

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第3期

Vol.36 No.3

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

重庆市 PM _{2.5} 浓度空间分异模拟及影响因子	吴健生, 廖星, 彭建, 黄秀兰 (759)
2012 ~ 2013 年间北京市 PM _{2.5} 中水溶性离子时空分布规律及相关性分析	杨懂艳, 刘保献, 张大伟, 陈圆圆, 周健楠, 梁云平 (768)
南京地区大气 PM _{1.1} 中 OC、EC 特征及来源解析	姜文娟, 郭照冰, 刘凤玲, 芮茂凌, 石磊, 曾钢, 郭子研 (774)
太原市大气 PM _{2.5} 中碳质组成及变化特征	张桂香, 闫雨龙, 郭利利, 何秋生, 陈来国 (780)
朔州市市区 PM _{2.5} 中元素碳、有机碳的分布特征	刘凤娟, 彭林, 白慧玲, 牟玲, 刘效峰, 李丽娟, 刘欣 (787)
中国 2013 年 1 月 PM _{2.5} 重污染过程卫星反演研究	薛文博, 武卫玲, 付飞, 王金南, 韩宝平, 雷宇 (794)
高空偏北风背景下北京地区高污染形成的环境气象机制研究	廖晓农, 孙兆彬, 唐宜西, 蒲维维, 李梓铭, 卢冰 (801)
重庆缙云山降水中不同形态汞的含量及其沉降量	覃蔡清, 王永敏, 彭玉龙, 王定勇 (809)
海南五指山大气气态总汞含量变化特征	雷育涛, 刘明, 陈来国, 谢东海, 林道征, 赵明江, 张毅强, 孙家仁 (817)
树叶烟尘中的有机碳和元素碳	陈惠雨, 刘刚, 徐慧, 李久海, 吴丹 (824)
介质阻挡放电对氯苯的降解特性及其产物分析	姜理英, 曹书岭, 朱润晔, 陈建孟, 苏飞 (831)
长江口及浙江近岸海域表层沉积物中多环芳烃分布、来源与风险评价	母清林, 方杰, 邵君波, 张庆红, 王晓华, 黄备 (839)
河流沉积物对典型 PPCPs 的吸附特性及其影响因素	王凯, 李侃竹, 周亦圆, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (847)
岩溶地下河表层沉积物多环芳烃的污染及生态风险研究	蓝家程, 孙玉川, 师阳, 梁作兵 (855)
岩溶地下河系统多介质中多环芳烃污染特征及来源解析	卢丽, 王喆, 裴建国 (862)
两江交汇处水体溶解性有机质的吸收和荧光光谱特征: 以渠江-嘉陵江、涪江-嘉陵江为例	闫金龙, 江韬, 高洁, 魏世强, 卢松, 刘江 (869)
三峡库区典型农业小流域土壤溶解性有机质的紫外-可见及荧光特征	王齐磊, 江韬, 赵铮, 木志坚, 魏世强, 闫金龙, 梁俭 (879)
夏、冬季降雨中溶解性有机质 (DOM) 光谱特征及来源辨析	梁俭, 江韬, 魏世强, 卢松, 闫金龙, 王齐磊, 高洁 (888)
南水北调丹江口水库原水有机物分子组成规律及其强化混凝处理的效能对比	程拓, 徐斌, 朱贺振, 夏圣骥, 楚文海, 胡广新 (898)
夏季大辽河河口区水体反硝化及其影响因素	杨丽标, 雷坤, 孟伟 (905)
太湖入湖河流溶解性有机碳来源及碳水化合物生物可利用性	叶琳琳, 吴晓东, 孔繁翔, 刘波, 闫德智 (914)
汉丰湖夏季浮游植物群落与环境因子的典范对应分析	王宇飞, 赵秀兰, 何丙辉, 黄琪 (922)
三峡蓄水期间汉丰湖消落区营养状态时间变化	黄祺, 何丙辉, 赵秀兰, 王宇飞 (928)
太湖水华期营养盐空间分异特征与赋存量估算	金颖薇, 朱广伟, 许海, 朱梦圆 (936)
贝江浮游藻类群落特征及富营养化风险分析	苟婷, 马千里, 许振成, 王丽, 李杰, 赵学敏 (946)
物理和摇蚊幼虫组合扰动对内源磷再生和形态转化的协同作用	史晓丹, 李大鹏, 王忍, 黄勇 (955)
磷限制下光照和温度对水华鱼腥藻生长动力学的影响	殷志坤, 李哲, 王胜, 郭劲松, 肖艳, 刘静, 张萍 (963)
矿物基多孔颗粒材料净化石英纯化废水研究	王恩文, 雷绍民, 张世春, 黄腾 (969)
PAA 改性纳米铁强化还原降解水中亚甲基蓝	和婧, 王向宇, 王培, 刘坤乾 (980)
微球负载双核锰配合物作为新型非均相 CWPO 催化剂对活性蓝 P-3R 的脱色应用	宋敏, 张琳萍, 钟毅, 徐红, 毛志平 (989)
生物合成施氏矿物作为类芬顿反应催化剂降解甲基橙的研究	汪快兵, 方迪, 徐峙晖, 施瑛, 郑冠宇, 周立祥 (995)
污泥厌氧产酸发酵液作碳源强化污水脱氮除磷中试研究	罗哲, 周光杰, 刘宏波, 聂新宇, 陈宇, 翟丽琴, 刘和 (1000)
高含固污泥水热预处理中碳、氮、磷、硫转化规律	卓杨, 韩芸, 程瑶, 彭党聪, 李玉友 (1006)
MBR 与 SMBR 脱氮除磷特性及膜污染控制	郭小马, 赵焱, 王开演, 赵阳国 (1013)
基质 COD 浓度对单室微生物电解池产甲烷的影响	滕文凯, 刘广立, 骆海萍, 张仁铎, 符诗雨 (1021)
天然沸石中离子交换平衡的离子特异性研究	何云华, 李航, 刘新敏, 熊海灵 (1027)
开封城市土壤重金属污染及潜在生态风险评价	李一蒙, 马建华, 刘德新, 孙艳丽, 陈彦芳 (1037)
不同种植模式对土壤团聚体及有机碳组分的影响	邱晓蕾, 宗良纲, 刘一凡, 杜霞飞, 罗敏, 汪润池 (1045)
种植花椒对喀斯特石漠化地区土壤有机碳矿化及活性有机碳的影响	张文娟, 廖洪凯, 龙健, 李娟, 刘灵飞 (1053)
江西铜矿及冶炼厂周边土壤和农作物稀土元素含量与评价	金姝兰, 黄益宗, 王斐, 徐峰, 王小玲, 高柱, 胡莹, 乔敏, 李季, 向猛 (1060)
镉与 S-异丙甲草胺对斜生栅藻的联合毒性作用	章小强, 胡晓娜, 陈彩东, 刘惠君 (1069)
高寒灌丛退化演替过程对生态系统呼吸温度敏感性的影响	李东, 罗旭鹏, 曹广民, 吴琴, 胡启武, 卓玛措, 李惠梅 (1075)
黄土高原纸坊沟流域不同植物叶片及枯落物的生态化学计量学特征研究	李鑫, 曾全超, 安韶山, 董扬红, 李娅芸 (1084)
单斜相纳米氧化钴基低温 SCR 催化剂脱硝机制研究	叶飞, 刘荣, 管昊, 贡湘君, 季凌晨 (1092)
不同有机物料中的磷形态特征研究	邓佳, 胡梦坤, 赵秀兰, 倪九派, 谢德体 (1098)
北京电动出租车与燃油出租车生命周期环境影响比较研究	施晓清, 孙赵鑫, 李笑诺, 李金香, 杨建新 (1105)
燃煤电厂排放细颗粒物的水溶性无机离子特征综述	段雷, 马子轸, 李振, 蒋靖坤, 叶芝祥 (1117)
菌根真菌金属耐性机制研究进展	陈保冬, 孙玉青, 张莘, 伍松林 (1123)
亚硝酸盐型甲烷厌氧氧化微生物特性研究进展	沈李东 (1133)
《环境科学》征订启事 (830) 《环境科学》征稿简则 (846) 信息 (838, 861, 913, 935)	

海南五指山大气气态总汞含量变化特征

雷育涛¹, 刘明^{1*}, 陈来国¹, 谢东海², 林道征³, 赵明江³, 张毅强¹, 孙家仁¹

(1. 环境保护部华南环境科学研究所, 城市生态环境研究中心, 广州 510655; 2. 海南省环境科学研究院, 海口 571126; 3. 五指山市环境资源监测站, 五指山 572200)

摘要: 利用高时间分辨率自动测汞仪(Tekran 2537B)于2011-05~2012-05对五指山大气气态总汞(TGM)进行了连续1 a的观测。结果表明,五指山TGM含量为 $(1.58 \pm 0.71) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,与全球大气汞背景值相当,表明五指山大气几乎没有受到明显的大气汞污染。TGM的月变化特征表现为2011年6~8月和2012年3~5月TGM含量较低,2011年9月~次年1月含量较高,热带季风是影响TGM月变化的主要因素。五指山TGM具有明显的日变化特征,小时均值最低值出现在09:00,峰值出现在19:00,白天TGM浓度低于晚上。日变化受汞长距离迁移和本地气象条件的共同影响。后向轨迹分析结果表明大气汞从中国大陆的长距离迁移为五指山TGM浓度升高的主要原因。

关键词: 大气气态总汞; 五指山; 月变化; 日变化; 后向轨迹

中图分类号: X131.1 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)03-0817-07 DOI: 10.13227/j.hjxx.2015.03.009

Variation Characteristics of Total Gaseous Mercury at Wuzhi Mountain (Wuzhishan) Background Station in Hainan

LEI Yu-tao¹, LIU Ming^{1*}, CHEN Lai-guo¹, XIE Dong-hai², LIN Dao-zheng³, ZHAO Ming-jiang³, ZHANG Yi-qiang¹, SUN Jia-ren¹

(1. Center for Research on Urban Ecological Environment, South China Institute of Environmental Sciences, Ministry of Environmental Protection, Guangzhou 510655, China; 2. Hainan Research Academy of Environmental Sciences, Haikou 571126, China; 3. Wuzhishan Environmental Resource Monitoring Station, Wuzhishan 572200, China)

Abstract: Total gaseous mercury (TGM) was continuously monitored at Wuzhi mountain (Wuzhishan) using the high-resolution automatic atmospheric mercury vapor analyzer (Tekran 2537B) from May 2011 to May 2012. The annual geometric mean TGM concentration was $(1.58 \pm 0.71) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, suggesting that the atmosphere was not obviously polluted. The TGM level at Wuzhi mountain remained low from June to August in 2011 and from March to May in 2012, while higher values were observed from September in 2011 to January in 2012. Tropical monsoons played an important role in the monthly variation of TGM. TGM concentrations showed a clear diurnal trend with the minimum concentration occurring at 09:00 AM and the peak concentration at 19:00 PM due to the combined impact of the long-range transport of atmospheric mercury and local meteorological conditions. The temporal trend of TGM highlighted the impact of long-range transport from the mainland of China on the distribution of TGM in ambient air at Wuzhi mountain by the results of backward trajectory analysis using HYSPLIT.

Key words: total gaseous mercury; Wuzhi mountain; monthly variation; daily variation; back trajectory

大气是汞迁移转化的重要传输通道,大气中汞的循环在全球汞的生物地球化学循环中占有极其重要的地位。气态单质汞在大气中的停留时间长达 $0.5 \sim 2 \text{ a}$ ^[1],并能随大气循环在全球尺度上传输。大气汞的背景监测是评价区域大气汞污染水平和研究汞全球循环的前提。我国目前已经对大气汞的背景水平开展了一些研究,研究区域涉及几个不同地理分区,如西北(瓦里关)^[2]、东北(长白山)^[3,4]、西南(贡嘎山、雷公山)^[5,6,7]和华东(崇明岛)^[8]。华南地跨亚热带和热带两大气候带,其高温高湿、季风明显、热带气旋频繁等气候特征加速了汞在这一区域的地球化学循环^[9,10]。此外,珠三角地区是我国经济最发达的三大区域之一,巨大的能源需求和发达

的工业导致了汞的大量排放^[11],海南岛位于珠三角南面,秋冬季冷空气南下(东北季风)可能会将珠三角的污染物带至海南。在华南区域开展汞的研究有重要的科学与现实意义。先前已经对华南地区典型城市和区域汞污染开展了初步研究^[12],但缺乏对海南背景地区大气汞的研究。海南岛地处华南热带地区,本岛基本没有大的工业污染源,环境质量优越,能代表区域大气的背景水平。本研究以海南五指山作为监测点,目的在于获得我国华南热带地区大气

收稿日期: 2014-07-10; 修订日期: 2014-10-23

基金项目: 环境保护公益性行业科研专项(200809011); 国家自然科学基金项目(41105082)

作者简介: 雷育涛(1978~),男,工程师,主要研究方向为大气污染物的评价与管理, E-mail: leiyutao@scies.org

* 通讯联系人, E-mail: liuming@scies.org

汞的背景水平、变化趋势、影响因素和来源,以期完善我国大气汞背景数据库、研究区域汞的地球化学过程以及履行关于汞的国际公约提供数据支撑。

1 材料与方法

1.1 监测点概况

五指山位于海南岛中南部腹地(图1),为海南地区最高峰,该地兼有山区和岛屿的气候特征,属典型热带季风气候,冬季和夏季分别盛行东北和西南风。其中5~10月为传统雨季,11月~次年4月为传统旱季。该地区年平均气温22.4℃,1月和7月平均气温分别为17℃和26℃。年平均降雨量为1690 mm,平均相对湿度为84%,年平均日照为2000 h左右。本研究观测点位于五指山国家大气背景监测站(109°29'30.2" E, 18°50'11.0" N),站点位于五指山国家自然保护区内,海拔958 m,周边人口密度低,自然生态环境优越,远离城市和人为污染源,是理想的区域空气背景监测点。

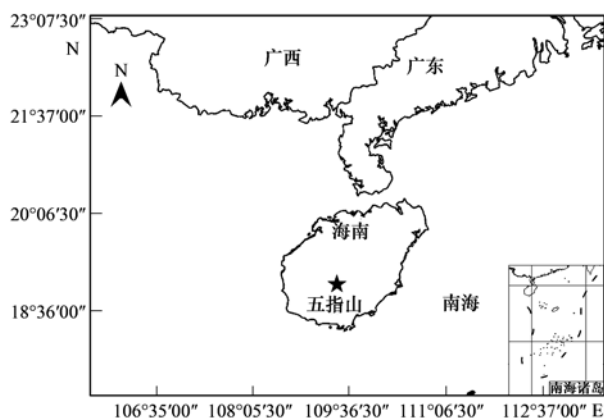


图1 监测站点地理位置示意

Fig. 1 Schematic diagram of location of the sampling site

1.2 观测方法及时间

观测采用高时间分辨率自动测汞仪(Model 2537B, Tekran Inc., Toronto, Canada), 能实现大气TGM的实时/在线/连续采集并检测, 仪器检测限为 $0.1 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 。气象观测站(ZZ11B, 上海气象仪器厂)同时可提供实时的气象观测数据。监测时间段为2011年5月~2012年5月, 共获得109309个有效数据。

1.3 质量保证与质量控制

为了保证TGM数据质量, 每25 h仪器通过内置汞源自动校正1次, 采样期间使用外置汞源(Tekran 2505)校正仪器, 内外汞源数据偏差不得超过

10%。

2 结果与讨论

2.1 五指山背景点 TGM 含量水平

海南五指山背景点大气TGM年均含量为 $(1.58 \pm 0.71) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ (图2), 与全球背景值 $(1.5 \sim 1.7 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3})$ ^[13,14]、欧美地区大气背景值相当^[15], 低于国内一些背景点含量(如瓦里关^[2]、长白山^[3,4]、贡嘎山^[5,6]和雷公山^[7])(表1), 表明五指山地区的大气几乎没有受到明显的汞污染, 能代表华南热带地区大气TGM的本底水平。监测点日均TGM具有明显的季节性变化特征, 高值主要出现在2011年9月~次年1月 $[(2.07 \pm 0.62) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$, 而2011年6~8月 $[(1.37 \pm 0.62) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$ 以及2012年2~5月 $[(1.33 \pm 0.47) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$ 含量较低, 个别月份(如2011年5月和9月)出现了日均TGM的剧烈变化过程, 表明明显受到了外源重污染天气过程影响。

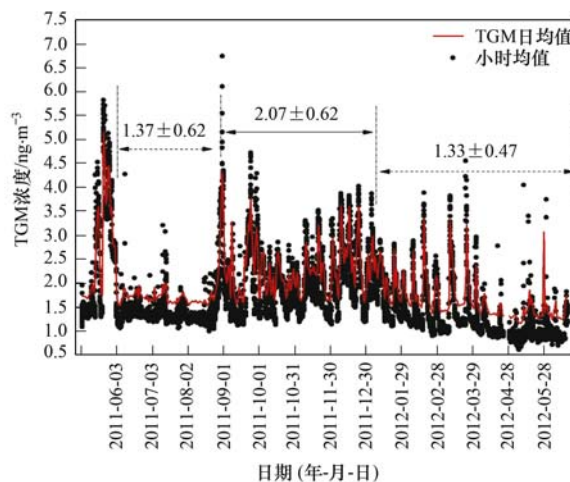


图2 五指山地区大气气态总汞时间序列变化

Fig. 2 Time series of TGM concentration at WZ mountain

2.2 五指山 TGM 的月变化特征

从TGM月均含量来看, 2011年6月~次年5月, 监测点TGM浓度有升高再降低的过程(图3)。其中2011年12月浓度最高 $[(2.29 \pm 0.66) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$, 2012年5月最低 $[(1.05 \pm 0.26) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$ 。TGM风向分布图显示(图4), 监测点东北方向携带较高含量汞信息, 而西南方向汞的浓度较低。不同风向上浓度的差异影响不同月份汞的含量分布, 在2011年10月~次年1月, 东北风(包括NE、NNE、ENE)为主导风向, TGM含量处于较高值 $[(2.02 \pm 0.53) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$, 而2011年6~8月、2012年3~5月西南风(包括SW、SSW、WSW)为主导

表 1 国内外不同背景点大气气态总汞含量水平

Table 1 TGM concentration in different types of background areas				
地区	监测时间	类型	浓度/ $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$	文献
五指山	2011-05 ~ 2012-05	背景点	1.58 ± 0.71	本研究
瓦里关	2007-09 ~ 2008-08	背景点	1.98 ± 0.98	[2]
长白山	2005-08 ~ 2006-07	背景点	3.58 ± 1.78	[3]
贡嘎山	2007-01 ~ 2007-07	背景点	3.98 ± 1.62	[5]
雷公山	2008-05 ~ 2009-05	背景点	2.80 ± 1.51	[7]
崇明岛	2009-09 ~ 2009-12	背景点	2.50 ± 1.50	[8]
万顷沙	2008-11 ~ 2008-12	乡村	$2.94(0.58 \sim 18.67)$	[16]
鹿林山,台湾	2006-04 ~ 2007-12	背景点	1.74 ± 0.61	[17]
美洲、北极和欧洲	1996 ~ 2002	乡村、背景	$1.55 \sim 1.93$	[15]
北半球		背景	$1.5 \sim 1.7$	[13,14]

(图 3),期间 TGM 值分别为 $(1.37 \pm 0.62) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(1.22 \pm 0.45) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$. 另外由于 3 ~ 8 月岛内中南部山区边界层高度比其他月份高^[15],风速较大,扩散条件较好,这也导致了这些月份 TGM 出现低值. 而 9 月 $[(2.11 \pm 0.73) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}]$ 西南风与东北风所占比例较接近,该月 TGM 的波动较大且含量相对还是处于高位值. 11 月 ~ 次年 1 月期间五指山的 TGM 较大的波动 ($\text{SD} = 0.62 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$) 可能受北方冷空气间断南下的影响.

海南属于热带季风性气候区域,一般每年 11 月 ~ 次年 4 月为传统的旱季,盛行偏北风,在风向的作用下,中国大陆高浓度的汞会长距离迁移到监测点. 而 5 ~ 10 月为传统雨季,盛行西南风,季风从海洋携带较为干净的气团^[18]. Tseng 等^[9] 对南海 GEM(气态元素汞)进行两年半的观测发现汞在季风作用下的长距离迁移是影响南海大气汞分布和循环的主要因素. 五指山地区 TGM 的月变化与热带季风变化大体一致(图 3),表明季风是导致该地区不同月份 TGM 变化差异的主要原因,也暗示本地 TGM 受到汞的长距离输送影响,这与 先前瓦里关、鹿林山研究一致^[2,9].

2.3 五指山 TGM 的日变化特征

五指山 TGM 具有一个明显的日变化过程(图 5):在 00:00 ~ 09:00 时间段内 TGM 浓度不断下降,且在 09:00 时达到最低值,之后 TGM 浓度一直上升并在 19:00 达到最大值. 太阳辐射对地球表面汞循环有明显和复杂的影响^[19]. 太阳辐射的增强导致温度和边界层高度的升高,同时会增大地表汞的释放强度导致大气中汞含量增大^[20,21]. 气温与太阳辐射的日变化特征较一致,监测点温度与 TGM 值在部分时段(00:00 ~ 05:00、10:00 ~ 14:00、21:00 ~ 23:00)呈现显著的正相关(r 为 0.99、0.98、0.99)

(图 5),说明气温和太阳辐射是影响当地 TGM 日变化的一个重要因素. 而 14:00 ~ 19:00,随着太阳辐

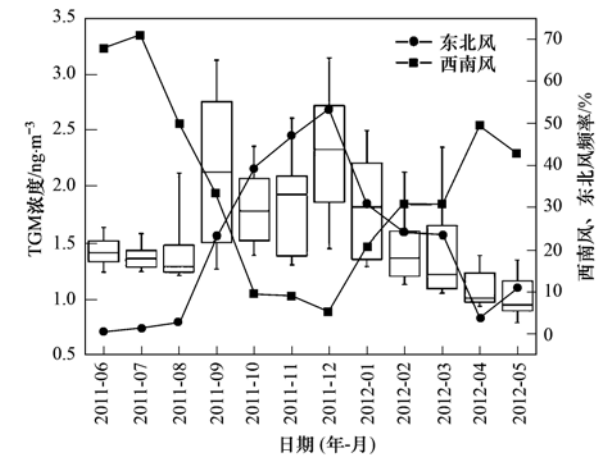


图 3 五指山地区大气气态总汞月变化
Fig. 3 Monthly variation of TGM concentration at WZS mountain

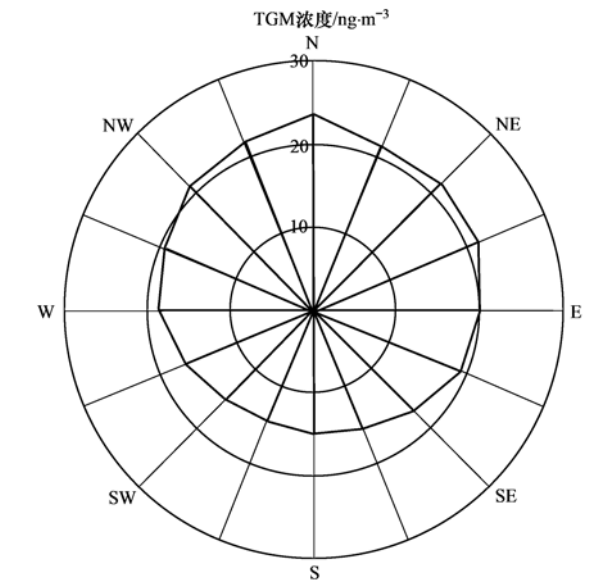


图 4 监测期间五指山地区大气气态总汞含量的风向分布
Fig. 4 Concentration distribution of TGM at wind directions at WZ mountain during the monitoring period

射降低,边界层高度降低,导致 TGM 仍然有不断上升的趋势,日落以后,稳定的夜间边界层开始形成,边界层高度再次恢复到较低值^[22],由此导致了夜间 TGM 高值的形成. 小的风速会导致汞在监测点的积累,21:00~05:00 风速较大利于汞的扩散,TGM 含量随之降低,而 09:00~21:00 稳定的风速对 TGM 变化影响不大.

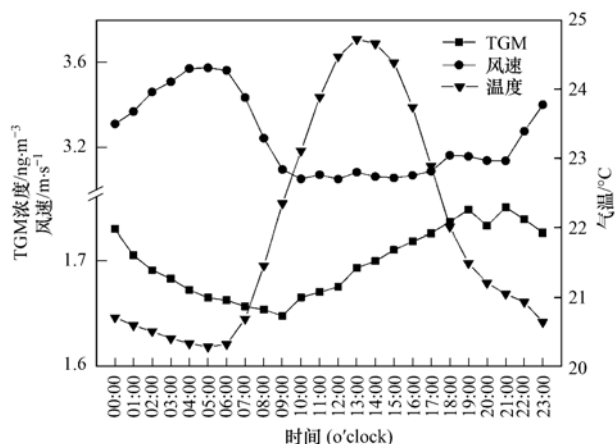


图 5 五指山地区大气气态总汞日变化

Fig. 5 Daily variation of TGM concentration at WZ mountain

监测期间,TGM 晚上浓度($1.70 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)要比白天高出 10%,这种变化趋势不同于先前中国其他背景点的研究^[4,5,7],区域污染源释放的汞在谷风的作用下移动到监测点导致这些背景点白天高值的产生. 由于海南四面环海,本岛以农业和旅游业为主导,明显不同于内地的产业结构可能减弱了白天谷风的影响. 五指山地区白天 TGM 含量的降低可能受到其他因素的影响. 研究表明,大气中 Br(无机溴和溴原子)是影响汞氧化的主要因素,并参与了全球大多数气态元素汞的氧化^[23~25]. 汞的氧化是一个光化学反应的过程^[24]. 而氧化态的汞在干湿沉降的作用下容易去除从而导致监测到的 TGM 含量降低^[25]. 在海洋边界层,海盐气溶胶的光解是无机 Br(Br_y)产生的最大源^[23,26]. Holms 等^[27]观测到海洋边界层的 RGM(活性气态汞)日变化趋势与 Br 的氧化趋势一致. 而监测点地处海南岛,白天大气中溴参与的光化学反应可能导致白天 TGM 值降低.

不同条件下的 TGM 日变化可能会有较大的不同. 为了更全面认识本地 TGM 的日变化,选取典型污染日和气象日进行 TGM 日变化分析. 12 月 15 日至 12 月 17 日,五指山地区 TGM 显著处于高值;10 月 4 日至 10 月 6 日,台风“尼格”登陆影响海南. 如图 6 所示,在典型的污染日和气象条件(台风日)下观测到 TGM 的日变化差异较大,如 12 月 15 日,受

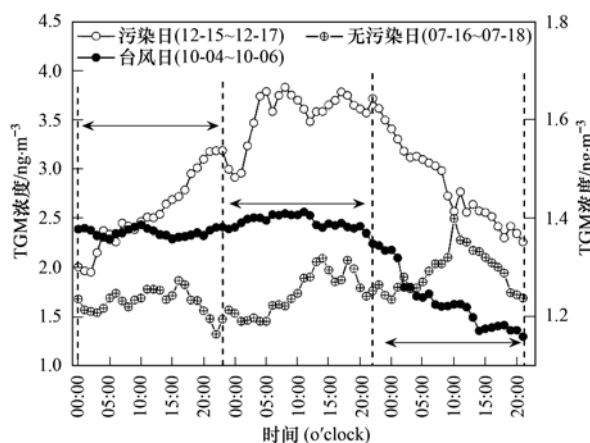


图 6 典型污染日和台风日大气气态总汞的日变化

Fig. 6 Daily variation of TGM concentration at WZ mountain during the typical pollution and stormy weather days

东北风的持续影响,五指山地区 TGM 浓度一直上升,表现为一个显著的污染迁移过程,12 月 16 日表现为显著的积累过程,而 12 月 17 日,TGM 浓度一直下降,日变化表现为一个显著的污染清除过程. 类似的,台风登陆后前两天,TGM 日变化很小,但在 10 月 6 日,TGM 也表现为与 12 月 17 日类似的污染清除过程. 这说明本地 TGM 日变化也受到了汞的长距离输送的影响. 通过对比发现,无污染时期 3 d 内的 TGM 日变化趋势与全年日变化趋势较为一致,这段时间当地的气象条件(太阳辐射、气温、边界层高度等)可能起到主要作用.

2.4 典型污染过程汞来源分析

由图 2 可以看出,整个监测期间,TGM 浓度在部分时段处于高值,为了弄清楚出现高值的原因并判断其来源,利用美国国家海洋和大气管理局(NOAA)大气资源实验室(ARL)的 HYSPLIT 后向轨迹模型对典型污染过程进行了分析.

以 2011 年 5 月一次典型污染过程为例. 风向频率玫瑰图(图 7)和后向轨迹模型分析结果(图 8)显示,5 月 22 日之前气团主要来自于西南海面[图 7(a)和 8(a)],这段时间 TGM 含量处于较低水平(日均值为 $1.68 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),而从 22 日 19:00 时直至 28 日 TGM 都维持高浓度(日均值达 $4.38 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),这段时间气团主要来自珠三角方向[图 7(b)和 8(b)],此时气团携带了高含量汞^[12],导致高值产生. 自 5 月 28 日 22:00 开始,至 5 月 30 日 TGM 浓度有所降低(小时均值 $3.95 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),气团主要来自珠三角、海南东北海面方向[图 8(c)]. 5 月 30 日 17:00 开始,TGM 含量有明显的下降(小时均值 $2.89 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),且维持到 6 月 2 日 05:00,这段气团

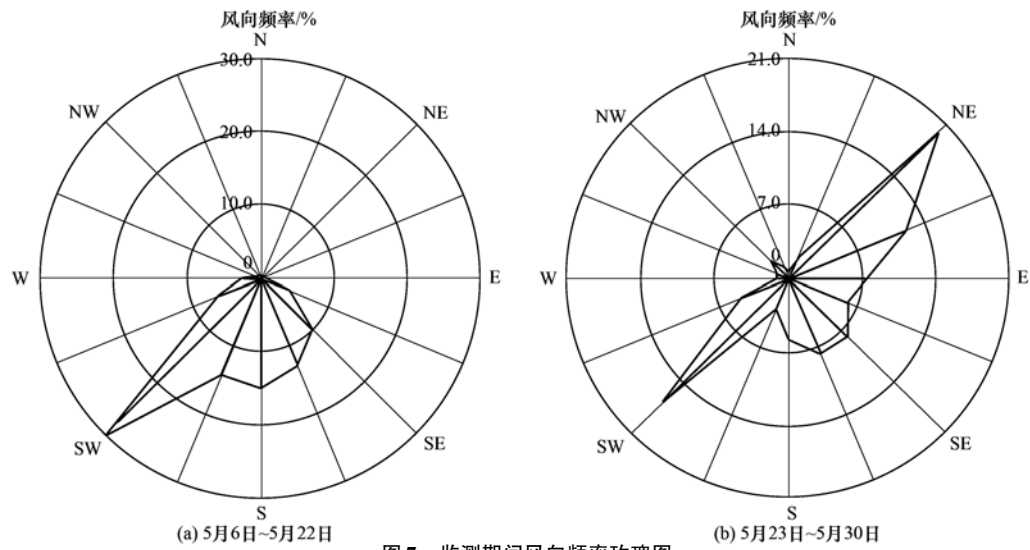


图 7 监测期间风向频率玫瑰图

Fig. 7 Frequency distribution of wind directions at WZS mountain during the monitoring period

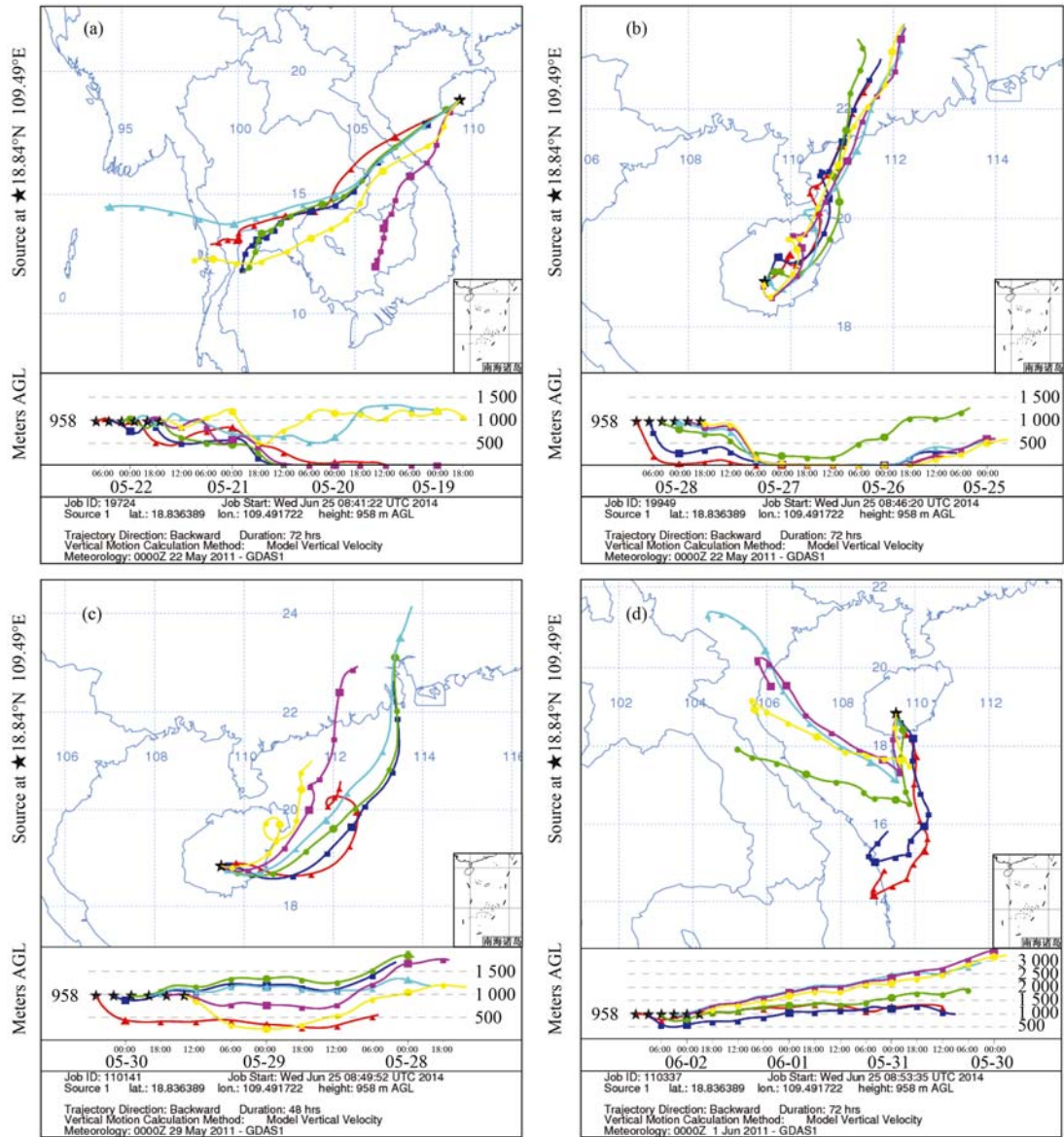


图 8 五指山地区后向轨迹分析结果

Fig. 8 HYSPLIT analysis results for WZ mountain

主要来自于西南方向,并在海面转变方向,从西南面进入五指山地区[图 8(d)],到 6 月 3 日 06:00, TGM 浓度恢复到正常值(小时均值 $1.52 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)。另外 8 月 28 日至 9 月 01 日、9 月 19 日至 9 月 30 日、11 月 09 日至 11 月 16 日、12 月 8 日至 12 月 17 日高汞含量气团主要来自广东方向,而广西以及福建沿海方向气团对五指山的 TGM 也有一定的贡献。已有研究也表明,南海 TGM 浓度受到了气团的长距离迁移影响^[18]。

3 结论

(1)总体来说,五指山的年均 TGM 含量与全球大气汞背景值相当,表明五指山地区还未受到明显的汞污染,能较好监测区域汞的长距离迁移。

(2)五指山地区 TGM 具有明显的月变化特征。9 月至次年 1 月 TGM 含量较高,其他月份 TGM 处于较低水平,热带季风是影响 TGM 月变化的主要因素。

(3)五指山 TGM 具有明显的日变化特征,晚上 TGM 含量较高。日变化主要受到汞的长距离输送的影响,本地太阳辐射、气温、边界层高度、风速以及 Br 对大气汞的氧化都会 TGM 日变化过程有一定的贡献。

(4)典型污染过程期间的后向轨迹分析表明,五指山地区高含量 TGM 明显是受大气汞的长距离迁移影响,广东地区方向气团贡献最大。

参考文献:

- [1] Schroeder W H, Munthe J. Atmospheric mercury-An overview [J]. *Atmospheric Environment*, 1998, **32**(5): 809-822.
- [2] Fu X W, Feng X B, Liang P, *et al.* Temporal trend and sources of speciated atmospheric mercury at Waliguan GAW station, North-western China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(4): 1951-1964.
- [3] Wan Q, Feng X B, Lu J L, *et al.* Atmospheric mercury in Changbai Mountain area, northeastern China I: The seasonal distribution pattern of total gaseous mercury and its potential sources [J]. *Environmental Research*, 2009, **109**: 201-206.
- [4] Fu X W, Feng X B, Shang L H, *et al.* Two years of measurements of atmospheric total gaseous mercury (TGM) at a remote site in Mt. Changbai area, Northeastern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(9): 4215-4226.
- [5] Fu X W, Feng X B, Zhu W Z, *et al.* Total gaseous mercury concentrations in ambient air in the eastern slope of Mt. Gongga, South-Eastern fringe of the Tibetan plateau, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(5): 970-979.
- [6] Fu X W, Feng X B, Wang S F, *et al.* Temporal and spatial distributions of total gaseous mercury concentrations in ambient air in a mountainous area in southwestern China: implications for industrial and domestic mercury emissions in remote areas in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2009, **407**(7): 2306-2314.
- [7] Fu X W, Feng X B, Dong Z Q, *et al.* Atmospheric gaseous elemental mercury (GEM) concentrations and mercury depositions at a high-altitude mountain peak in south China [J]. *Atmosphere Chemistry and Physics*, 2010, **10**(5): 2425-2437.
- [8] 窦红颖, 王书肖, 王龙, 等. 长三角背景地区秋冬季节大气气态总汞含量特征研究[J]. *环境科学*, 2013, **34**(1): 1-7.
- [9] Tseng C M, Liu C S, Lamborg C. Seasonal changes in gaseous elemental mercury in relation to monsoon cycling over the northern South China Sea [J]. *Atmosphere Chemistry and Physics*, 2012, **12**(16): 7341-7350.
- [10] Wu M, Wu D, Fan Q, *et al.* Observational studies of the meteorological characteristics associated with poor air quality over the Pearl River Delta in China [J]. *Atmosphere Chemistry and Physics*, 2013, **13**(21): 10755-10766.
- [11] Zheng J Y, Zhang L J, Che W W, *et al.* A highly resolved temporal and spatial air pollutant emission inventory for the Pearl River Delta Region, China and its uncertainty assessment [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(32): 5112-5122.
- [12] Chen L G, Liu M, Xu Z C, *et al.* 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 [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **77**: 757-766.
- [13] Lindberg S, Bullock R, Ebinghaus R, *et al.* A synthesis of progress and uncertainties in attributing the sources of mercury in deposition [J]. *AMBIO*, 2007, **36**(1): 19-32.
- [14] Valente R J, Shea C, Humes K, *et al.* Atmospheric mercury in the Great Smoky Mountains compared to regional and global levels [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(9): 1861-1873.
- [15] Kim K H, Ebinghaus R, Schroeder W H, *et al.* Atmospheric mercury concentrations from several observatory sites in the northern hemisphere [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2005, **50**(1): 1-24.
- [16] Li Z, Xia C H, Wang X M, *et al.* Total gaseous mercury in Pearl River Delta region, China during 2008 winter period [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(4): 834-838.
- [17] Sheu G R, Lin N H, Wang J L, *et al.* Temporal distribution and potential sources of atmospheric mercury measured at a high-elevation background station in Taiwan [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(20): 2393-2400.
- [18] Fu X W, Feng X B, Zhang G, *et al.* Mercury in the marine boundary layer and seawater of the South China Sea: concentrations, sea/air flux, and implication for land outflow [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2010, **115**, D06303. doi: 10. 1029/2009JD012958.
- [19] Bonzongo J C J, Donkor A K. Increasing UV-B radiation at the earth's surface and potential effects on aqueous mercury cycling

- and toxicity[J]. *Chemosphere*, 2003, **52**(8): 1263-1273.
- [20] Fu X W, Feng X B, Zhang H, *et al.* Mercury emissions from natural surfaces highly impacted by human activities in Guangzhou province, South China [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **54**: 182-193.
- [21] Liu F, Cheng H X, Yang K, *et al.* Characteristics and influencing factors of mercury exchange flux between soil and air in Guangzhou City [J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2014, **139**: 115-121.
- [22] 张振州, 蔡旭晖, 宋宇, 等. 海南岛地区大气边界层高度的时空变化特征[J]. *北京大学学报(自然科学版)*, 2013, **49**(5): 783-790.
- [23] Sander R, Keene W C, Pszenny A A P, *et al.* Inorganic bromine in the marine boundary layer: a critical review[J]. *Atmosphere Chemistry and Physics*, 2003, **3**(5): 1301-1336.
- [24] Selin N E, Jacob D J, Park R J, *et al.* Chemical cycling and deposition of atmospheric mercury: Global constraints from observations[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2007, **112**: D02308, doi: 10.1029/2006JD007450.
- [25] Holmes C D, Jacob D J, Corbitt E S, *et al.* Global atmospheric model for mercury including oxidation by bromine atoms[J]. *Atmosphere Chemistry and Physics*, 2010, **10**(24): 12037-12057.
- [26] Parrella J P, Jacob D J, Liang Q, *et al.* Tropospheric bromine chemistry: implications for present and pre-industrial ozone and mercury[J]. *Atmosphere Chemistry and Physics*, 2012, **12**(15): 6723-6740.
- [27] Holmes C D, Jacob D J, Mason R P, *et al.* Sources and deposition of reactive gaseous mercury in the marine atmosphere [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(14): 2278-2285.

CONTENTS

Simulation and Influencing Factors of Spatial Distribution of PM _{2.5} Concentrations in Chongqing	WU Jian-sheng, LIAO Xing, PENG Jian, <i>et al.</i> (759)
Correlation, Seasonal and Temporal Variation of Water-soluble Ions of PM _{2.5} in Beijing During 2012-2013	YANG Dong-yan, LIU Bao-xian, ZHANG Da-wei, <i>et al.</i> (768)
Characteristics and Sources Apportionment of OC and EC in PM _{1.1} from Nanjing	JIANG Wen-juan, GUO Zhao-bing, LIU Feng-ling, <i>et al.</i> (774)
Composition and Variation Characteristics of Atmospheric Carbonaceous Species in PM _{2.5} in Taiyuan, China	ZHANG Gui-xiang, YAN Yu-long, GUO Li-li, <i>et al.</i> (780)
Characteristics of Organic Carbon and Elemental Carbon in PM _{2.5} in Shouzhou City	LIU Feng-xian, PENG Lin, BAI Hui-ling, <i>et al.</i> (787)
Satellite Retrieval of a Heavy Pollution Process in January 2013 in China	XUE Wen-bo, WU Wei-ling, FU Fei, <i>et al.</i> (794)
Meteorological Mechanism for the Formation of a Serious Pollution Case in Beijing in the Background of Northerly Flow at Upper Levels	LIAO Xiao-nong, SUN Zhao-bin, TANG Yi-xi, <i>et al.</i> (801)
Concentrations and Deposition Fluxes of Different Mercury Species in Precipitation in Jinyun Mountain, Chongqing	QIN Cai-qing, WANG Yong-min, PENG Yu-long, <i>et al.</i> (809)
Variation Characteristics of Total Gaseous Mercury at Wuzhi Mountain (Wuzhishan) Background Station in Hainan	LEI Yu-tao, LIU Ming, CHEN Lai-guo, <i>et al.</i> (817)
Organic and Element Carbon in Foliar Smoke	CHEN Hui-yu, LIU Gang, XU Hui, <i>et al.</i> (824)
Analysis of Characteristics and Products of Chlorobenzene Degradation with Dielectric Barrier Discharge	JIANG Li-ying, CAO Shu-ling, ZHU Run-ye, <i>et al.</i> (831)
Distribution, Sources and Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Surface Sediments of Yangtze Estuary and Zhejiang Coastal Areas	MU Qing-lin, FANG Jie, SHAO Jun-bo, <i>et al.</i> (839)
Adsorption Characteristics of Typical PPCPs onto River Sediments and Its Influencing Factors	WANG Kai, LI Kan-zhu, ZHOU Yi-yuan, <i>et al.</i> (847)
Contamination and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Surface Sediment in Karst Underground River	LAN Jia-cheng, SUN Yu-chuan, SHI Yang, <i>et al.</i> (855)
Contamination Characteristics and Source Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Multimedium in Karst Underground River	LU Li, WANG Zhe, PEI Jian-guo (862)
Characteristics of Absorption and Fluorescence Spectra of Dissolved Organic Matter from Confluence of Rivers; Case Study of Qujiang River-Jialing River and Fujiang River-Jialing River	YAN Jin-long, JIANG Tao, GAO Jie, <i>et al.</i> (869)
Ultraviolet-Visible (UV-Vis) and Fluorescence Spectral Characteristics of Soil Dissolved Organic Matter (DOM) in Typical Agricultural Watershed of Three Gorges Reservoir Region	WANG Qi-lei, JIANG Tao, ZHAO Zheng, <i>et al.</i> (879)
Absorption and Fluorescence Characteristics of Dissolved Organic Matter (DOM) in Rainwater and Sources Analysis in Summer and Winter Season	LIANG Jian, JIANG Tao, WEI Shi-qiang, <i>et al.</i> (888)
Composition of NOM in Raw Water of Danjiangkou Reservoir of South-to-North Water Diversion Project and Comparison of Efficacy of Enhanced Coagulation	CHENG Tuo, XU Bin, ZHU He-zhen, <i>et al.</i> (898)
Denitrification in Water of Daliao River Estuary in Summer and the Effect of Environmental Factors	YANG Li-biao, LEI Kun, MENG Wei (905)
Sources of Dissolved Organic Carbon and the Bioavailability of Dissolved Carbohydrates in the Tributaries of Lake Taihu	YE Lin-lin, WU Xiao-dong, KONG Fan-xiang, <i>et al.</i> (914)
Canonical Correspondence Analysis of Summer Phytoplankton Community and Its Environmental Factors in Hanfeng Lake	WANG Yu-fei, ZHAO Xiu-lan, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (922)
Temporal Variation of Trophic Status in Drawdown Area of Hanfeng Lake in the Storage Period of Three Gorges Reservoir in China	HUANG Qi, HE Bing-hui, ZHAO Xiu-lan, <i>et al.</i> (928)
Spatial Distribution Pattern and Stock Estimation of Nutrients During Bloom Season in Lake Taihu	JIN Ying-wei, ZHU Guang-wei, XU Hai, <i>et al.</i> (936)
Phytoplankton Community Structure and Eutrophication Risk Assessment of Beiji River	GOU Ting, MA Qian-li, XU Zhen-cheng, <i>et al.</i> (946)
Synergistic Effect of Physical and <i>Chironomus plumosus</i> Combined Disturbance on Regeneration and Transformation of Internal Phosphorus	SHI Xiao-dan, LI Da-peng, WANG Ren, <i>et al.</i> (955)
Effect of Light and Temperature on Growth Kinetics of <i>Anabaena flosaquae</i> Under Phosphorus Limitation	YIN Zhi-kun, LI Zhe, WANG Sheng, <i>et al.</i> (963)
Purification of the Wastewater of Quartz Processing by Mineral-based Porous Granulation Material	WANG En-wen, LEI Shao-min, ZHANG Shi-chun, <i>et al.</i> (969)
Enhanced Reductive Decoloration of Methylene Blue by Polyacrylic Acid Modified Zero-valent Iron Nanoparticles	HE Jing, WANG Xiang-yu, WANG Pei, <i>et al.</i> (980)
Decolorization of Reactive Blue P-3R with Microsphere-supported Binuclear Manganese Complex as a Novel Heterogeneous CWPO Catalyst	SONG Min, ZHANG Lin-ping, ZHONG Yi, <i>et al.</i> (989)
Biosynthetic Schwertmannite as Catalyst in Fenton-like Reactions for Degradation of Methyl Orange	WANG Kuai-bing, FANG Di, XU Zhi-hui, <i>et al.</i> (995)
Enhanced Nitrogen and Phosphorus Removal of Wastewater by Using Sludge Anaerobic Fermentation Liquid as Carbon Source in a Pilot-scale System	LUO Zhe, ZHOU Guang-jie, LIU Hong-bo, <i>et al.</i> (1000)
Transformation Characteristics of Carbon, Nitrogen, Phosphorus and Sulfur During Thermal Hydrolysis Pretreatment of Sludge with High Solid Content	ZHUO Yang, HAN Yun, CHENG Yao, <i>et al.</i> (1006)
Characteristics of Nitrogen and Phosphorus Removal and Control of Membrane Fouling in MBR and SMBR	GUO Xiao-ma, ZHAO Yan, WANG Kai-yan, <i>et al.</i> (1013)
Influence of Substrate COD on Methane Production in Single-chambered Microbial Electrolysis Cell	TENG Wen-kai, LIU Guang-li, LUO Hai-ping, <i>et al.</i> (1021)
Ion Specificity During Ion Exchange Equilibrium in Natural Clinoptilolite	HE Yun-hua, LI Hang, LIU Xin-min, <i>et al.</i> (1027)
Assessment of Heavy Metal Pollution and Potential Ecological Risks of Urban Soils in Kaifeng City, China	LI Yi-meng, MA Jian-hua, LIU De-xin, <i>et al.</i> (1037)
Effects of Different Cultivation Patterns on Soil Aggregates and Organic Carbon Fractions	QIU Xiao-lei, ZONG Liang-gang, LIU Yi-fan, <i>et al.</i> (1045)
Effects of Chinese Prickly Ash Orchard on Soil Organic Carbon Mineralization and Labile Organic Carbon in Karst Rocky Desertification Region of Guizhou Province	ZHANG Wen-juan, LIAO Hong-kai, LONG Jian, <i>et al.</i> (1053)
Rare Earth Elements Content in Farmland Soils and Crops of the Surrounding Copper Mining and Smelting Plant in Jiangxi Province and Evaluation of Its Ecological Risk	JIN Shu-lan, HUANG Yi-zong, WANG Fei, <i>et al.</i> (1060)
Combined Toxicity of Cadmium and S-metolachlor to <i>Scenedesmus obliquus</i>	ZHANG Xiao-qiang, HU Xiao-na, CHEN Cai-dong, <i>et al.</i> (1069)
Effect of Degradation Succession Process on the Temperature Sensitivity of Ecosystem Respiration in Alpine <i>Potentilla fruticosa</i> Scrub Meadow	LI Dong, LUO Xu-peng, CAO Guang-min, <i>et al.</i> (1075)
Ecological Stoichiometric Characteristics in Leaf and Litter Under Different Vegetation Types of Zhifanggou Watershed on the Loess Plateau, China	LI Xin, ZENG Quan-chao, AN Shao-shan, <i>et al.</i> (1084)
Denitration Mechanism of Monoclinic-phase Nano Zirconium Oxide-based Catalysts	YE Fei, LIU Rong, GUAN Hao, <i>et al.</i> (1092)
Characterization of Phosphorus Forms in Different Organic Materials	DENG Jia, HU Meng-kun, ZHAO Xiu-lan, <i>et al.</i> (1098)
Comparative Life Cycle Environmental Assessment Between Electric Taxi and Gasoline Taxi in Beijing	SHI Xiao-qing, SUN Zhao-xin, LI Xiao-nuo, <i>et al.</i> (1105)
Characteristics of Water Soluble Inorganic Ions in Fine Particles Emitted from Coal-Fired Power Plants	DUAN Lei, MA Zi-zhen, LI Zhen, <i>et al.</i> (1117)
Underlying Mechanisms of the Heavy Metal Tolerance of Mycorrhizal Fungi	CHEN Bao-dong, SUN Yu-qing, ZHANG Xin, <i>et al.</i> (1123)
Research Progress on Microbial Properties of Nitrite-Dependent Anaerobic Methane-Oxidising Bacteria	SHEN Li-dong (1133)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2015年3月15日 第36卷 第3期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 3 Mar. 15, 2015

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行