

# 典型燃煤电厂汞的分布、迁移及释放特征研究

程泓<sup>1</sup>, 刘丙祥<sup>1,2,3\*</sup>, 冯新斌<sup>2</sup>, 查健锐<sup>4</sup>, 张学胜<sup>1</sup>, 高毅<sup>1</sup>

(1. 安徽大学 资源与环境工程学院, 合肥 230601; 2. 中国科学院地球化学研究所 环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002; 3. 煤层气资源与成藏过程教育部重点实验室(中国矿业大学), 江苏 徐州 221008; 4. 东南大学 能源与环境学院 源热转换及其过程测控教育部重点实验室, 南京 210096)

**摘要:** 采集安徽不同地区两典型燃煤电厂火力发电中使用的原煤及其产生的3类固体副产物(飞灰、炉渣及脱硫石膏样品)对4类样品中汞含量分别进行测定,以此揭示电厂燃煤过程中汞的分布、迁移及转化规律。此外,采用质量平衡及二次排放模型分别初步估算了电厂燃煤及燃煤固体副产物再利用过程中汞的两次释放特征。结果显示,汞在原煤、飞灰、炉渣及脱硫石膏样品中的含量分别为174~321 μg/kg、421~316 μg/kg、6~3 143 μg/kg和2 988~4 694 μg/kg;燃煤过程中有20.9%~23.6%的汞转移到飞灰中,32.6%~59.9%的汞赋存于脱硫石膏中,16.5%~37.4%的汞通过烟囱首次排入大气,仅有0.02%~9.2%的汞残留在炉渣中。二次排放模拟结果显示,燃煤电厂1#和2#中飞灰和脱硫石膏的高温再利用过程将向大气二次释放汞量96.0 kg/a和165.8 kg/a,两次年排放总量分别为189.5 kg和640.8 kg。本研究可为燃煤电厂汞的污染过程控制提供参考依据。

**关键词:** 燃煤电厂; 汞; 分布特征; 排放量

中图分类号: X142; X511 文献标识码: A 文章编号: 1672-9250(2018)01-0043-07 doi: 10.14050/j.cnki.1672-9250.2018.46.006

汞作为一种强挥发性元素<sup>[1]</sup>,在环境中具有持久性、剧毒性和生物累积性<sup>[2-3]</sup>的特点,并在微生物作用下可转化为毒性更强的甲基汞<sup>[4]</sup>,其污染能力在某些方面甚至超过持久性有机污染物<sup>[4]</sup>,已被我国和联合国环境规划署等诸多机构列为优先控制污染物。煤作为我国最主要的一次能源,其巨大的消耗量仍将会导致汞的大量排放,并带来严重危害。2013年我国正式签约实施《关于汞的水俣公约》<sup>[5]</sup>,同年,联合国环境规划署全球汞评估报告显示,在全球人为汞排放量中我国的贡献约三分之一<sup>[6]</sup>,其中燃煤电厂是我国最主要的人为汞排放源之一<sup>[7-9]</sup>。2015年中国统计年鉴揭示,火力发电占据我国现有水、火、核以及风力4种发电方式的78%,同年消耗原煤195 177.4万吨<sup>[10]</sup>。尽管汞在煤中含量较低,但火力发电厂中大量煤炭燃烧供能,仍可能将汞排放到环境中,燃煤电厂释放汞的生态风险不容忽视。

燃煤电厂汞主要源于原煤燃烧过程的释放,通

过系列烟气污染控制装置后大部分汞残留在燃煤固体副产物炉渣、飞灰及脱硫石膏中,剩余部分通过烟囱伴随烟气释放进入大气<sup>[7-8]</sup>(图1)。因此,燃煤中汞的分布、迁移及排放主要受控于入炉原煤煤质、燃烧锅炉类型以及污染控制装置等因素。近年来,伴随燃煤电厂静电除尘和脱硫等环保设备的逐步完善,烟气汞排放量呈现递减趋势<sup>[11]</sup>;相应地,更多的汞将被带入污染控制固体副产物中,这部分汞将会随炉渣、飞灰及脱硫石膏的处置及再利用过程发生二次迁移和释放。

目前,已有部分学者对燃煤电厂汞的迁移转化机理做了大量工作,并获得一定进展<sup>[9,12-18]</sup>,但对不同固体副产物在电厂燃煤中汞的分布、迁移、排放规律,及其在再利用过程中汞的二次释放特征的系统研究鲜有报道。因此,进一步明确汞在电厂燃煤过程中的分布情况、迁移转化规律,将有助于火力发电厂在燃煤前和燃煤中对汞进行有效合理的脱除,全面评估燃煤电厂汞释放的

收稿日期: 2017-03-26; 改回日期: 2017-06-09

基金项目: 国家重点基础研究发展计划(973)项目(2013CB43001); 国家自然科学基金项目(41428301、21607001); 安徽省高等学校自然科学基金重点项目(KJ2016A025、KJ2015A090); 煤层气资源与成藏过程教育部重点实验室(中国矿业大学)开放基金资助项目(2015-002); 安徽大学博士科研启动经费项目(J10113190090); 中国博士后科学基金(2017M622020)。

第一作者简介: 程泓(1995-),女,硕士研究生,研究方向为环境地球化学。E-mail: cxhshmily@163.com.

\* 通讯作者: 刘丙祥(1981-),男,博士,讲师,主要从事环境地球化学研究。Email: liubx@ustc.edu.cn.

污染特征。鉴于此,本文选择皖北、皖中地区颇具代表性的两家燃煤电厂,通过直接汞分析仪对两电厂燃煤过程的汞分布特征、迁移转化机理和赋存形态进行详细研究,并利用质量平衡模型和二次排放模型初步估算燃煤电厂汞的年排放总量,为相关部门有效降低汞的排放和研究污染控制过程提供参考依据。

## 1 材料与方 法

### 1.1 电厂基本情况及样品采集

针对安徽省 60 万机组主力机型燃煤电厂的区域分布,本次工作选择了皖中和皖北两地区具代表性的两家电厂(其锅炉对应编号分别为 1#和 2#),其锅炉及烟气污染控制装置的基本情况如表 1 所示。

按照电厂燃煤工况流程,依次于入炉前输煤带、锅炉底部的出渣口、静电除尘器出灰口及石膏真空皮带机上分别采集两电厂运行工况下原煤、炉渣、飞灰及脱硫石膏等固体样品,采样位置如图 1 所示。采样过程中为确保样品的承接性,在采集煤样 15 min 后再依次采集炉渣、飞灰及脱硫石膏样品,各类样品均采集 1 kg 并采集 3~5 个平行样,采集后迅速放入洁净的聚乙烯(PE)样品袋中密封,运至实验室冷冻干燥,于玛瑙研钵中研磨,过 200 目筛后,密封保存至干燥皿中备用。因采样条件所限,本次工作未对脱硫废水

和烟气进行采样分析。

表 1 电厂锅炉及其烟气污染控制技术的基本情况

Table 1 Boiler characteristics of the tested units

电厂锅炉编号	电厂所在地	装机容量 /MW	煤种	锅炉类型	烟气污染控制装置
1#	皖中	600×2	烟煤	煤粉炉	SCR+ESP+WFGD
2#	皖北	630×2	烟煤	煤粉炉	SCR+ESP+WFGD

注:SCR 为选择性催化还原脱硝;ESP 为静电除尘器;WFGD 为石灰石-石膏湿法脱硫

### 1.2 分析方法

#### 1.2.1 煤质分析

煤质分析在工业分析仪(型号为 SDTGA5 000 a)上完成,用自定义水及经典快灰的方法分析了两电厂原煤的水分、灰分、挥发分及发热量等;采用自动测硫仪(型号为 WS-S101)对原煤中全硫含量进行了测定。两电厂入炉原煤的煤质分析结果如表 2 所示:

表 2 煤质分析结果

Table 2 Proximate results of coal

电厂锅炉编号	水分 /%	灰分 /%	挥发分 /%	发热量 / [(MJ/kg)]	全硫 /%
1#	4.57	19.22	26.56	26.40	<d1
	4.49	19.33	26.71	26.41	
	4.68	19.15	26.87	26.39	
2#	2.56	28.41	25.77	23.30	0.6
	2.52	28.54	25.62	23.34	
	2.52	28.68	25.55	23.24	

注“< d1”表示低于检出限

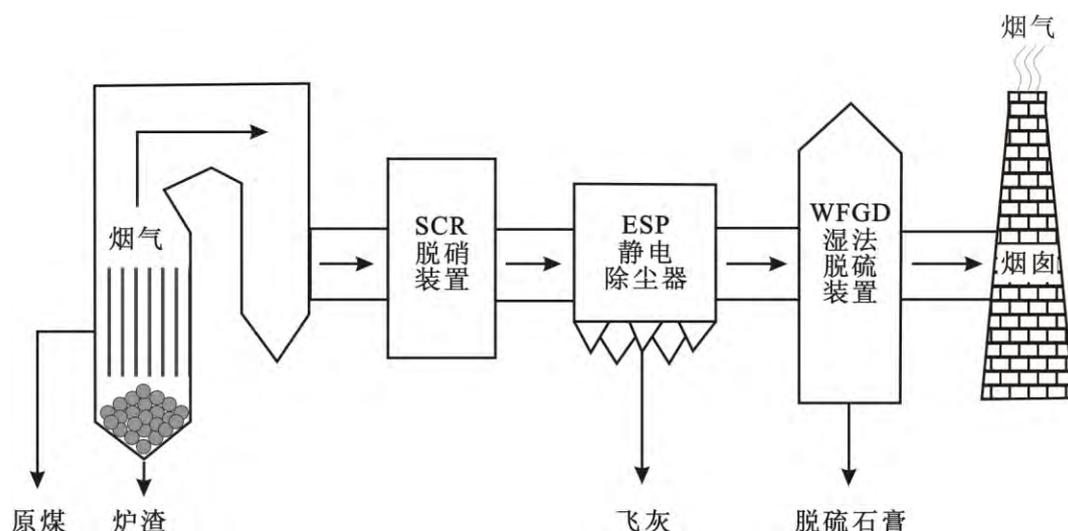


图 1 燃煤电厂采样位置示意图

Fig.1 Sampling locations in the tested power plants

### 1.2.2 汞元素分析

汞元素含量的测定在直接汞分析仪 ( 型号为 DMA-80) 上进行。测试条件如下: 测量范围 0 ~ 1 200 ng, 载气流量 200 mL/min, 转盘式自动进样器 40 位, 波长 253. 65 nm, 重复性  $RSD < 1. 5\%$ , 检出限 0. 001 5 ng。

### 1.2.3 质量控制/保证

从空白样、加标回收率以及标准物质分析三方面进行质量控制。土壤成分分析标准物质 GBW07403 ( GSS-3) 的 Hg 含量检测结果为 59 ~ 64  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 在标准证书参考值  $60 \pm 4 \mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[19]</sup> 的误差范围内; 空白样品 Hg 元素的检出浓度均低于最小检出限的 5%, 符合分析要求; Hg 加标回收率为 85. 8% ~ 103. 5% 符合美国 EPA 80% ~ 120% 的要求范围。

## 1.3 汞排放量计算方法

### 1.3.1 质量平衡模型

根据物料质量守恒定律, 进入燃烧系统的某元素总量应等于各类燃烧产物中该元素含量之和。依据图 1 所示的电厂燃煤过程以及此过程中汞元素的迁移特征, 建立燃煤过程的汞元素质量平衡方程, 如公式 (1) 所示, 即原煤中汞元素总量为飞灰、炉渣、脱硫石膏、烟气和脱硫废水中汞含量的总和。煤中汞的释放率 ( 即烟气中总汞量占燃煤中总汞量的百分比) 可按照公式 (2) 计算。

$$F_{\text{coal}} \cdot C_{\text{coal}} = F_{\text{ash}} \cdot C_{\text{ash}} \cdot m_{\text{a}} + F_{\text{slag}} \cdot C_{\text{slag}} \cdot m_{\text{b}} + F_{\text{gypsum}} \cdot C_{\text{gypsum}} + M_{\text{gas}} + M_{\text{WFGD-water}} \quad m_{\text{a}} = 0.8; m_{\text{b}} = 0.2 \quad (1)$$

$$Y = \frac{M_{\text{gas}}}{F_{\text{coal}} \cdot C_{\text{coal}}} \times 100 \quad (2)$$

式中,  $F_{\text{coal}}$  为日耗煤量,  $C_{\text{coal}}$  为原煤中汞含量,  $F_{\text{ash}}$  为日飞灰产生量,  $C_{\text{ash}}$  为飞灰中汞含量,  $F_{\text{slag}}$  为日炉渣产生量,  $C_{\text{slag}}$  为炉渣中汞含量,  $F_{\text{gypsum}}$  为日脱硫石膏产生量,  $C_{\text{gypsum}}$  为脱硫石膏中汞含量,  $M_{\text{gas}}$  为烟气中汞的日产量,  $M_{\text{WFGD-water}}$  为脱硫废水中汞的日产量,  $Y$  煤中汞的释放率,  $m_{\text{a}}$  和  $m_{\text{b}}$  为飞灰和炉渣的比例

系数<sup>[14]</sup>。

### 1.3.2 二次排放模型

燃煤固体副产物在进一步再利用过程中, 若经历高温或被水冲淋, 则其中赋存的汞会发生二次迁移释放进入大气、水体乃至土壤中<sup>[13]</sup>。由于炉渣是物理稳定性矿物, 在高温作用下, 其中有害物质释放量极少<sup>[20]</sup>, 故本次工作仅考虑飞灰及脱硫石膏中汞的二次排放情况。为估算燃煤固体副产物再利用过程中汞的二次排放量, 依据前人研究建立如下二次排放模型<sup>[21]</sup>, 如式 (3) 和 (4) 所示。

$$m_{\text{ash}}^2 = \sum m_{\text{ash}}^1 \cdot R_i \cdot k_i \quad (3)$$

$$m_{\text{gypsum}}^2 = \sum m_{\text{gypsum}}^1 \cdot R_i \cdot k_i \quad (4)$$

式中,  $m_{\text{ash}}^1$  指飞灰中汞的年输出量;  $m_{\text{gypsum}}^1$  指脱硫石膏中汞的年输出量;  $R_i$  表示不同利用途径所占的比例;  $k_i$  表示不同利用途径中汞的释放率; 下标  $i$  指燃煤固体副产物飞灰及脱硫石膏的不同处理方式, 包括用于水泥生产、商品混凝土、墙体材料、筑路、农业以及提取矿物等; 上标 1 和 2 分别表示一次排放和二次排放。

## 2 结果与讨论

### 2.1 汞的分布特征

分析结果表明 ( 表 3) 汞在两电厂原煤中的平均含量为 174 ~ 321  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 与前人报道的含量 ( 18 ~ 518  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ) 大体一致; 汞在飞灰中的平均含量为 316 ~ 421  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 也基本与前人报道的含量 ( 23 ~ 850  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ) 一致; 汞在 1# 锅炉炉渣中的平均含量为 6  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 也与前人报道的炉渣中汞的含量 ( 1 ~ 120  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ) 一致, 但 2# 锅炉炉渣中平均含量 ( 3 143  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ) 却大大超出这个范围。此外, 汞在两电厂脱硫石膏中的平均含量为 2 988 ~ 4 694  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 也远远高于前人的报道 ( 160 ~ 348  $\mu\text{g}/\text{kg}$ )<sup>[7-8, 22-23]</sup>。

表 3 样品中汞含量

Table 3 Contents of Hg in tested samples

								$\mu\text{g}/\text{kg}$
电厂锅炉 编号	原煤 Hg 含量	原煤 Hg 含 量均值	飞灰 Hg 含量	飞灰 Hg 含量均值	炉渣 Hg 含量	炉渣 Hg 含量均值	石膏 Hg 含量	石膏 Hg 含量均值
1#	188		423		5.0		5 015	
	153	174	416	421	5.6	6.0	4 523	4 694
	181		422		7.3		4 545	
	315		318		3 040		2 984	
2#	303	321	311	316	3 240	3 143	2 994	2 988
	318		318		3 151		2 986	

对比分析发现,2#电厂锅炉原煤中汞的含量明显高于1#电厂锅炉,且各副产物中汞含量差异明显。其中,汞在1#电厂锅炉4类样品中的分布特征与前人报道的基本一致,即脱硫石膏和飞灰中汞含量较高,炉渣中汞含量相对偏低的规律<sup>[7, 23-25]</sup>;然而2#电厂锅炉却出现汞在脱硫石膏和炉渣中含量较高,在飞灰中含量相对偏低的特点。造成两电厂不同固体副产物中汞分布特征差异的原因,可能与原煤的汞含量、煤质、燃烧状态以及烟气去除装置等因素有关。

研究表明,飞灰对汞的吸附能力主要取决于其粒径大小<sup>[26]</sup>、化学成分(表面官能团或卤化物会与 $Hg^0$ 反应生成 $Hg^{2+}$ )<sup>[26-27]</sup>、炉膛内悬浮滞留时间<sup>[28]</sup>以及未燃尽碳含量(对 $Hg^0$ 的吸附作用较强)<sup>[29]</sup>等因素。1#电厂锅炉的飞灰汞含量略高于2#,一方面可能与煤燃烧后飞灰表面的官能团有关,另一方面也可能与2#电厂锅炉的装机容量略大,燃烧更加充分且未燃尽碳含量较低有关。

1#电厂锅炉炉渣中汞的含量非常低,可能是由于煤中汞在高温燃烧区几乎全部转变为 $Hg^0$ 并停留在烟气中<sup>[17, 30]</sup>,致使炉膛底部炉渣中汞含量偏低。2#电厂锅炉炉渣中汞含量明显偏高,一方面可能与入炉原煤的汞含量较高有关,另一方面极有可能是锅炉内环境所致,因为若锅炉内部 $Hg^0$ 的浓度较高,而全部 $Hg^0$ 短时间内不能及时随烟气一起传输,伴随炉膛底部排渣口处温度的降低,将会导致 $Hg^0$ 在排渣口冷凝富集于炉渣表面,造成渣中汞含量富集。当然,对于这个问题的解释尚需后期的深入研究。

一般而言,湿法烟气脱硫装置(WFGD)主要脱除氧化态 $Hg^{2+}$ 。1#和2#电厂锅炉脱硫石膏中汞的含量之所以相对偏高,可能源于静电除尘装置ESP对颗粒态 $Hg^p$ 脱除效果不佳,导致进入WFGD装置的气态 $Hg^0$ 、氧化态 $Hg^{2+}$ 及未被ESP捕获的 $Hg^p$ 存在于飞灰或其它杂质中被超细粒吸附态 $Hg^p$ 大量富集所致。本次采集的脱硫石膏样品均呈灰黄色或暗灰色,也暗示脱硫石膏样品中有飞灰颗粒或其它杂质的大量存在。

综上,燃煤电厂汞的分布不仅受燃烧原煤汞含量的直接影响,也受煤质、燃烧状态、工况条件及烟气脱除效率等多种因素的共同制约。

## 2.2 汞的分配迁移

为研究电厂燃煤过程中汞的迁移转化规律,本

次工作采用前述的质量平衡模型来讨论汞在不同燃煤固体副产物中的迁移量和释放率。由于前人研究发现脱硫废水中汞的含量极低<sup>[7, 23]</sup>,故在本次模拟计算中假定 $M_{WFGD-water} \approx 0$ 。依据表3所示各类样品中汞的含量分布和表4中给出的电厂实际运行参数,计算煤中的汞经过燃烧后在固体副产物和气相中的迁移量和再次分配结果,如表5和图2所示。

结果显示两电厂燃煤过程中汞在飞灰、炉渣、脱硫石膏以及烟气中的迁移量分别为20.9%~23.6%、0.02%~9.2%、32.6%~59.9%及16.5%~37.4%,这些数据表明原煤中的汞在燃烧及烟气污染控制装置的作用下,于飞灰、炉渣、脱硫石膏和烟气中进行了再次迁移分配。汞在脱硫石膏中最为富集,在炉渣中最为亏损,最终约有16.5%~37.4%的汞将被释放进入大气。

表4 质量平衡模型计算参数

Table 4 Parameters used for calculation of the mass balance model t/d

锅炉编号	日燃煤量	飞灰日产量	炉渣日产量	石膏日产量
1#	9 000	1 100	260	200
2#	10 960	2 912.8	514	383.6

表5 汞在燃煤固体副产物及烟气中的迁移量

Table 5 Migration of Hg in fly ash, slag, gypsum and flue gas %

电厂锅炉编号	飞灰	炉渣	脱硫石膏	烟气(释放率)
1#	23.6	0.02	59.9	16.5
2#	20.9	9.2	32.6	37.4

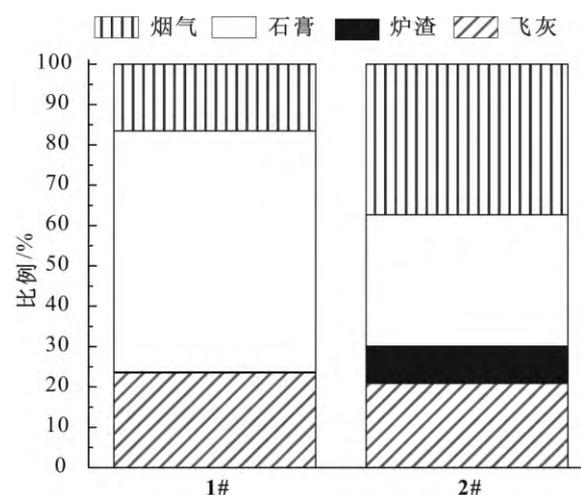


图2 Hg在烟气及燃煤固体副产物中的迁移量

Fig.2 Distribution of Hg in flue gas and coal-fired solid by-products

### 2.3 汞的释放特征

为评价燃煤电厂汞元素对大气环境的影响,本次工作通过燃煤电厂汞的一次排放量和二次排放量这两个排放参数对其年释放总量进行了模拟计算,结果如下。

#### 2.3.1 一次排放量

利用表 3 样品汞含量测试结果及表 4 质量平衡模型计算参数,计算获得两电厂燃煤过程中原煤汞的输入量及不同副产物中汞的排放输出量,结果如表 6 所示。本次研究认为燃煤电厂汞的一次排放量是排放进入大气的燃煤副产物,即烟气中汞的输出量。在假定两电厂年运行时间各为 360 天的条件下,获得 1#和 2#电厂锅炉中汞的一次年排放量分别为 93.6 kg/a 和 475.2 kg/a。

表 6 燃煤电厂汞的输入量与输出量

电厂锅炉 编号	原煤中汞 的输入量	不同类型副产物中汞的输出量			
		炉渣	飞灰	脱硫石膏	烟气
1#	1.57	0.001 3	0.37	0.94	0.26
2#	3.52	0.323 1	0.74	1.15	1.32

#### 2.3.2 二次排放量

汞的二次排放量是指燃煤固体副产物(飞灰和脱硫石膏)通过再利用过程向大气再次释放的汞,其释放总量的估算主要依据飞灰和脱硫石膏的综合利用率及其二次利用过程中汞的释放率来完成。由于无法获得 2015 年飞灰和脱硫石膏的利用途径及分配比例,本次工作将使用 2014 中国资源综合利用年度报告给出的部分数据(表 7)<sup>[31]</sup>代替计算。由表 7 可知,飞灰和脱硫石膏在我国主要用于生产水泥和制备墙体材料等方面。

表 7 电力燃煤行业副产物的利用途径比例

应用方式	水泥生产	商品混凝土	墙体材料	筑路	农业	提取矿物
飞灰	42	16	29	5	4	4
脱硫石膏	68	-	32	-	-	-

注“-”表示此项数据不存在

本次计算将参考前人对汞在飞灰和脱硫石膏再利用过程中释放率问题的报道。分析前人工作发现,飞灰和脱硫石膏再利用过程中的高温过程是控制汞二次释放率大小的关键因素。其中,汞在飞灰高温煅烧(需达到 1 320 °C<sup>[32]</sup>)生产水泥过程中

的温度升至大约 500 °C 时,向大气的释放量大于 92%<sup>[33]</sup>;飞灰制砖的过程中(温度一般 1 000 ~ 1 100 °C),汞向大气的释放率为 28%<sup>[34]</sup>。此外,脱硫石膏在生产石膏墙板的高温(200 ~ 400 °C<sup>[35]</sup>)过程中,汞的释放率大约 31%<sup>[13]</sup>。

然而,飞灰和脱硫石膏在没有经历高温过程的各种用途中,存在于二者之中的汞将会全部进入产品之中。比如,飞灰用于制造商品混凝土、充当路基回填材料以及提取矿物等过程<sup>[31]</sup>;脱硫石膏用于制造水泥缓凝剂等过程<sup>[36]</sup>,则可认为不会发生汞的二次释放。

在两电厂汞的二次排放量估算中,依据表 6 数据获得 1#和 2#电厂锅炉产生的飞灰与脱硫石膏中汞的年输出量分别为 133.2 kg/a、266.4 kg/a 和 338.4 kg/a、414 kg/a。这些数据将分别充当飞灰和脱硫石膏在再利用过程中汞二次排放的年输入量进行计算。利用前人阐述的飞灰和脱硫石膏在不同再利用高温过程中汞的释放率<sup>[13, 33-34]</sup>,以及表 7 中不同副产物的利用途径比例,通过前述的二次排放模型公式(3)和(4)模拟获得 1#和 2#电厂锅炉中飞灰和脱硫石膏中汞的二次年排放量分别为 62.3 kg/a、124.6 kg/a 和 33.6 kg/a、41.1 kg/a。综上,燃煤中和固体副产物再利用过程导致 1#和 2#电厂锅炉汞的两次年排放总量分别为 189.5 kg/a 和 640.8 kg/a。

## 3 结 论

1) 原煤中的汞经燃烧和烟气污染控制装置再分配后,炉渣中的汞为 0.02% ~ 9.2%,飞灰中的汞为 20.9% ~ 23.6%,脱硫石膏中的汞为 32.6% ~ 59.9%,只有大约 16.5% ~ 37.4%的汞通过烟囱被排放进入大气。

2) 质量平衡模型和二次排放模型估算结果表明,1#和 2#电厂锅炉中飞灰和脱硫石膏的高温再利用过程导致向大气每年二次释放汞为 96.0 kg 和 165.8 kg,两次年排放汞总量分别为 189.5 kg 和 640.8 kg。

### 致谢

本实验的现场采样工作由安徽大学资源与环境工程学院陈勇同学协助完成,也得到国网安徽省电力公司电力科学研究院高工罗超博士和中国能源建设集团安徽省电力设计院陈自祥博士的热情指导和帮助,在此深表谢意。

## 参 考 文 献

- [1] 冯新斌,尹润生,俞奔,等.汞同位素地球化学概述[J].地学前缘,2015,22(5):124-135.
- [2] Li J F, Yan N Q, Qu Z, et al. Catalytic oxidation of elemental mercury over the modified catalyst Mn/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> at lower temperatures[J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44(1):426-31.
- [3] 程金平,王文华,瞿丽雅,等.贵州汞污染地区大米神经毒性基因水平研究[J].中国环境科学,2004,24(6):743-745.
- [4] 冯新斌,陈玖斌,付学吾,等.汞的环境地球化学研究进展[J].矿物岩石地球化学通报,2013,(5):503-530.
- [5] Giang A, Stokes L C, Streets D G, et al. Impacts of the minamata convention on mercury emissions and global deposition from coal-fired power generation in Asia[J]. Environmental Science & Technology, 2015, 49(9):5326-35.
- [6] Futsaeter G, Wilson S. The UNEP global mercury assessment: Sources, emissions and transport [C]. E3s Web of Conferences, 2013.
- [7] Burmistrz P, Kogut K, Marczak M, et al. Lignites and subbituminous coals combustion in Polish power plants as a source of anthropogenic mercury emission[J]. Fuel Processing Technology, 2016, 152:250-258.
- [8] 唐黎,刘鸿雁,冯新斌,等.一座高灰无烟煤电厂的大气汞排放特征[J].生态学杂志,2016,35(5):1351-1357.
- [9] Park K S, Seo Y C, Lee S J, et al. Emission and speciation of mercury from various combustion sources[J]. Powder Technology, 2008, 180(1):151-156.
- [10] 中华人民共和国国家统计局.中国统计年鉴-2015[EB/OL]. <http://www.stats.gov.cn/tjsj/ndsj/2015/indexch.htm>.
- [11] 高炜,支国瑞,薛志钢,等.1980—2007年我国燃煤大气汞、铅、砷排放趋势分析[J].环境科学研究,2013,26(8):822-828.
- [12] Chen B Y, Liu G J, Sun R Y. Distribution and fate of mercury in pulverized bituminous coal-fired power plants in coal energy-dominant Huainan City, China[J]. Archives of Environmental Contamination & Toxicology, 2016, 70(4):1-10.
- [13] Liu X L, Wang S X, Zhang L, et al. Speciation of mercury in FGD gypsum and mercury emission during the wallboard production in China[J]. Fuel, 2013, 111(9):621-627.
- [14] Quan T, Liu G J, Yan Z C, et al. Distribution and fate of environmentally sensitive elements (arsenic, mercury, stibium and selenium) in coal-fired power plants at Huainan, Anhui, China[J]. Fuel, 2012, 95(1):334-339.
- [15] Wang S X, Zhang L, Li G H, et al. Mercury emission and speciation of coal-fired power plants in China[J]. Atmospheric Chemistry & Physics Discussions, 2010, 10(3):1183-1192.
- [16] Wang Y, Shi L, Chiang P C, et al. Emission and species distribution of mercury during thermal treatment of coal fly ash[J]. Aerosol & Air Quality Research, 2016, 16(7):1701-1712.
- [17] 于丽新,曲莹军,贾俊新,等.基于实测的燃煤电厂汞迁移转化规律研究分析[J].环境科学与技术,2014,(S2):463-466+470.
- [18] 赵毅,郝荣杰.燃煤电厂汞的形态转化及其影响因素研究进展[J].热力发电,2010,(1):6-10.
- [19] 标准物质证书(GBW07403\_20160301)[EB/OL]. <http://www.ncrm.org.cn/Web/Ordering/MaterialDetail?autoID=7411>.
- [20] Xie J, Wu S P, Zhang L L, et al. Evaluation the deleterious potential and heating characteristics of basic oxygen furnace slag based on laboratory and in-place investigation during large-scale reutilization[J]. Journal of Cleaner Production, 2016, 133:78-87.
- [21] 惠霖霖,张磊,王祖光,等.中国燃煤电厂汞的物质流向与汞排放研究[J].中国环境科学,2015,35(8):2241-2250.
- [22] 葛业君,董众兵,郑刘根,等.淮南市电厂和炉渣中汞的分布规律[J].环境化学,2009,28(3):453-454.
- [23] 唐念,盘思伟.大型煤粉锅炉汞的排放特性和迁移规律研究[J].燃料化学学报,2013,41(4):484-490.
- [24] 樊保国,刘军娥,乔晓磊,等.电厂煤粉锅炉汞排放特性研究[J].环境污染与防治,2014,36(7):61-63.
- [25] 张迪生,谢馨.南京某燃煤电厂汞的排放特点及分布特征[J].环境监测管理与技术,2014,(3):64-67.
- [26] Rompalski P, Leokadia R. Effect of the temperature of different combustion zones in the boiler grate on changes in physical and chemical parameters of bituminous coal and slags[J]. Journal of Sustainable Mining, 2016, 15(2):73-83.
- [27] Li H. Content and distribution of trace elements and polycyclic aromatic hydrocarbons in fly ash from a coal-fired CHP plant[J]. Aerosol & Air Quality Research, 2014, 14(4):1179-1188.
- [28] 吕俊复,冯俊凯.煤粉炉中燃烧产物停留时间及其对飞灰含碳量的影响[J].锅炉技术,2005,36(6):21-24.
- [29] Hower J C, Senior C L, Suuberg E M, et al. Mercury capture by native fly ash carbons in coal-fired power plants[J]. Progress in Energy & Combustion Science, 2010, 36(4):510-529.
- [30] Clarke L B. The fate of trace elements during coal combustion and gasification: An overview [J]. Fuel, 1993, 72(6):731-736.
- [31] 国家发展和改革委员会.中国资源综合利用年度报告(2014)[EB/OL]. [http://www.sdpc.gov.cn/gzdt/201410/t20141009\\_628795.html](http://www.sdpc.gov.cn/gzdt/201410/t20141009_628795.html), 2014-10-09.
- [32] 焦有宙,李慧灵,赵迎芳,等.粉煤灰与低品位石灰石制备Q相水泥熟料的试验研究[J].实验技术与管理,2009,(3):53-57.
- [33] 梁红姬.燃煤飞灰中汞的赋存状态及其在热处理过程中释放特征的研究[D].广州:华南理工大学,2014.
- [34] 刘青,石林.飞灰在热处理过程中汞的逸出特性[J].化工进展,2010,29(6):1154-1158.
- [35] 殷立宝,高正阳,钟俊,等.燃煤电厂脱硫石膏汞形态及热稳定性分析[J].中国电力,2013,(9):145-149.
- [36] 高正阳,吴培昕,范元周,等.湿法烟气脱硫系统脱硫石膏的汞释放特性[J].华北电力技术,2014,(7):37-41.

## Distribution , Migration and Emission of Mercury in Representative Coal-fired Power Plants in China

CHENG Hong<sup>1</sup> , LIU Bingxiang<sup>1 2 3</sup> , FENG Xinbin<sup>2</sup> , ZHA Jianrui<sup>4</sup> ,  
ZHANG Xuesheng<sup>1</sup> , GAO Yi<sup>1</sup>

( 1.School of Resources and Environmental Engineering , Anhui University , Hefei 230601 , China; 2.State Key Laboratory of Environmental Geochemistry , Institute of Geochemistry , Chinese Academy of Sciences , Guiyang 550002 , China; 3.Key Laboratory of Coalbed Methane Resources and Reservoir Formation Process , Ministry of Education ( China University of Mining and Technology ) , Xuzhou , Jiangsu 221008 , China; 4.Key Laboratory of Energy Thermal Conversion and Control of Ministry of Education , School of Energy and Environment , Southeast University , Nanjing 210096 , China)

**Abstract:** Feed coal and three types of solid by-products of coal ( including the slag , fly ash and WFGD gypsum) in two representative coal-fired power plants in Anhui Province , China were collected , and mercury contents and speciation in four types of samples were determined using direct mercury analyzer , then mercury distribution and transformation rules during the coal-fired process were discussed. In addition , twice mercury release characteristics in coal and its solid by-products were estimated using mass balance model and the re-emission model , respectively. Results show that mercury contents in feed coal , slag , fly ash and WFGD gypsum are 174~321  $\mu\text{g}/\text{kg}$  , 421~316  $\mu\text{g}/\text{kg}$  , 6~3 143  $\mu\text{g}/\text{kg}$  and 2 988~4 694  $\mu\text{g}/\text{kg}$  , respectively. Mass balance model suggests that shares of Hg in fly ash , WFGD gypsum and flue gas in 1# and 2# power plants , are 20. 9~23. 6% , 32. 6~59. 9% and 16. 5~37. 4% , respectively and only 0. 02~9. 2% of Hg exists in the slag. Re-emission model calculation simulation results display that during the high temperature re-utilization using byproducts ( fly ash and WFGD gypsum) from 1# and 2# coal-fired power plants to produce cement and gypsum wallboard , the mercury emitted to air are about 96. 0 kg/a and 165. 8 kg/a , respectively. Combined with two calculations for the mercury emission , this work obtained that the total Hg released to air are about 189. 5 kg/a and 640. 8 kg/a for 1# and 2# power plants , respectively. The present study could provide reference for pollution control of mercury during the power generation process of coal-fired power plants.

**Key words:** coal-fired power plant; mercury; distribution; emission