

滨海城市气溶胶中颗粒态汞的分布特征

张 ！^{1,2}, 赵金平¹, 陈进生^{1*}, 徐亚^{1,2}

(1. 中国科学院城市环境研究所城市环境与健康重点实验室, 厦门 361021; 2. 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要:与气溶胶颗粒相结合的汞,即颗粒态汞,不仅对人体健康及生态环境产生一定的危害,而且在汞的生物地球化学过程扮演重要角色.以我国东南滨海城市厦门市为研究对象,采集郊区、居民区、旅游区、工业区和背景区四季(2008年10月~2009年8月)的 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 和TSP样品,基于塞曼原子吸收法的俄罗斯Lumex RA-915⁺汞分析仪对大气不同粒径颗粒物中颗粒态汞进行了测试.结果表明,厦门市大气不同粒径颗粒物中汞的含量均表现为冬、春两季的浓度明显高于夏、秋两季;春、夏、秋、冬四季细颗粒物($PM_{2.5}$)中的含量分别为 (51.46 ± 19.28) 、 (42.41 ± 12.74) 、 (38.38 ± 6.08) 和 (127.23 ± 33.70) $\mu\text{g}/\text{m}^3$.不同粒径颗粒物中汞主要分布在 $PM_{2.5}$ 中,占到颗粒态汞的42.48%~67.87%,表明细粒子富集汞的能力较强.不同功能区颗粒态汞的浓度分布趋势为背景区<居民区<旅游区<工业区<郊区,说明颗粒态汞浓度的空间分布特征与采样点的环境功能密切相关.——而言,滨海城市大气颗粒态汞含量较低; $PM_{2.5}$ 对颗粒态汞的富集明显高于 PM_{10} 和TSP,表明对颗粒态汞的控制应集中在细颗粒物污染上.

关键词:气溶胶;颗粒态汞;粒径分布;时空分布;滨海城市

中图分类号:X513 文献标识码:A 文章编号:0250-3301(2010)10-2273-06

Distribution Characteristics of Particulate Mercury in Aerosol in Coastal City

ZHANG Fu-wang^{1,2}, ZHAO Jin-ping¹, CHEN Jin-sheng¹, XU Ya^{1,2}

(1. Key Laboratory of Urban Environment and Health, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China; 2. Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract:Particulate mercury, which is bound with aerosol in atmosphere, has a negative impact on human health and the environment, also plays an important role in the biogeochemical process of mercury. In this paper, taking southeast coastal city of Xiamen as research object, the $PM_{2.5}$, PM_{10} and TSP were collected in residential, tourism, industrial area and background, respectively, during four seasons (October 2008-September 2009). RA-915⁺ mercury analyzer was employed to determinate mercury concentration in different size particle matters based on zeeman atomic absorption spectrometry. The results showed that the contents of particulate mercury in different size of aerosol during Winter, Spring were obviously higher than that of Summer, Autumn; the concentrations of particulate mercury in fine particle during Spring, Summer, Autumn and Winter were (51.46 ± 19.28) , (42.41 ± 12.74) , (38.38 ± 6.08) and (127.23 ± 33.70) $\mu\text{g}/\text{m}^3$, respectively. The experimental data showed that the particulate mercury were mainly distributed in fine particles ($PM_{2.5}$), which covered 42.48%~67.87%, and it can be concluded that the rate of particulate mercury enrichment in coarse particle was much lower than that of fine particle. The sequence of atmospheric particulate mercury concentration in different functional areas was: background < resident < tourism < industrial area < suburban; which showed characteristics of spatial distribution of particulate mercury was affected by the sampling location. On the whole, Xiamen had a low level of atmospheric particulate mercury; the enrichment of $PM_{2.5}$ to particulate mercury was significantly higher than that of PM_{10} and TSP, and showed that fine particle pollution should be tightly controlled to reduce particulate mercury.

Key words:aerosol; particulate mercury; size distribution; temporal and spatial distribution; coastal city

汞(Hg)是一种高毒性的、生物体内非必需的重金属元素,也是唯一主要以气态形式存在于大气中的重金属污染物.汞作为一种全球性污染物引起了全世界的广泛关注^[1,2].大气汞依据物理化学形态主要分为:气态单质汞(Hg^0 , gaseous elemental mercury, GEM)、活性气态汞(Hg^{2+} , reactive gaseous mercury, RGM)和颗粒态汞(pHg, particulate mercury, 与大气颗粒物相结合)3种.虽然颗粒态汞占大气总汞的比例不到10%^[3,4],但由于颗粒态汞容易通过干湿沉降方式回到地表,因此在汞的生物地球化学过程中扮演了重要的角色.

近些年,国外对大气颗粒态汞的研究较多^[5,6],但国内研究相对较少^[7].且主要集中在总悬浮颗粒物(TSP)上,对不同粒径颗粒物中颗粒态汞浓度水平及时空分布特征报道不多.而目前,我国大气环境中汞的背景值呈现上升趋势^[8],城区细颗粒物($PM_{2.5}$)的污染日趋加重,细颗粒物不仅加重了城市

收稿日期:2009-12-23;修订日期:2010-03-23

基金项目:中国科学院知识创新工程重要方向项目(KZCX2-YW-422-4, KZCX2-YW-JS404)

作者简介:张! (1983~),男,博士研究生,主要研究方向为大气环境化学, E-mail: fwzhang@iue.ac.cn

* 通讯联系人, E-mail: jschen@iue.ac.cn

的灰霾现象问题,同时,由于细颗粒物可以直接进入人体的肺部,对人体健康带来很大的危害.因此,加强对大气颗粒态汞,特别是吸附在细颗粒物上颗粒态汞的时空分布特征研究显得尤为重要.

厦门市地处我国东南沿海,是典型的滨海城市,春、秋、冬季主导风向为东北风,夏季主导风向为西南风.与国内的许多城市一样,面临着经济发展过程中大气环境质量恶化的问题.因此,以厦门大气环境中的颗粒态汞作为研究对象,开展大气颗粒态汞的时空分布与粒径分布特征分析,对了解快速城市化与工业化背景下,滨海城市中大气颗粒态汞的污染水平及健康效应具有重要意义.

1 材料与方 法

1.1 样品采集

从2008年10月~2009年8月分4个季节在厦门不同环境功能区共布置5个采样点.其中,汀溪水库、集美大学城、仙岳小区、厦门大学以及鹭联宾馆分别作为采样的背景区、郊区、居民区、旅游区及工业区采样点,采样点分布图如图1所示.

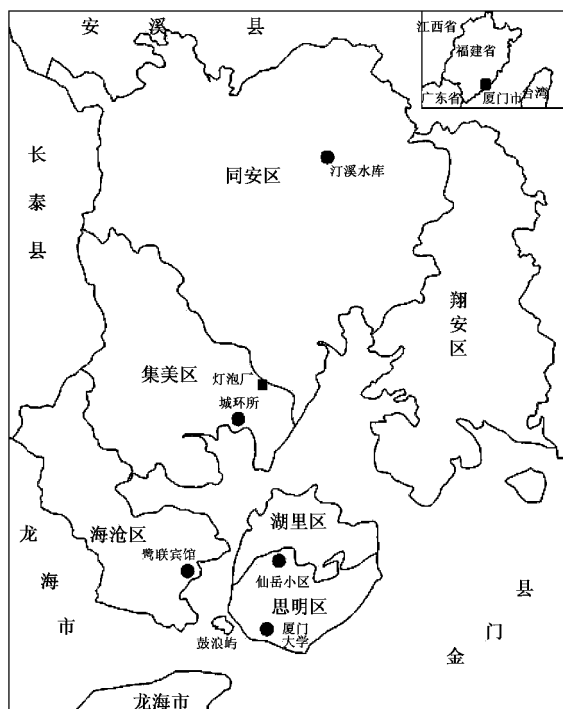


图1 采样点分布示意

Fig. 1 Distribution of sampling sites

采样仪器 (TH-150C III型, 武汉天虹仪器公司), 流速为 100 L/min, 可同时采集 3 种不同的粒径范围的颗粒物 ($PM_{2.5}$: 粒径 $\leq 2.5 \mu m$; $PM_{2.5-10}$: $2.5 \mu m$

$< \text{粒径} \leq 10 \mu m$; PM_{10-100} : $10 \mu m < \text{粒径} \leq 100 \mu m$). 基于 3 中不同粒径颗粒物的重量, 可分别获得细颗粒物 ($PM_{2.5}$)、可吸入颗粒物 (PM_{10}) 和总悬浮颗粒物 (TSP) 的重量, 其中 $PM_{10} = PM_{2.5} + PM_{2.5-10}$, $TSP = PM_{2.5} + PM_{2.5-10} + PM_{10-100}$. 采样时间分别是春季: 2009 年 4 月 15 ~ 30 日, 夏季: 2009 年 7 月 1 ~ 15 日, 秋季: 2008 年 10 月 15 ~ 31 日, 冬季: 2009 年 1 月 1 ~ 15 日. 采样时间 24 h 为 1 个周期, 每个采样点持续 3 个周期.

采样滤膜为石英纤维滤膜 (QM-Whatman, $\phi 75 \text{ cm}/90 \text{ cm}$). 采样前将滤膜在马弗炉中 450°C 焙烧 5 h, 以消除可能存在的汞. 采样前后滤膜放入恒温恒湿箱中平衡 24 h (温度 25°C , 湿度 52%), 用电子分析天平 (T-114) 称重获得颗粒物重量. 采样后的滤膜用铝箔纸封装后放入冰箱中低温保存待分析.

1.2 仪器分析条件

大气颗粒态汞的测定方法主要有“冷原子吸收法”和“原子荧光光谱法”^[9-12]. 这 2 种方法各有优缺点, 本研究采用俄罗斯 Lumex 公司的 RA-915⁺ 汞分析仪及其固体样品热解附件 (PYRO-915⁺), 基于滤膜样品汞的热解释放与塞曼效应的原子吸收法原理进行分析测定, 样品无需繁琐复杂的消解等处理, 具有快速、精确和操作简单等优点.

1.3 质量控制

本研究所用仪器的检测限为 0.50 ng/g ; 标准样品为 Lumex 公司所提供, 其含汞量为 300 ng/g , 标样的实测值是 $(298.87 \pm 6.89) \text{ ng/g}$.

本研究质量控制的主要措施: ①对滤膜进行焙烧, 分析得到其空白值为: $(2.45 \pm 0.78) \text{ ng/g}$; ②每分析 10 个样品进行 1 个标准样品测试, 以检查仪器的稳定性; ③与常规方法 (EPA1630) 进行平行样比对. 常规方法分析的 2 组结果分别是: $(97.24 \pm 5.31) \text{ ng/g}$ 和 $(38.99 \pm 4.35) \text{ ng/g}$, 基于本研究方法的平行样分析结果分别是: $(98.40 \pm 4.04) \text{ ng/g}$ 和 $(39.20 \pm 4.09) \text{ ng/g}$.

2 结果与讨论

2.1 大气颗粒态汞的浓度水平

表 1 是不同粒径颗粒物中颗粒态汞浓度的季节分布. 由表 1 可以看出, 研究期间内 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、TSP 的汞浓度范围分别是 $21.37 \sim 168.66$ 、 $34.02 \sim 239.86$ 和 $36.24 \sim 270.13 \text{ pg/m}^3$.

厦门市大气总悬浮颗粒物 (TSP) 中颗粒态汞年平均浓度为 109.09 pg/m^3 , 低于我国环境空气质量

表 1 不同粒径颗粒物中颗粒态汞平均浓度的季节分布¹⁾/pg·m⁻³Table 1 Average concentration of atmospheric particulate mercury during different season in different sites/pg·m⁻³

季节	采样时间	分布	浓度范围	平均值	标准偏差	变异系数
春季	2009-04-15 ~ 2009-04-30	Hg(PM _{2.5})	21.37 ~ 75.17	51.46	19.28	37.47
		Hg(PM ₁₀)	34.02 ~ 125.75	77.73	32.50	41.82
		Hg(TSP)	36.24 ~ 132.58	83.34	34.14	40.96
夏季	2009-07-01 ~ 2009-07-15	Hg(PM _{2.5})	24.10 ~ 59.25	42.41	12.74	30.03
		Hg(PM ₁₀)	42.49 ~ 115.41	72.26	27.02	37.39
		Hg(TSP)	48.08 ~ 124.65	79.53	28.47	35.80
秋季	2008-10-15 ~ 2008-10-31	Hg(PM _{2.5})	28.84 ~ 45.30	38.38	6.08	15.85
		Hg(PM ₁₀)	43.23 ~ 77.64	59.07	12.52	21.19
		Hg(TSP)	45.81 ~ 83.45	63.24	13.94	22.04
冬季	2009-01-01 ~ 2009-01-15	Hg(PM _{2.5})	77.73 ~ 168.66	127.23	33.70	26.49
		Hg(PM ₁₀)	128.24 ~ 239.86	189.07	41.54	21.97
		Hg(TSP)	135.16 ~ 70.13	205.06	49.29	24.04

1) Hg(PM_{2.5})、Hg(PM₁₀) 和 Hg(TSP) 分别表示颗粒物 PM_{2.5}、PM₁₀ 和 TSP 中颗粒态汞的含量

标准中大气中汞的最高容许浓度 300 ng/m³^[13],但是略高于大气颗粒态汞背景参考值 1 ~ 86 pg/m³^[14]. 和国外研究结果相比,厦门市 TSP 中颗粒态汞浓度高于加拿大魁北克(0.026 ng/m³)^[15]、美国内华达(0.013 ng/m³)^[16]、美国密歇根(0.021 ng/m³)^[17]等地区的大气颗粒态汞浓度;与美国佛罗里达(0.049 ~ 0.093 ng/m³)^[18]、日本东京(0.098 ng/m³)^[19]等地区的颗粒态汞浓度水平相当;但远低于国内的北京市(0.30

~ 0.44 ng/m³)^[20]、长春市(0.260 ~ 0.569 ng/m³)^[21]、兰州市(0.250 ng/m³)^[22]、上海市(0.33 ~ 0.56 ng/m³)^[23]、贵阳市(0.149 ~ 4.853 ng/m³)^[24]等地区的大气颗粒态汞浓度.

PM₁₀也称可吸入颗粒物,PM₁₀易被吸入呼吸系统而影响人体健康,而 PM₁₀上的颗粒态汞,将进一步加剧健康危害.表 2 是北京市和厦门市可吸入颗粒物中颗粒态汞浓度平均值对比情况.

表 2 大气可吸入颗粒物中颗粒态汞浓度的四季平均值/pg·m⁻³Table 2 Average concentration of atmospheric particulate mercury in PM₁₀ during different season/pg·m⁻³

采样点	时间(年)	春季	夏季	秋季	冬季	平均	文献
北京城区	2003	1 470	640	1 280	2 540	1 280	[25]
北京郊区	2003	1 020	370	790	1 510	790	[25]
厦门	2008 ~ 2009	77.73	72.26	59.07	189.07	99.53	本研究

由表 2 可以看出,厦门市 PM₁₀中颗粒态汞含量远远低于北京市 PM₁₀中颗粒态汞含量.北京市郊区 PM₁₀中颗粒态汞浓度是厦门市 PM₁₀中颗粒态汞浓度的 5.12 ~ 13.37 倍,平均值是 9.90 倍;北京市市区 PM₁₀中颗粒态汞浓度是厦门市 PM₁₀中颗粒态汞浓度的 8.86 ~ 21.67 倍,平均值是 15.72 倍,说明厦门市大气可吸入颗粒物中颗粒态汞含量较低,大气颗粒态汞污染较轻.

图 2 是厦门市各采样点颗粒态汞的年平均浓度.从图 2 中可以看出,背景区大气颗粒态汞含量最低,其次是居民区和旅游区,工业区大气颗粒态汞含量较高.作为郊区采样点的集美大学城,颗粒态汞含量略高于工业区大气中颗粒态汞的含量,其中的主要原因是采样点东北方向有一大型节能灯泡厂,节能灯在生产过程使用到汞,生产和回收过程不可避

免地存在一定量的汞污染扩散问题^[26],从而造成郊区采样点大气颗粒态汞含量较高.

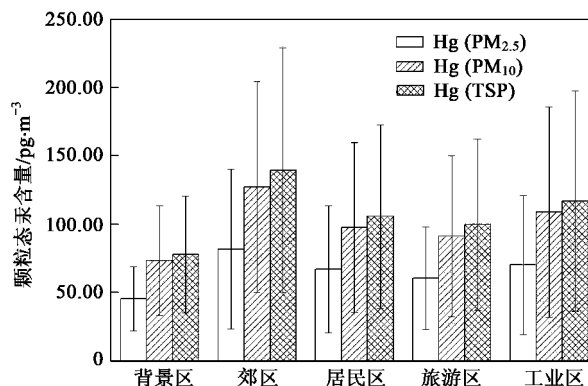


图 2 采样点颗粒态汞年平均浓度

Fig. 2 Annual average concentration of atmospheric particulate mercury in different sites

2.2 大气颗粒态汞浓度的时空分布

由于汞来源的多样性、气象条件的不同和人类生产活动的影响等因素,不同地区大气汞浓度差异较大^[27],并且在一定的时间尺度范围内,大气汞的时间分布模式也是不同的,呈现出不同的时间变化特征^[28].图3是厦门市大气颗粒态汞浓度的季节变化趋势.

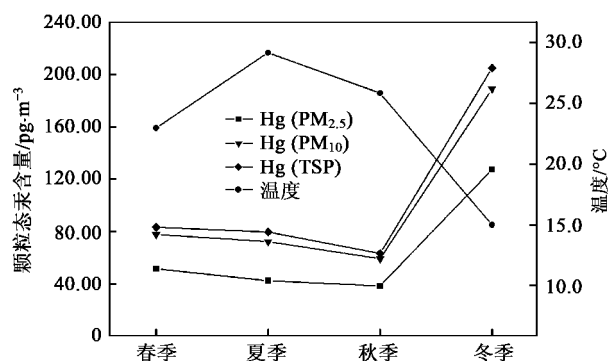


图3 大气颗粒态汞的季节变化趋势

Fig.3 Variation tendency of atmospheric particulate mercury during different season

从图3中可以发现:冬季颗粒态汞浓度最高,其次是春季,再次是夏季,秋季颗粒态汞浓度最低.颗粒态汞的浓度高值出现在冬、春两季的样品,低值则出现在夏、秋两季的样品.厦门市大气颗粒态汞浓度季节变化趋势与陈作帅等^[25]在北京对大气可吸入颗粒物中颗粒态汞的研究结果相似;与 Poissant 等^[29]在加拿大魁北克,王章玮等^[30]在北京对大气总悬浮颗粒物中颗粒态汞的研究结果趋势较为一致.厦门市冬季大气颗粒态汞浓度最高,最高值可达 270.13 pg/m³,冬季浓度是夏季浓度的 2.42 倍.从图3也可以发现,颗粒态汞浓度与气温之间具有较好的负相关性,与 Sakata 等^[19]对东京大气中颗粒汞随温度变化研究的结论一致.冬季颗粒态汞浓度较高的原因与冬季逆温现象以及来自北方(如长江三角洲)的气团等因素有关.逆温过程导致污染物不易扩散,颗粒态汞更容易在近地层大气中聚集;有报道显示^[23]:长江三角洲上海等城市大气颗粒态汞浓度高于厦门市颗粒态汞浓度,来自北方的气团对厦门市冬季高浓度大气颗粒态汞有一定的贡献.夏季则由于大气对流活动明显,大气扩散性好,同时雨水冲刷作用大,颗粒物的累积性差,因此,颗粒态汞含量相对较低.

图4分别是 PM_{2.5}、PM₁₀、TSP 中汞浓度的时空分布情况,3种粒径的颗粒态汞的季节变化趋势基

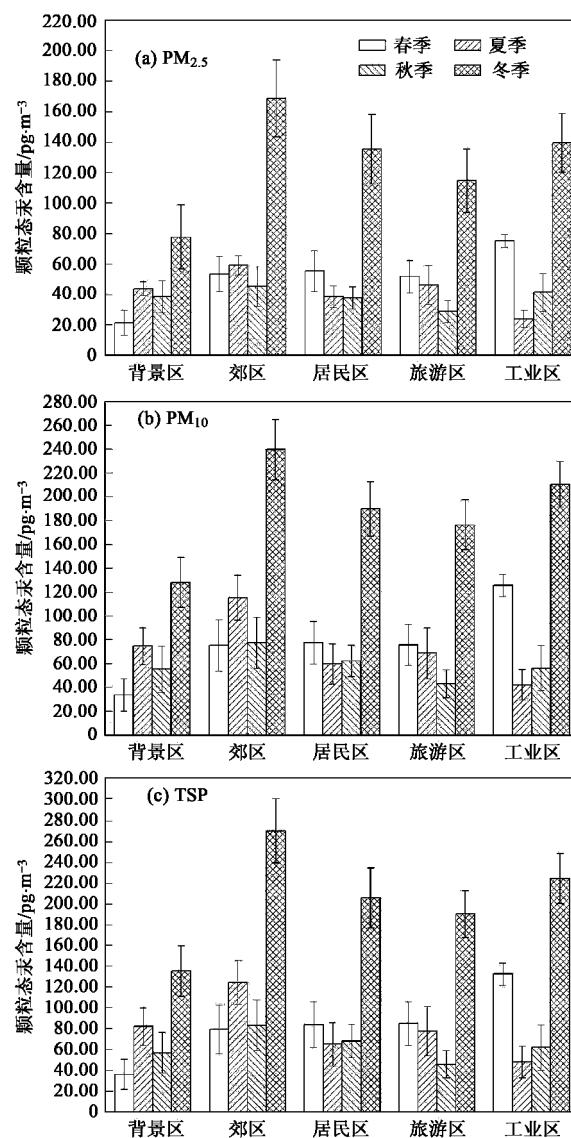


图4 PM_{2.5}、PM₁₀、TSP 中颗粒态汞的时空分布

Fig.4 Temporal and spatial distribution of particulate mercury in PM_{2.5}, PM₁₀ and TSP

本一致,即秋季<夏季<春季<冬季,需要说明的是背景区和郊区夏季大气颗粒态汞含量高于春季,分析原因,与背景区和郊区周围植被茂盛,水体开阔有关,夏季气温最高,植物的蒸腾作用以及水气界面较为强烈的交换作用,均可能导致周围大气中汞含量上升.这与 Hanson 等^[31]测定幼苗及成树的汞释放量以及估算北方森林植被的汞释放量^[32]的研究结果较为一致.同时,王少锋^[33, 34]、冯新斌^[35]、孙向彤^[36]等研究证明夏季土壤和水体向大气的释汞通量远高于其他季节.因为夏季气温高,光照强,汞的物理和化学活动较强,有利于进行物理扩散和化学反应,从而促使土壤和水体中的汞向大气中释放.

2.3 大气颗粒态汞的粒径分布

图 5 是厦门市大气颗粒态汞的粒径分布特征。从图 5 中可以看出,4 个季节各个采样点中细颗粒物($PM_{2.5}$)中颗粒态汞占了 TSP 颗粒物中颗粒态总汞的 47.53% ~ 67.87%,粗颗粒物($PM_{2.5-10}$)中颗粒态汞占了 TSP 颗粒物中颗粒态总汞的 24.26% ~ 45.05%,这表明细颗粒物($PM_{2.5}$)富集颗粒态汞能力强。

春、秋、冬 3 个季各粒径颗粒物中颗粒态汞含量较稳定、一致, $PM_{2.5}$ 、 $PM_{2.5-10}$ 、 PM_{10-100} 颗粒物中颗粒态汞分别占 TSP 中颗粒态汞含量的 $61.74\% \pm 4.45\%$ 、 $31.37\% \pm 4.80\%$ 和 $6.89\% \pm 2.32\%$ 。而夏季各粒径颗粒物中颗粒态汞含量变化较大, $PM_{2.5-10}$ 和 PM_{10-100} 中颗粒态汞含量比例大幅增加,分别达 $36.51\% \pm 6.07\%$ 和 $9.51\% \pm 1.91\%$ 。主要是因为夏季大气汞源的变化,研究表明煤中汞在燃烧过程中有 75% 释放到大气中^[37],全球质量平衡估算表明由人为源释放到大气中的汞有 1/3 来自煤燃烧^[38],夏季以燃煤为主的工业排放的细颗粒污染物^[39]减小,而土壤、植物和水体等自然源释放的汞更多的会被吸附在粗颗粒物($PM_{2.5-10}$)上,所以,夏季粗颗粒物($PM_{2.5-10}$)中颗粒态汞含量大幅增加。

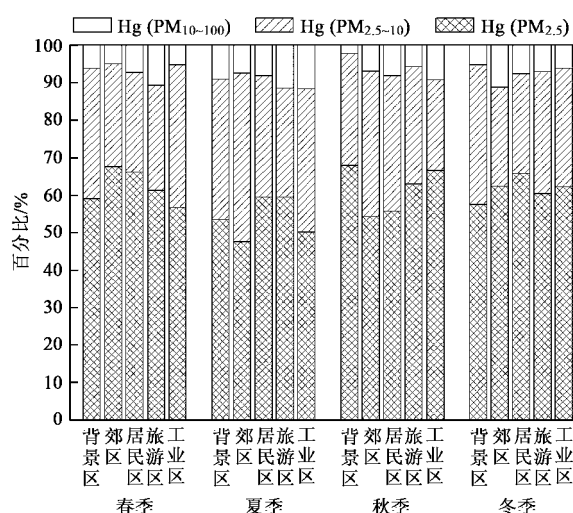


图 5 大气颗粒态汞的粒径分布

Fig. 5 Size distribution of atmospheric particulate mercury

3 结论

(1) 本研究采用基于塞曼原子吸收法的 LumexRA-915⁺ 汞分析仪对厦门市 4 个季节不同粒径颗粒物中颗粒态汞进行了分析。该方法具有快速、精确、可重复和操作简单的优点。

(2) 厦门市大气细颗粒物中颗粒态汞春、夏、秋、冬四季浓度分别为: (51.46 ± 19.28) 、 (42.41 ± 12.74) 、 (38.38 ± 6.08) 和 (127.23 ± 33.70) pg/m^3 ;其季节分布为:秋季 < 夏季 < 春季 < 冬季;厦门市大气总悬浮颗粒物中颗粒态汞年平均浓度为 $109.09 \text{ pg}/\text{m}^3$,与国内其他城市比较而言其浓度相对较低,与国外许多城市相比其浓度相当或略高。

(3) 厦门市不同功能区大气颗粒态汞分布:背景区 < 居民区 < 旅游区 < 工业区 < 郊区;说明不同污染源的排放是影响颗粒态汞空间分布的重要因素。

(4) 大气颗粒态汞在不同粒径分布显示,颗粒态汞主要分布在细粒子中,说明细粒子富集汞的能力较粗粒子强。

致谢:本研究的采样工作得到了厦门大学、汀溪水库管理站和鹭联宾馆管理人员的大力协助,在此表示感谢!

参考文献:

- [1] Chiaradia M, Cupelin F F. Gas to particle conversion of mercury, arsenic and selenium through reactions with traffic-related compounds? Indications from lead isotopes-implications for atmospheric Hg cycling [J]. Atmos Environ, 2000, **34** (2): 327-332.
- [2] Ebinghaus R, Slemr F. Air craft measurements of atmospheric mercury over southern and eastern Germany [J]. Atmos Environ, 2000, **34** (6): 895-903.
- [3] Poissant L, Pilote M, Beauvais C, et al. Total Gaseous Mercury in Quebec (Canada) in 1998 [J]. Sci Total Environ, 2000, **259** (1-3): 191-201.
- [4] Airey D, Ones P J. Mercury in the River Mersey, its estuary and its tributaries during 1973 and 1974 [J]. Water Res, 1982, **16**: 565-577.
- [5] Lu J Y, Schroeder W H, Berg T, et al. A device for sampling and determination of total particulate mercury in ambient air [J]. Anal Chem, 1998, **70** (11): 2403-2408.
- [6] Petersen G, Iverfeldt A, Muthne J. Atmospheric mercury species over central and northern Europe, model calculations and comparison with observations from the Nordic air and precipitation Network for 1987 and 1988 [J]. Atmos Environ, 1995, **29** (1): 47-67.
- [7] 王定勇, 李孝华, 吴成. 重庆大气汞初步调查[J]. 重庆环境科学, 1996, **18** (4): 58-64.
- [8] 刘俊华, 王文华, 彭安. 北京市工业区环境中汞含量及其来源的初步研究[J]. 环境科学学报, 1997, **18** (3): 215-217.
- [9] 王章玮, 张晓山, 张逸, 等. 北京市大气颗粒物 $PM_{2.5}$, PM_{10} 及降雪中的汞[J]. 环境化学, 2004, **23** (6): 668-673.
- [10] 李仲根, 冯新斌, 郑伟, 等. 大气中不同形态汞的采集和分析方法[J]. 中国环境监测, 2007, **23** (2): 19-25.
- [11] 王章玮, 张晓山, 张逸, 等. 汞在不同粒径大气颗粒物中的

- 分布[J]. 环境化学, 2005, **24**(1): 72-75.
- [12] 何灿, 高良敏, 汪桂林, 等. AMA254 汞分析仪测定颗粒物中痕量总汞的研究[J]. 中国环境监测, 2009, **25** (4): 26-29.
- [13] 国家环境保护局. 空气和废气监测分析方法[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990. 495.
- [14] Keeler G J, Glinsorn G, Pirrone N. Particulate mercury in the atmosphere: it's significance on transport, transformation and source [J]. Water Air Soil Poll, 1995, **80** (1-4): 159-168.
- [15] Poissant L, Pilote M, Beauvais C, *et al.* A year of continuous measurements of three atmospheric mercury species (GEM, RGM and Hgp) in southern Québec, Canada [J]. Atmos Environ, 2005, **39** (7): 1275-1287.
- [16] Peterson C, Gustin M, Lyman S. Atmospheric mercury concentrations and speciation measured from 2004 to 2007 in Reno, Nevada, USA [J]. Atmos Environ, 2009, **43** (30): 4646-4654.
- [17] Liu B, Keeler G J, Dvonch J T, *et al.* Temporal variability of mercury speciation in urban air [J]. Atmos Environ, 2007, **41** (9): 1911-1923.
- [18] Guentzel J L, Landing W M, Gill G A, *et al.* Processes influencing rainfall deposition of mercury in florida [J]. Environ Sci Technol, 2001, **35** (5): 863-873.
- [19] Sakata M, Marumoto K. Formation of atmospheric particulate mercury in the Tokyo metropolitan area [J]. Atmos Environ, 2002, **36** (2): 239-246.
- [20] 王文华, 刘俊华, 杨淑兰, 等. 汞在北京大气中细颗粒物上的分布[J]. 上海交通大学学报, 2002, **36** (1): 134-137.
- [21] Fang F M, Wang Q C, Liu R H, *et al.* Atmospheric particulate mercury in Changchun City, China [J]. Atmos Environ, 2001, **35**: 4265-4272.
- [22] 段秀琴, 杨泓. 兰州城区大气粒子态汞的污染状况[J]. 环境监测管理与技术, 1995, **7** (3): 19-20.
- [23] Xiu G L, Cai J, Zhang W Y, *et al.* Speciated mercury in size-fractionated particles in Shanghai ambient air [J]. Atmos Environ, 2009, **43** (19): 3145-3154.
- [24] 郑伟, 冯新斌, 闫海鱼. 贵阳市一居民区大气颗粒态汞的污染状况[J]. 地球与环境, 2007, **35** (2): 154-158.
- [25] 陈作帅, 王章玮, 张晓山. 北京市典型地区大气可吸入颗粒物中汞的浓度水平和粒径分布[J]. 环境化学, 2007, **26** (5): 680-683.
- [26] Jang M, Hong S M, Park J K. Characterization and recovery of mercury from spent fluorescent lamps [J]. Waste Management, 2005, **25** (1): 5-14.
- [27] Pirrone N, Keeler G J, Nriagu J O. Regional differences in worldwide emissions of mercury to the atmosphere [J]. Atmos Environ, 1996, **30** (17): 2981-2988.
- [28] Kim K H, Kim M Y. Some insights into short term variability of total gaseous mercury in urban air [J]. Atmos Environ, 2001, **35** (1): 49-59.
- [29] Poissant L, Pilote M, Beauvais C, *et al.* A year of continuous measure of three atmospheric mercury species (GEM, RGM and Hgp) in southern Quebec, Canada [J]. Atmos Environ, 2005, **39** (7): 1275-1287.
- [30] 王章玮, 张晓山, 张逸, 等. 汞在不同粒径大气颗粒物中的分布[J]. 环境化学, 2005, **24** (1): 72-75.
- [31] Hanson P J, Tabberer T, Lindberg S E. Emissions of mercury vapor from tree bark [J]. Atmos Environ, 1997, **31** (5): 777-780.
- [32] Hanson P J, Lindberg S E, Tabberer T, *et al.* Foliar exchange of mercury vapor: evidence for a compensation point [J]. Water Air Soil Poll, 1995, **80** (1-4): 373-382.
- [33] 王少锋, 冯新斌, 仇广乐, 等. 贵州红枫湖地区冷暖两季土壤/大气界面间汞交换通量的对比[J]. 环境科学, 2004, **25** (1): 123-127.
- [34] 王少锋, 冯新斌, 仇广乐, 等. 万山汞矿区地表与大气界面间汞交换通量研究[J]. 环境科学, 2006, **27** (8): 1487-1494.
- [35] 冯新斌, Jonas S, Katarinal G, 等. 夏季自然水体与大气界面间气态总汞的交换通量[J]. 中国科学(D 辑), 2002, **32** (7): 609-615.
- [36] 孙向彤, 何锦林, 谭红. 贵州红枫湖水面挥发性汞释放通量的测定[J]. 湖泊科学, 2001, **13** (1): 89-92.
- [37] 王启超, 沈文国, 麻壮伟. 中国燃煤汞排放量估算[J]. 中国环境科学, 1999, **19** (4): 318-321.
- [38] Jozef M, Pacyna, Ottar B. Control and Fate of the Atmospheric Trace Metals [M]. Boston: Kluwer Academic, 1989. 3-13.
- [39] Pirrone N, Glinsorn G, Keeler G. Ambient Levels and Dry Deposition Fluxes of Mercury to Lakes Huron, Erie and St. Clair [J]. Water Air Soil Poll, 1995, **80** (1-4): 179-188.