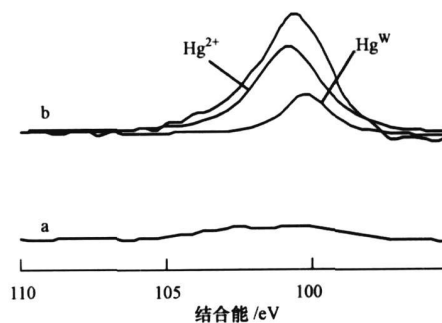


图 5 催化剂表面 $Hg 4f$ 的 XPS 图 (a 新鲜 $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$ 催化剂, b 催化剂吸附汞 36 h)

Fig 5 XPS spectra of the $Hg 4f$ peak on the catalyst (a fresh $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$, b. catalyst after adsorbing Hg^0 for 36 h)

通过 RA 915+ 汞分析仪结合 RP-91C 热解析附件对催化剂含汞量进行分析, 得到了催化剂上汞的解析曲线 (见图 6). 从图 6 可以看出, 解析曲线呈现明显的双峰特征且保留时间一致, 由此可推断出催化剂上的汞存在两种形态. 根据解析次序分析, 左峰代表弱吸附态汞, 右峰为强吸附态汞. 为了进一

步探明两种汞的形态, 将吸附汞 36h 的催化剂用 1 mol L^{-1} 稀硝酸浸渍并干燥后测其解析曲线, 发现强吸附态汞易被硝酸溶解, 而右峰所示的化合物微溶于稀硝酸. 这说明右峰为 Hg^0 或氧化态汞, 左峰为弱吸附态汞, 这与 XPS 分析结果一致. 将吸附汞 36h 的催化剂暴露于体积分数为 2.0×10^{-5} HCl 中, 并分别于 1h 和 2h 时取样, 热解析分析表明, 催化剂表面的弱吸附态汞极易被 HCl 脱除, 变为氧化态汞进入气相, 催化剂上的活性位得以再生, 并进入下一轮催化反应.

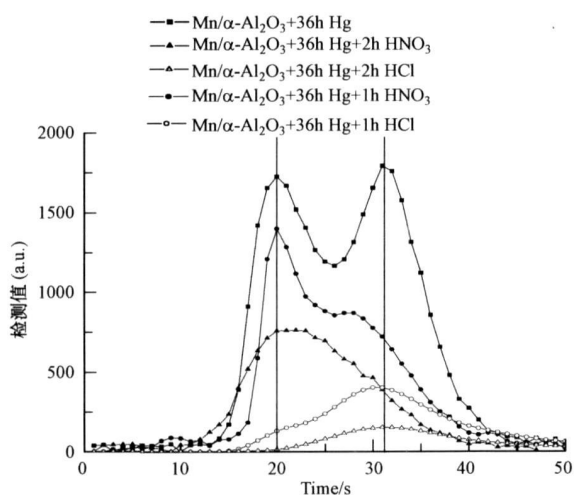


图 6 RA915+ 测得催化剂表面吸附态汞的热解析图谱

Fig. 6 Results of the adsorbed mercury analyzed by RA 915+ equipped with RP-91C

4 结论 (Conclusions)

1) $MnO_x/\alpha-Al_2O_3$ 协同 Cl₂ 催化氧化零价汞可获得较高的转化效率, Cl₂ 作为氧化剂对 Hg^0 的催化氧化效果在 100~300°C 范围内稳定高效, 其氧化活性比 HCl 更高, 使用温度范围更广.

2) 催化氧化体系活性较高, 在高空速 $1.6 \times 10^4 \sim 6.4 \times 10^4\text{ h}^{-1}$ 内可保持很高的氧化效率; 空速继续增加到 $1.92 \times 10^5\text{ h}^{-1}$ 时, 氧化效率呈线性下降趋势, 表明该催化剂具有很好的催化活性, 具有很强的工程应用潜力.

3) SO_2 对催化氧化效率具有一定的抑制作用, 提高 Cl₂ 浓度可有效抑制 SO_2 的负面影响, 说明体系能很好地适用于高硫煤和低硫煤所产生的烟气脱汞处理.

4) XPS 分析结果和热解析曲线较为一致, 表明催化剂表面的汞存在 Hg^{2+} 和弱吸附态两种状态.

责任作者简介: 晏乃强, 男, 教授, 博士生导师, 主要从事大气污染控制技术领域的教学与科研工作. 已发表相关论文 50 余篇, 其中 SCI/EI 论文 20 余篇.

参考文献 (References):

- Cao Y, Duan Y F, Shawn K, *et al.* 2005. Impact of coal chlorine on mercury emission and its speciation profiles and metal corrosion from a 100 MW utility PC Boiler with Cold ESP and Low- NO_x burner [J]. *Energy & Fuels*, 19(3): 842-854
- Fujivara N, Fujita Y, Tamura K, *et al.* 2002. Mercury Transformations in the Exhausts from lab-scale coal flames [J]. *Fuel*, 81(16): 2045-2052
- 高洪亮, 周劲松, 骆仲决, 等. 2007. 燃煤烟气中汞氧化的动力学机理 [J]. *动力工程*, 27(6): 975-979
- Gao H L, Zhou J S, Luo Z Y, *et al.* 2007. The Kinetic Mechanism of Mercury Oxidation in Coal Combustion Flue Gas [J]. *Journal of Power Engineering*, 27(6): 975-979 (in Chinese)
- Granite E J, Pennline H W, Hargis R A. 2000. Novel sorbents for mercury removal from flue gas [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 39(4): 1020-1029
- Kellie S, Cao Y, Duan Y F, *et al.* 2005. Factors affecting mercury speciation in a 100-MW coal-fired boiler with low- NO_x burners [J]. *Energy & Fuels*, 19(3): 800-806
- 罗光前, 姚洪, 徐明厚, 等. 2007. 均相系统中汞的氧化实验与热力学平衡计算 [J]. *工程热物理论*, 28(6): 1039-1042
- Luo G Q, Yao H, Xu M H, *et al.* 2007. Experiments and thermodynamic equilibrium of homogeneous oxidation of mercury [J]. *Journal of Engineering Thermophysics*, 28(6): 1039-1042 (in Chinese)
- Nksa S, Fujivara N. 2005. A predictive mechanism for mercury oxidation on selective catalytic reduction catalysts under coal-derived flue gas [J]. *Journal of Air & Waste Management Association*, 55(12): 1866-1875
- Pan H, Minet R, Benson S, *et al.* 1994. Process for converting hydrogen chloride to chlorine [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 33(12): 2996-3003
- Shao D, Hutchinson E J, Cao H, *et al.* 1994. Behavior of chlorine during coal pyrolysis [J]. *Energy Fuels*, 8(5): 399-401
- Yan N Q, Liu S H, Chang S G. 2005. Method for the study of gaseous oxidants for the oxidation of mercury gas [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 44(15): 5567-5574
- 詹靖, 徐明厚, 乔瑜, 等. 2004. 汞的均相氧化机理模型的比较与研究 [J]. *中国电机工程学报*, 24(1): 196-200
- Zhan J, Xu M H, Qiao Y, *et al.* 2004. Comparison and research on the mechanisms of homogeneous mercury oxidation [J]. *Proceedings of the Csee*, 24(1): 196-200 (in Chinese)
- 赵毅, 陈周燕, 汪黎东, 等. 2008. 湿式烟气脱硫系统同时脱汞研究 [J]. *环境工程学报*, 2(1): 64-69
- Zhao Y, Chen Z Y, Wang L D, *et al.* 2008. Study on simultaneous removal of SO_2 and Hg in wet flue gas desulfurization [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2(1): 64-69 (in Chinese)