

贵阳市 2001/2002 和 2009/2010 两个年度 大气气态总汞浓度变化特征及其对区域 大气汞排放强度的指示意义

付学吾, 冯新斌

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 550081

摘要: 本研究对贵阳市 2001/12~2002/11 和 2009/12~2010/11 两个年度大气气态总汞分别进行了为期 1 年的连续观测。结果显示, 贵阳市大气气态总汞几何平均值由 2001/2002 年度的 $7.45 \pm 12.80 \text{ ng/m}^3$ 升高到 2009/2010 年度的 $8.88 \pm 7.06 \text{ ng/m}^3$, 升高幅度为 19%。2009/2010 年度大气气态总汞 (TGM) 浓度的升高主要出现在冬季、秋季和春季, 而其夏季的 TGM 浓度和 2001/2002 年度基本相当。另外, 2009/2010 年度白天 TGM 浓度较 2001/2002 年度的升高幅度 (33%) 明显大于夜间 (7%)。贵阳市 TGM 升高的现象与贵阳市和贵州省人为源汞释放量增强的趋势是一致的, 说明区域人为源汞释放的增加是贵阳市大气汞含量升高的首要原因。此外, 中国内陆和中南半岛人为源汞释放强度的增强可能也是不可忽视的原因。

关键词: 大气气态总汞; 长期变化; 人为源; 城市

中图分类号: P595 文章编号: 1007-2802(2015)02-0242-08 doi: 10.3969/j.issn.1007-2802.2015.02.003

Variations of Atmospheric Total Gaseous Mercury Concentrations for the Sampling Campaigns of 2001/2002 and 2009/2010 and Implications of Changes in Regional Emissions of Atmospheric Mercury

FU Xue-wu, FENG Xin-bin

State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry,
Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550081, China

Abstract: The long-term measurement of atmospheric mercury is an important indicator for understanding the temporal variation of regional Hg emissions. We carried out two one-year-long continuous measurements of the atmospheric total gaseous mercury (TGM) in Guiyang in the campaigns of 2001/2002 and 2009/2010. The geometric mean of TGM concentrations in Guiyang increased from $7.45 \pm 12.80 \text{ ng/m}^3$ in 2001/2002 to $8.88 \pm 7.06 \text{ ng/m}^3$ in 2009/2010, showing an increasing rate of 19%. The increasing of atmospheric TGM concentrations mainly occurred in winter, autumn, and spring, whereas the levels of TGM in summer for the two campaigns were consistent. Also, the increasing rate of atmospheric TGM from 2009/2010 to 2001/2002 was much higher during day-time (33%) than during night-time (7%). The increasing trend of atmospheric TGM in Guiyang agrees well with the anthropogenic mercury emissions in Guiyang as well as in the Guizhou province, indicating the increasing of regional anthropogenic mercury emissions played an important role. In addition, impact of increasing emissions of atmospheric mercury in the mainland of China and the Indo-China Peninsula, which may contribute to the increasing TGM via long-range atmospheric transports, cannot be ruled out.

Key words: atmospheric total gaseous mercury; long-term variation; anthropogenic sources; urban area

收稿日期: 2014-10-30 收到 2014-12-05 改回

基金项目: 国家自然科学基金项目(41273145, 41473025)

第一作者简介: 付学吾 (1981-), 男, 博士, 副研究员。研究方向: 汞的环境和生物地球化学, 获第 15 届侯德封奖。E-mail: fuxuewu@mail.gyig.ac.cn.

汞是毒性最强的重金属污染物之一,已被中国和联合国环境规划署、世界卫生组织、欧盟及美国环境保护署等机构列为优先控制污染物。由于其特殊的物理化学性质,汞是唯一主要以气态存在于大气环境中的重金属污染物。大气汞依据物理化学性质和观测方法主要分为气态单质汞、活性气态汞和颗粒态汞,而气态单质汞和活性气态汞统称气态总汞。在通常的大气环境中,气态单质汞是大气汞最主要的构成形态(>90%)。气态单质汞具有较低的水溶性和干沉降速率,且具有化学反应惰性强的特点,其在大气中的居留时间通常可达0.5~2 a (Schroeder and Munthe, 1998),是公认的一种全球性污染物。

人为活动和自然过程均可以向大气释放汞。工业革命以来,随着人为活动直接汞释放和再释放(先前沉降大气汞的再释放)的增强,目前全球对流层大气汞的平均含量较工业革命前约增加了3倍(Lindberg *et al.*, 2007)。中国是全球最大的人为源汞排放国,尽管存在很大不确定性,学术界普遍认为中国人为源每年的大气汞排放量在500~1100 ng/m³ (Streets *et al.*, 2005; Wu *et al.*, 2006; Liang *et al.*, 2013),约占全球人为源总排放量的1/4至1/2 (Pacyna *et al.*, 2010)。中国的大气汞浓度的升高对全球汞的污染以及生物地球化学循环也起着至关重要的作用。为了弄清中国的大气汞污染状况,近年来中国开展了一批大气汞长期连续观测的工作(Feng *et al.*, 2004; Fu *et al.*, 2008, 2010, 2012a, 2012b; Zhu *et al.*, 2012; Chen *et al.*, 2013; Zhang *et al.*, 2013)。这些观测数据为科学认识中国的大气汞污染水平,验证区域性大气汞释放源分布和释放强度,研究长距离大气汞的传输过程提供了重要依据。然而,目前国内还未见有关大气汞浓度随时间变化趋势的研究。

本研究依据贵阳市2001/12-2002/11和2009/12-2010/11两个年度大气气态总汞(TGM)的连续观测,分析了贵阳市近8年来(TGM)的变化趋势,探讨了(TGM)浓度变化的影响因素。

1 实验方法

1.1 贵阳市和采样点概况

贵阳市位于中国云贵高原东部,属于亚热带湿润型和气候,年均气温15.3℃,年均降雨量1200 mm。总面积约为8030 km²,平均海拔约1000 m。2002年全市人口340.44万人,到2010年增加到432.93万人。

采样点(106.72°E, 26.57°N, 1041 malt, 图1)位于贵阳市观水路中国科学院地球化学研究所,主城区东南部,周边主要为居民区和商业区。贵阳市几个大型的工业源主要位于采样点的东南、西南和西北。其中贵阳特殊钢公司(始建于1958年,2013年停产)位于采样点东南约1.5 km; 国电贵阳发电厂(始建于1975年,2012年厂区关停)和贵州乌江水泥有限责任公司(始建于1958年)分别位于采样点西南5和7 km。其他几个大型的工业源包括贵州铝厂(始建于1958年)、贵州铝厂发电厂(始建于1958年)和贵阳水泥有限责任公司(始建于1958年)位于采样点西北15~20 km。

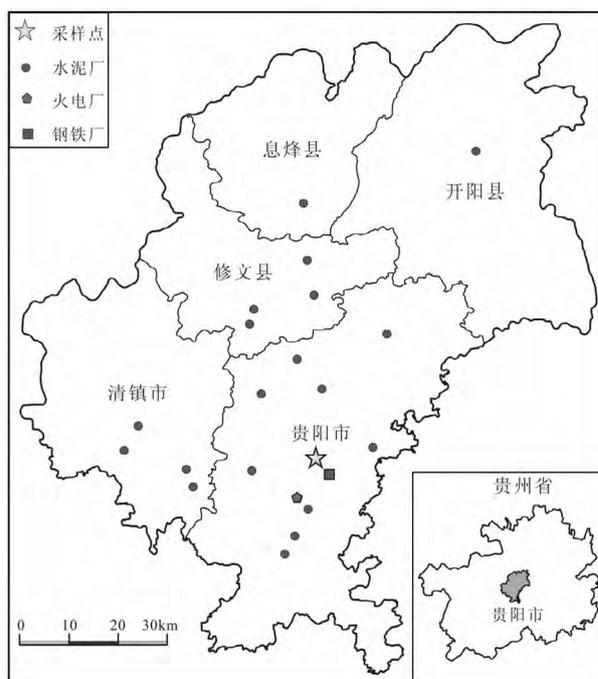


图1 采样点位置及贵阳市大型点源分布图

Fig.1 Locations of sampling sites and large anthropogenic Hg sources in Guiyang

1.2 大气气态总汞观测

大气气态总汞采用加拿大产 Tekran 2537 自动大气汞分析仪进行连续在线观测。检出限低于0.1 ng/m³。Tekran 2537 自动大气汞分析仪采用金捕汞管采集大气的痕量气态汞,被金捕汞管采集的汞经热解法(500~550℃)被释放出并由高纯氦载气携带至检测池进行冷原子荧光光谱分析。该套设备安装有2个金捕汞管,当一个采集样品时,另一个则进行分析,从而保证仪器连续的采集和分析大气样品。采样时间分辨率设为5 min,采样流速为1.0 L/min(标准状况流速)。本研究只分析大气中气态总汞浓度,大气颗粒物由安装在采样管进气口

的聚四氟乙烯滤膜(孔径为 0.2 μm) 清除。观测数据质量由仪器内部汞源自动校正和外部汞源 (Tekran 2505) 手动校正 2 种方法进行控制,其中内部汞源自动校正周期为 25 h,外部汞源手动校正周期为 3~4 月,外部汞源校正和内部汞源校正结果重现性在 95% 以上。

本研究分 2 个年度在采样点分别开展了连续 1 年的大气气态总汞连续观测。第 1 个观测年度为 2001 年 12 月 1 日至 2002 年 11 月 30 日(2001/2002 年度),第 2 个观测年度为 2009 年 12 月 1 日至 2010 年 11 月 30 日(2009/2010 年度)。两个年度的观测均采用同样的观测设备和观测方法,以保证数据对比的科学性。

1.3 气象数据和后向轨迹

2001/2002 年度气象数据包括风向、风速、大气温度等的观测采用美国产 GL300B 微型气象工作站,而 2009/2010 则采用美国产 HOBO U30 微型气象工作站进行观测。两个采样期间微型气象工作站的数据采样间隔均为 5 min。

贵阳市 240 h 后向轨迹的模拟采用的是美国国

家海洋和大气管理局提供的全球栅格气象数据 (Global Data Assimilation System, GDAS1) 和 Hysplit 4.0 模型。气团传输的结点是采样点上空约 500 m,每天计算一条轨迹。

2 结果和讨论

2.1 2001/2002 和 2009/2010 年度 TGM 整体分布特征

图 2 显示的是贵阳 2001/2002 和 2009/2010 两个年度 TGM 的小时平均浓度的分布特征。整体而言,两个年度的大气气态总汞波动均十分明显,其中 2001/2002 年度 TGM 范围为 1.62~550 ng/m^3 ,2009/2010 年度的范围为 1.59~223 ng/m^3 ,变化范围均超过了 2 个数量级。两个年度的 TGM 小时平均浓度均符合典型的对数正态分布特征(图 3),因此本研究主要采用几何平均值讨论 2 个年度 TGM 浓度的变化特征。

由表 1 可知,2001/2002 年度 TGM 几何平均浓度为 $7.45 \pm 12.80 \text{ ng}/\text{m}^3$,而 2009/2010 年度为 $8.88 \pm 7.06 \text{ ng}/\text{m}^3$,较 2001/2002 年度升高了 19%。同

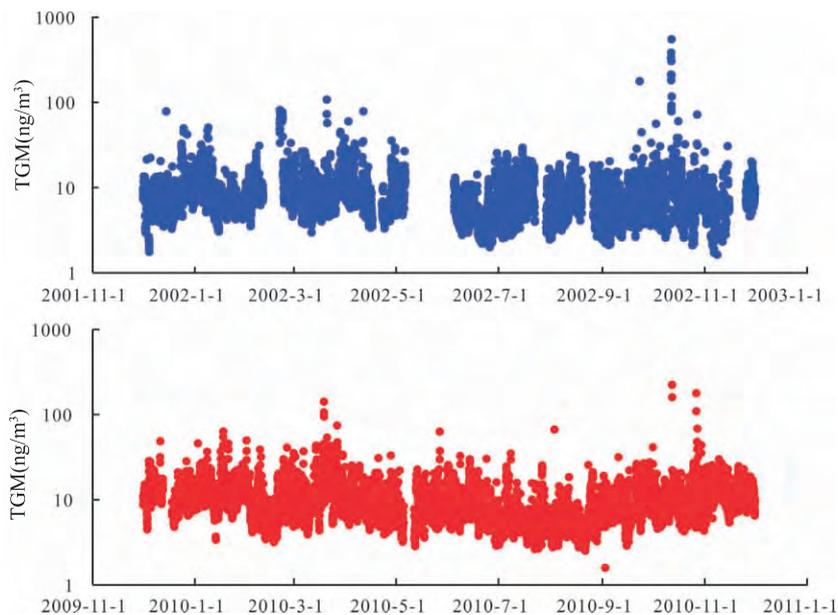


图 2 贵阳市 2001/2002 和 2009/2010 两个年度大气气态总汞小时平均浓度序列图

Fig.2 Time series of atmospheric total gaseous mercury (TGM) for the campaigns of 2001/2002 and 2009/2010 in Guiyang

表 1 贵阳市 2001/2002 和 2009/2010 两个年度大气气态总汞浓度统计结果

Table 1 Statistical summary of atmospheric total gaseous mercury (TGM) concentrations for the campaigns of 2001/2002 and 2009/2010 in Guiyang

观测年度	大气气态总汞浓度(ng/m^3)									
	几何平均值	平均值	标准偏差	10 th	25 th	中值	75 th	90 th	99 th	范围
2001/12—2002/11	7.46	9.10	12.85	3.86	5.10	7.25	10.33	14.58	33.47	1.62~550.1
2009/12—2010/11	8.88	10.17	7.06	4.68	6.30	8.84	12.32	16.62	30.84	1.59~223.4

时,2009/2010 年度 TGM 平均值和中值也较 2001/2002 年度出现了明显的升高,其中平均值约升高了 12%,中值约升高了 22%。两个年度的值均显著高于北半球背景区的观测浓度(1.5~1.7 ng/m³) (Sprovieri *et al.*, 2010)。两个年度的 TGM 浓度概率分布图进一步印证了这种升高的趋势(图 3)。通过对比看出,2001/2002 年度 TGM 在 0~7 ng/m³ 浓度范围的相对概率明显高于 2009/2010 年度,而其在 8~50 ng/m³ 浓度范围的相对概率则明显低于 2009/2010 年度。此外,2001/2002 年度浓度在 4~5 ng/m³ 范围内的样本数分布最多,达到了 12.48%;而 2009/2010 年度样本数最多分布在 6~7 ng/m³ 范围内,前后约相差 2 ng/m³。略高于两个年度几何平均值的差值(1.43 ng/m³)。这说明 2009/2010 年度贵阳市大气气态汞的浓度较 2001/2002 年度出现了整体且明显的升高。

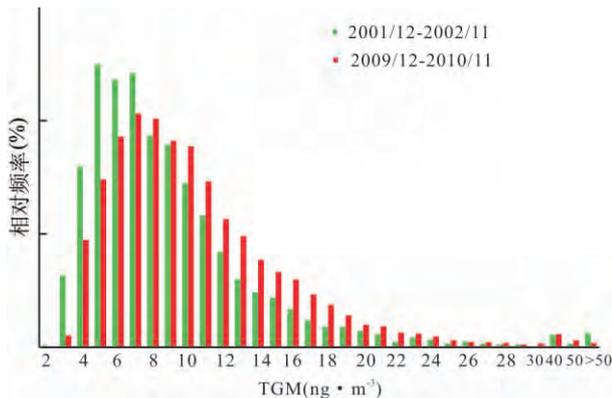


图3 2001/2002 和 2009/2010 两个年度大气气态总汞小时平均值的相对概率分布图

Fig.3 Frequency distributions of hourly mean atmospheric total gaseous mercury (TGM) concentrations for the campaigns of 2001/2002 and 2009/2010

需要指出的是,2009/2010 年度 TGM 浓度极高值出现的频率要低于 2001/2002 年度,与上述两个年度 TGM 浓度的整体变化特征是不一致的。如图 3 所示,2009/2010 年度 TGM 浓度极高值(>50 ng/m³) 的出现频率为 0.18% (n=13),明显低于 2001/2002 年度的 0.64% (n=41),这在一定程度上降低了两个年度 TGM 几何平均浓度差值。两个年度的 TGM 极高值(>50 ng/m³) 均主要出现在冬季和春季(图 2)。一般而言,TGM 浓度极高值的出现主要与采样点周边人为源排放有关(主要是居民生活活动汞排放)。2001/2002 年度较多的极高值说明该年度采样点周边污染源对观测结果的影响更为显著。

2.2 贵阳市 2001/2002 和 2009/2010 年度 TGM 季节性分布特征

贵阳市 2001/2002 和 2009/2010 两个年度的 TGM 均出现了显著的季节性变化特征(图 4)。两个年度 TGM 均在冬季(12 月、1 月和 2 月,多年平均气温最低的 3 个月)出现最大值,最低值则出现在夏季(6 月、7 月和 8 月,多年平均气温最高的 3 个月)。这一现象是和中国多数背景区的 TGM 浓度季节性变化特征是一致的(Fu *et al.*, 2012c)。相对而言,2009/2010 年度 TGM 季节性变化的显著程度要高于 2001/2002 年度。比如,2009/2010 年度冬季 TGM 浓度几何平均值为 11.4 ng/m³,约是该年度夏季几何平均值(6.39 ng/m³) 的 1.8 倍;而 2001/2002 年度冬季 TGM 浓度几何平均值(7.37 ng/m³) 则是夏季几何平均值(6.34 ng/m³) 的 1.2 倍。

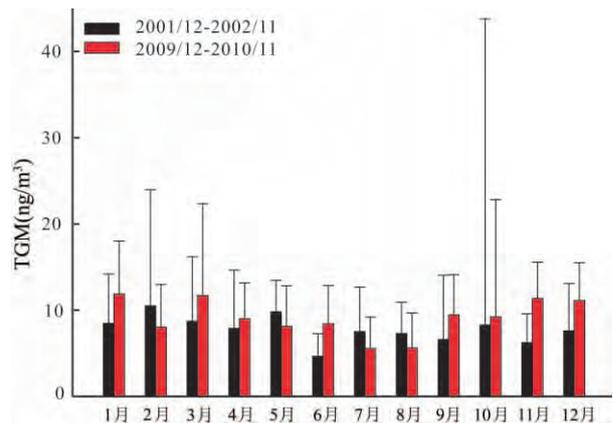


图4 贵阳市 2001/2002 和 2009/2010 两个年度 TGM 月均浓度变化特征

Fig.4 Monthly variations of atmospheric total gaseous mercury (TGM) concentrations for the campaigns of 2001/2002 and 2009/2010 in Guiyang

前期的研究指出(Feng *et al.*, 2004),冬季居民取暖活动导致大气汞排放量的增加是造成冬季 TGM 浓度升高的最主要原因。但从两个年度 TGM 的季节性变化显著程度的差异来看,这个因素并不能完全解释为何 2009/2010 年度季节性变化幅度偏大的现象。根据贵州省和贵阳市的统计年鉴数(贵州省统计局,2003; 2011; 贵阳市统计局,2003; 2012),受“煤改气”和“煤改电”政策的影响,2009/2010 年度贵州省(约 625×10⁴ t)和贵阳市(约 119×10⁴ t)民用燃煤消费量均较 2001/2002 年度(贵州省:1017×10⁴ t;贵阳市:151×10⁴ t)有了一定程度的降低。这和 2009/2010 年度季节性变化特征

较为显著是不一致的。需要指出的是,2009/2010 年度季节性变化幅度增大的一个重要原因是该年度冬季 TGM 浓度较 2001/2002 年度有了大幅度的升高(约 1.5 倍),而这两个年度夏季的气态总汞浓度是基本相当的(图 4)。由此可见,居民冬季取暖活动的燃煤汞排放对 2009/2010 年度冬季大气气态汞升高的贡献作用也可能不大。笔者推测这可能与长距离的大气汞传输过程有关。如图 5 所示,贵阳市冬季(图 5d)大气云团主要来自于中国中东部、云贵高原和中南半岛北部,而其他 3 个季节特别是夏季来自于中国南海地区云团则出现增加趋势。受到工业活动快速发展的影响,中国内陆和中南半岛(中南半岛近年来冬季和春季森林变农田的生物质焚烧也比较严重)近些年大气汞排放也出现了显著的增加(Liang *et al.*, 2013; Wu *et al.*, 2006),而海洋地区的自然源汞排放理论上维持较为稳定的状态(从两个年度夏季 TGM 平均浓度较为接近也可以看出)。因此 2009/2010 年度冬季大气气态汞浓度显著升高很可能与中国近些年快速增加的人为源汞排放有关。

2.3 2001/2002 和 2009/2010 年度 TGM 日变化特征

贵阳市 2001/2002 和 2009/2010 两个年度的

TGM 浓度均出现明显的昼夜变化特征,表现为夜间高于白天(图 6)。两个年度 TGM 昼夜变化特征是有一定差异的。首先,2001/2002 年度 TGM 浓度的昼夜变化幅度明显高于 2009/2010 年度。比如,2001/2002 年度夜间(21:00—0:00 和 0:00—8:00) TGM 浓度的几何平均值是白天(9:00—20:00)的 1.33 倍,而 2009/2010 年度夜间(21:00—0:00 和 0:00—8:00) TGM 浓度的几何平均值是白天(9:00—20:00)的 1.07 倍。另外,两个年度夜间 TGM 的差值为 0.60 ng/m^3 ,远低于两个年度白天 TGM 的差值(2.11 ng/m^3)。此外还可以看出,2001/2002 年度夜间 TGM 浓度的标准偏差要明显高于 2009/2010 年度,而其白天 TGM 浓度标准偏差则低于 2009/2010 年度。

贵阳市夜间 TGM 浓度的升高主要与逆温层的出现有关。受辐射逆温作用的影响,贵阳市夜间出现逆温层的概率明显高于白天(周颖,1997)。夜间逆温层的出现不利于大气污染物的扩散,城市内部排放的大气汞出现积累效应,从而导致夜间 TGM 浓度的升高。而 2001/2002 年度夜间 TGM 浓度标准偏差升高主要是由采样点周边污染源的近距离排放造成的。对于白天而言,逆温层的消失或者逆温层高度的升高在一定程度上促进了污染物的扩散,

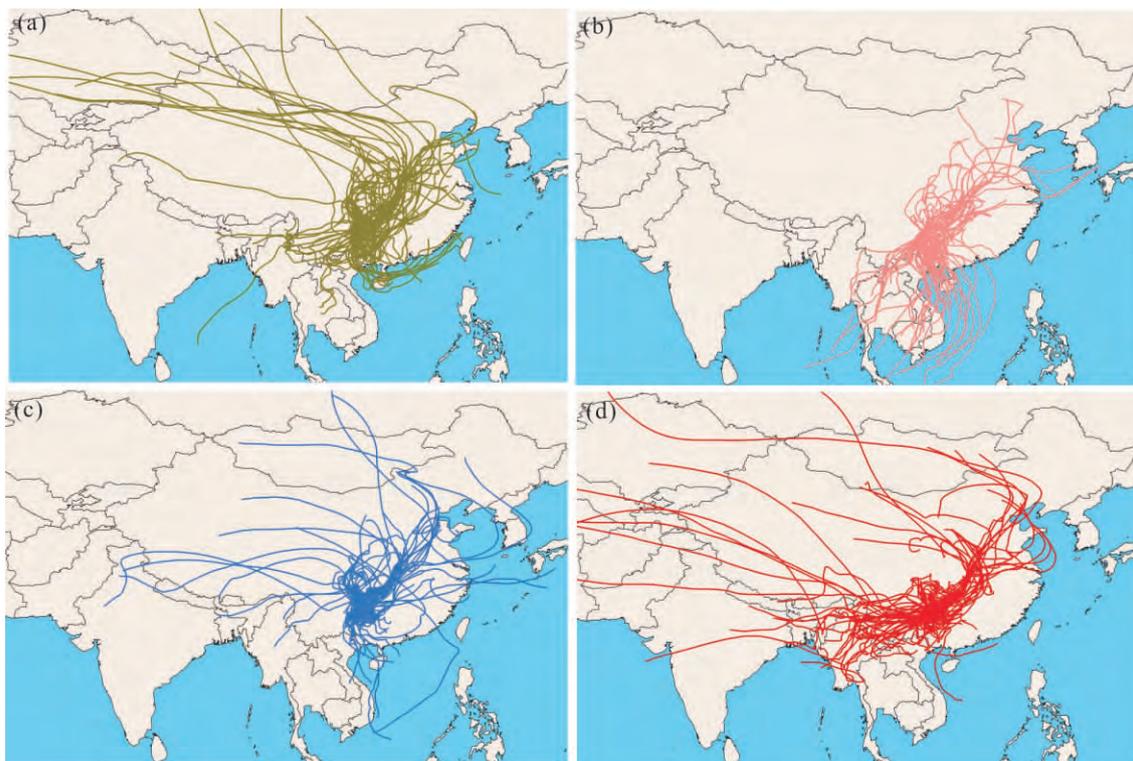


图 5 2009/2010 年度贵阳市春季(a)、夏季(b)、秋季(c)和冬季(d)大气云团来源

Fig.5 Backward trajectory of air masses in Guiyang for Spring (a), Summer (b), Autumn (c), and Winter (d) during the 2009/2010 campaign

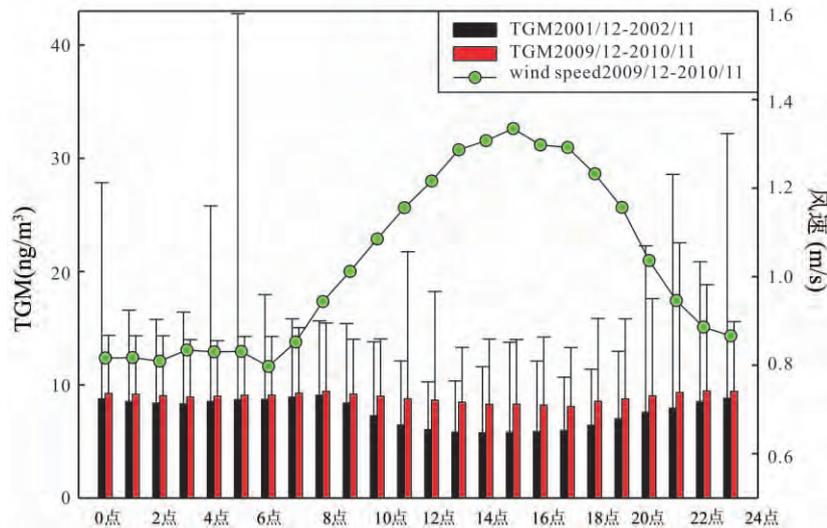


图6 贵阳市 2001/2002 和 2009/2010 两个年度 TGM 日均浓度变化特征

Fig.6 Diurnal variations of atmospheric total gaseous mercury (TGM) concentrations for the campaigns of 2001/2002 and 2009/2002 in Guiyang

进而造成白天 TGM 浓度的降低。另外,在热岛效应作用下,贵阳市周边区域相对总汞浓度较低的气体向市区的输入过程也一定程度上降低了市区 TGM 的污染程度。从两个年度昼夜 TGM 平均浓度的变化来看,贵阳市市区 2009/2010 年度较 2001/2002 年度大气汞的污染程度(受逆温层的影响,夜间大气气态汞浓度更多代表市区的污染状况)的增幅并不是很明显。相反,贵阳市周边区域、甚至是贵州省和中国西南地区的区域大气汞背景浓度增幅有可能较为明显(白天 TGM 更多受到区域性和长距离传输的影响),其区域大气背景汞浓度有可能存在接近贵阳市大气汞浓度的可能。

2.4 贵阳市大气汞含量变化对区域大气汞排放强度变化的指示意义

大气中气态总汞浓度的水平通常取决于区域

人为源和自然源汞排放强度和大气汞的物理化学过程。和人为源相比,自然源(如土壤、水体、森林火灾)汞释放强度随时间的变化较小,而大气汞的物理化学过程(干湿沉降通常随大气汞浓度升高而升高)则对 TGM 浓度的升高起一定抑制作用。因此,自然源和大气汞物理化学过程不大可能是造成贵阳市 2001/2002 和 2009/2010 两个年度 TGM 浓度变化的主要原因。依据贵阳市和贵州省统计年鉴数据,笔者估算了 2001/2002 和 2009/2010 两个年度贵阳市和贵州省人为源大气汞的释放量(表 2)。

从表 2 可以看出,2009/2010 年度贵阳市和贵州省人为源大气汞释放量均较 2001/2002 年度有所增加,其中贵阳市增加 43%,贵州省增加 40%,增加的部分主要来自于工业燃煤、水泥、钢铁和铅的生

表 2 贵阳市和贵州省主要人为源大气汞排放估算

Table 2 Estimation of major anthropogenic mercury emissions for Guiyang city and Guizhou province

	汞排放源燃料消耗量和生产量(×10 ⁴ t)						大气汞排放量(t)						
	工业 燃煤	民用 燃煤	水泥	钢铁	铅	锌	工业燃煤 (Wang et al., 2010a)	民用燃煤 (Tang et al., 2007)	水泥(Pacyna et al., 2010)	钢铁(Pacyna et al., 2010)	铅(Streets et al., 2005)	锌 (Li et al., 2010)	合计
2001/2002 年度													
贵阳市(贵阳市 统计局,2003)	602	151	283	38	0	0.68	0.31	0.35	0.28	0.02	0	0.27	1.22
贵州省(贵州省 统计局,2003)	4388	1017	1121	102	0.31	7.31	2.28	2.34	1.12	0.04	0.14	2.87	8.78
2009/2010													
贵阳市(贵阳市 统计局,2012)	953	119	938	109	0	0	0.50	0.27	0.94	0.04	0	0	1.75
贵州省(贵州省 统计局,2011)	10552	625	3694	1339	0.57	2.29	5.49	1.44	3.69	0.54	0.25	0.90	12.30

产,而民用燃煤和锌冶炼排放量有所降低。需要指出的是,随着近年来(第 10 和 11 个五年计划,2001~2010)电厂和大型工业锅炉污染排放控制措施特别是静电除尘和烟气脱硫等技术应用比例增加(Wang *et al.*, 2010b),贵阳市和贵州省人为源汞排放因子在 2009/2010 年度应该较 2001/2002 年度有所下降。因此 2009/2010 年度贵阳市和贵州省人为源排放量较 2001/2002 年度的增加量可能比上面计算的数值偏低(目前缺乏这方面详细的数据,具体影响程度还很难确定)。

Feng 等(2005)对贵阳市(不包括清镇、修文、息烽和开阳 4 个县)土壤汞释放量进行了估算,其结果为 0.41 t。假设清镇、修文、息烽和开阳 4 个县土壤汞排放强度和贵阳相当,依据其土地面积可以推算这 4 个县的土壤汞排放量约为 0.96 t。由此,贵阳市全市土壤汞释放量约为 1.37 t。由于贵阳市水体面积较小且水体汞释放量较低(Fu *et al.*, 2012c),且森林火灾活动不明显,其土壤排放基本上可以代表该地区的自然源排放量。由此可以推算 2009/2010 年度贵阳市总的大气汞排放量约为 3.12 t,约是 2001/2002 年度的 1.20 倍(增加 20%)。这一结果与两个年度贵阳市 TGM 的变化幅度是基本一致的。

当然,由于大气汞清除作用(干湿沉降)和长距离传输作用的叠加影响,贵阳市大气汞排放量的变化不可能造成大气汞浓度升高相同的倍数(会略低,具体数值有待模型验证)(Seigneur *et al.*, 2003)。这里面肯定还有贵州省、中国西南地区甚至包括内陆大气汞排放量增加附加贡献。贵阳市 TGM 浓度的季节性和日变化特征也印证了这一点。比如贵阳市 2009/2010 年度 TGM 季节性变化幅度更加明显说明来自于云贵高原、中国中东部和中南半岛的长距离传输也是该年度 TGM 升高的一个重要因素,而该年度白天 TGM 升高幅度明显大于夜间也说明贵阳市周边区域汞排放量的增加起到了重要的作用。假设贵阳夜间稳定边界层的环境下 TGM 主要代表该市大气汞的污染水平(2009/2010 年度夜间 TGM 浓度比 2001/2002 年度约增加了 7%),贵阳市 2009/2010 年度大气汞排放量较 2001/2002 年度增加的 20%也只是造成了大气汞气态总汞浓度 7%的增幅,其余的部分(12%)有可能主要来自于贵阳市周边区域和长距离传输过程。由于中国自然源汞排放研究不是很清楚,加上大气汞物理化学过程目前还存在大量不确定性,上述论断还存在一定的不确定性,需要进一步的研究加以验证(主要为模型

研究)。不过,贵州省和贵阳市人为源大气汞排放量的增加的趋势是基本和笔者的观测结果是基本一致的,印证了人为源排放是造成贵阳市近些年大气汞污染程度增加的最主要原因。

3 结论

(1) 2009/2010 年度 TGM 浓度较 2001/2002 年度出现整体升高的现象,几何平均值约升高了 19%。

(2) 2009/2010 年度 TGM 浓度异常高值出现频率较 2001/2002 年度有所降低,暗示采样点周边近距离的燃煤汞排放出现一定程度的降低,这是和贵阳市近些年民用燃煤消费量降低的趋势是一致的。

(3) 从季节性变化来看,2009/2010 年度 TGM 浓度升高主要出现在冬季、秋季和春季,而夏季变化特征不明显,说明了来自于中国中东部、云贵高原和中南半岛的长距离大气汞传输过程是贵阳市 TGM 浓度的升高的一个重要影响因素。

(4) 从日变化特征来看,2009/2010 年度白天 TGM 浓度较 2001/2002 年度升高比较明显(达到 1.33 倍),而夜间升高幅度相对较低(1.07 倍),暗示了贵阳市周边污染物排放强度的增加水平要高于贵阳市。

(5) 通过对 2009/2010 和 2001/2002 两个年度贵阳市和贵州省大气汞排放量的估算,结合两个年度 TGM 的变化特征,推测贵阳市和贵州省人为源汞排放量的增加是贵阳市大气汞浓度升高的一个重要因素。此外,中国内陆地区大气汞排放量的增加也具有不可忽视的作用。量化各种因素的贡献水平还有待进一步研究的开展。

参考文献 (References):

- Chen L G, Liu M, Xu Z C., Fan R F, Tao J, Chen D H, Zhang D Q, Xie D H., Sun J R. 2013. Variation trends and influencing factors of total gaseous mercury in the Pearl River Delta-A highly industrialised region in South China influenced by seasonal monsoons. *Atmospheric Environment*, 77: 757-766
- Feng X B, Shang L H, Wang S F, Tang S L, Zheng W. 2004. Temporal variation of total gaseous mercury in the air of Guiyang, China. *Journal of Geophysical Research-Atmosphere* 109: D03303, doi: 10.1029/2003JD004159
- Feng X B, Wang S F, Qiu G A, Hou Y M, Tang S L. 2005. Total gaseous mercury emissions from soil in Guiyang, Guizhou, China. *J Geophys Res-Atmos* 110: D14306, doi: 10.1029/2004JD005643
- Fu X W, Feng X, Dong Z Q, Yin R S, Wang J X, Yang Z R, Zhang H. 2010. Atmospheric gaseous elemental mercury (GEM) concentrations and mercury depositions at a high-altitude mountain

- peak in south China. *Atmospheric Chemistry Physics* 10: 2425–2437
- Fu X W, Feng X, Liang P, Deliger, Zhang H, Ji J, Liu P. 2012a. Temporal trend and sources of speciated atmospheric mercury at Waliguan GAW station, Northwestern China. *Atmospheric Chemistry Physics*, 12: 1951–1964
- Fu X W, Feng X, Shang L H, Wang S F, Zhang H. 2012b. Two years of measurements of atmospheric total gaseous mercury (TGM) at a remote site in Mt. Changbai area, Northeastern China. *Atmospheric Chemistry Physics*, 12: 4215–4226
- Fu X W, Feng X B, Sommar J, Wang S F. 2012c. A review of studies on atmospheric mercury in China. *Science of the Total Environment*, 421: 73–81
- Fu X W, Feng X B, Zhu W Z, Wang S F, Lu J L. 2008. Total gaseous mercury concentrations in ambient air in the eastern slope of Mt. Gongga, South-Eastern fringe of the Tibetan plateau, China. *Atmospheric Environment*, 42: 970–979
- Li G H, Feng X B, Li Z G, Qiu G L, Shang L H, Liang P, Wang D Y, Yang Y K. 2010. Mercury emission to atmosphere from primary Zn production in China. *Science of the Total Environment*, 408: 4607–4612
- Liang S, Xu M, Liu Z, Suh S, Zhang T Z. 2013. Socioeconomic Drivers of Mercury Emissions in China from 1992 to 2007. *Environmental Science & Technology*, 47: 3234–3240
- Lindberg S, Bullock R, Ebinghaus R, Engstrom D, Feng X B, Fitzgerald W, Pirrone N, Prestbo E, Seigneur C. 2007. A synthesis of progress and uncertainties in attributing the sources of mercury in deposition. *Ambio*, 36: 19–32
- Pacyna E G, Pacyna J M, Sundseth K, Munthe J, Kindbom K, Wilson S, Steenhuisen F, Maxson P. 2010. Global emission of mercury to the atmosphere from anthropogenic sources in 2005 and projections to 2020. *Atmospheric Environment*, 44: 2487–2499
- Schroeder W H, Munthe J. 1998. Atmospheric mercury—An overview. *Atmospheric Environment*, 32: 809–822
- Seigneur C, Lohman K, Vijayaraghavan K, Shia R L. 2003. Contributions of global and regional sources to mercury deposition in New York State. *Environmental Pollution*, 123: 365–373
- Sprovieri F, Pirrone N, Ebinghaus R, Kock H, Dommergue A. 2010. A review of worldwide atmospheric mercury measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10: 8245–8265
- Streets D G, Hao J M, Wu Y, Jiang J K, Chan M, Tian H Z, Feng X B. 2005. Anthropogenic mercury emissions in China. *Atmospheric Environment*, 39: 7789–7806
- Tang S L, Feng X B, Qiu H R, Yin G X, Yang Z C. 2007. Mercury speciation and emissions from coal combustion in Guiyang, southwest China. *Environment Research*, 105: 175–182
- Wang S X, Zhang L, Li G H, Wu Y, Hao J M, Pirrone N, Sprovieri F, Ancora M P. 2010a. Mercury emission and speciation of coal-fired power plants in China. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10: 1183–1192
- Wang S X, Zhang L, Wu Y, Ancora M P, Zhao Y, Hao J M. 2010b. Synergistic mercury removal by conventional pollutant control strategies for coal-fired power plants in China. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 60: 722–730
- Wu Y, Wang S X, Streets D G, Hao J M, Chan M, Jiang J K. 2006. Trends in anthropogenic mercury emissions in China from 1995 to 2003. *Environmental Science & Technology*, 40: 5312–5318
- Zhang L, Wang S X, Wang L, Hao J M. 2013. Atmospheric mercury concentration and chemical speciation at a rural site in Beijing, China: Implications of mercury emission sources. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13: 10505–10516
- Zhu J, Wang T, Talbot R, Mao H, Hall C B, Yang X, Fu C, Zhuang B, Li S, Han Y, Huang X. 2012. Characteristics of atmospheric Total Gaseous Mercury (TGM) observed in urban Nanjing, China. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12: 12103–12118
- 贵州省统计局. 2003. 贵州统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 1–680
- 贵州省统计局. 2011. 贵州省统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 1–815
- 贵阳市统计局. 2003. 贵阳统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 1–657
- 贵阳市统计局. 2012. 贵阳市统计年鉴. 北京: 中国统计出版社, 1–501
- 周颖. 1997. 贵阳市混合层高度的研究. *贵州环保科技*, 3: 37–40