

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

- 主办 中国科学院生态环境研究中心
- 出版 科学出版社



2020

Vol.41 No.7
第41卷 第7期

目次

中国钢铁行业大气环境影响 汤铃, 薛晓达, 伯鑫, 贾敏, 郭静, 田军, 黄满堂, 崔维庚, 王彤, 李时蓓, 敬红, 甄瑞卿, 孙露, 成国庆 (2981)

华北地区大气细颗粒物(PM_{2.5})年际变化及其对土地利用/覆被变化的响应 杨伟, 姜晓丽 (2995)

郑州市民运会期间大气PM_{2.5}改善效果评估 王申博, 娄亚敏, 徐艺斐, 袁明浩, 苏方成, 张瑞芹 (3004)

成都夏冬季PM_{2.5}中水溶性无机离子污染特征 冯炎鹏, 张军科, 黄小娟, 刘琴, 张巍, 张建强 (3012)

川南自贡市大气颗粒物污染特征及传输路径与潜在源分析 雷雨, 张小玲, 康平, 王浩霖, 青泉, 欧奕含, 卢宁生, 邓中慈 (3021)

四川省典型行业挥发性有机物源成分谱 徐晨曦, 陈军辉, 韩丽, 王继钦, 王波 (3031)

成都市工业挥发性有机物排源成分谱 周子航, 邓也, 周小玲, 吴柯颖, 谭钦文, 尹代娟, 宋丹林, 陈秋宇, 曾文斌 (3042)

郑州市典型工业企业VOCs排放特征及风险评估 齐一谨, 倪经纬, 赵东旭, 杨艺, 韩丽岩, 李博伟 (3056)

阳泉市区夏季挥发性有机物污染特征、来源解析及其环境影响 牛月圆, 刘倬诚, 李如梅, 高千卓, 邓萌杰, 闫雨龙, 胡冬梅, 吴婧, 彭林 (3066)

典型光化学污染期间杭州大气挥发性有机物污染特征及反应活性 景盛翱, 叶旭红, 高雅琴, 彭亚荣, 李英杰, 王倩, 沈建东, 王红丽 (3076)

华北地区典型重工业城市夏季近地面O₃污染特征及敏感性 欧盛菊, 魏巍, 王晓琦, 姚森, 周志博, 关攀博, 段文娇, 姚诗音 (3085)

稳定同位素模型解析大气氨来源的参数敏感性 顾梦娜, 潘月鹏, 何月欣, 田世丽, 王彦君, 吕雪梅, 倪雪, 孙杰, 吴电明, 方运震 (3095)

苏州市大气中汞的形态分布特征及来源分析 卢仁杰, 吴也正, 张晓婕, 沈莹, 吴福全, 薛媛媛, 邹强, 麻春艳 (3102)

轻型汽油车稳态工况下的尾气排放特征 谢岩, 廖松地, 朱曼妮, 王怡然, 王日起, 张立航, 余飞, 钟庄敏, 白莉, 黄江荣, 刘俊文, 郑君瑜 (3112)

非超低与超低排放煤电机组启动过程NO_x排放特征对比分析 李辉, 朱法华, 孙雪丽, 王宗爽, 王圣, 裴杰, 谭玉菲, 薛峰, 郭敏, 郑桂博 (3121)

邢台市道路可悬浮灰尘重金属污染特征及来源识别 宋怡, 卢新卫, 周潇, 葛子赫 (3130)

叶片微观结构变化对其颗粒物滞纳能力的影响 魏文俊, 王兵, 牛香 (3136)

关中平原降水氢氧稳定同位素特征及其水汽来源 赵明华, 陆彦玮, Rachana Heng, 司炳成 (3148)

岩溶流域不同水体硝酸盐的来源解析 田永著, 韩志伟, 赵然, 李耕, 曾祥颖, 黄家琰 (3157)

木沥河流域氮素污染及其污染源解析 齐冉, 徐菲菲, 杨帆, 颜昌宙 (3165)

辽河口沉积物环境要素时空动态及影响因素分析 齐玥, 孙永光, 马恭博, 吴楠, 付元宾 (3175)

鄱阳湖多尺度流域磷源输送特征及其生态效应 王朔月, 高扬, 陆瑶, 贾璐杰, 李兆喜, 马明真, 温学发 (3186)

象山港流域入湾河流水体中重金属风险评价及其来源解析 王磊, 汪文东, 刘懂, 李刚, 于红梅, 黄沙, 徐耀阳 (3194)

乐安河河流水体典型全氟化合物的浓度及其前体物的污染贡献 张慧, 王世亮, 余杨 (3204)

连云港海州湾海域表层水体和沉积物中微塑料的分布特征 李征, 高春梅, 杨金龙, 吴立珍, 张硕, 刘艳华, 靳迪迪 (3212)

茅洲河流域民用井中耐药基因的分布特征与健康风险 吴黛灵, 邹海燕, 何璐茜, 高方舟, 应光国, 何良英 (3222)

金盆水库沉积物铁锰释放规律 路林超, 黄廷林, 李楠, 齐允之, 张晗, 王晨旭, 司凡 (3231)

城市湖泊沉积物微塑料污染特征 王璇, 牛司平, 宋小龙, 饶竹, 战楠 (3240)

西藏尼洋河沉积物中微生物群落结构特征分析 刘晓丹, 黄毅, 王永花, 汪贝贝, 吴兵, 陆光华 (3249)

海水中的红霉素与营养盐对微藻的复合影响 王娜, 赵卫红, 苗辉 (3257)

梯级电站作用下牡丹江底栖动物沿程变化规律 温佳琦, 王皓冉, 陈永灿, 刘昭伟 (3266)

宁波市典型城市下垫面雨水径流污染特征解析 徐宇婕, 龚玥敏, 毕军鹏, 王洋, 程军蕊, 王侃 (3275)

分层型水库藻类垂直演替的水质与细菌种群调控 闫苗苗, 陈胜男, 黄廷林, 贾竞宇, 刘凯文, 苗雨甜, 宗容容 (3285)

长距离供水系统中消毒副产物分布特征及二次加氯的影响 毕薇薇, 叶胜, 于健全, 杨玉龙, 陈晨, 李青松, 马晓雁 (3297)

供水管网终端消毒副产物分布特征及预测模型 刘俊萍, 陈镜吉, 宋亚丽, 杨玉龙, 李青松, 马晓雁 (3307)

碱和磁复合改性小麦秸秆生物炭对水体中镉的吸附特性及机制 崔志文, 任艳芳, 王伟, 张黎明, 张陆云, 王曦玥, 何俊瑜 (3315)

弱磁场强化氧化石墨烯负载纳米零价铁(GO-nFe⁰/WMF)对水中Cr(VI)的去除特性及机制 计盟, 鲍建国, 朱晓伟, 杜江坤, 郑汉 (3326)

一硫代砷在针铁矿上的吸附及影响因素 廖丹雪, 单慧娟, 张进贤, 彭三曦, 黄健, 陈辉, 赵超然, 曾春芽 (3337)

生物滤池快速启动ANAMMOX运行策略及菌群特征 王晓瞳, 杨宏, 苏杨, 刘旭妍 (3345)

低碳源条件下供氧模式对活性污泥系统脱氮性能的影响 张欣瑞, 池玉蕾, 王倩, 金鑫, 石炬, 金鹏康 (3356)

羟胺对厌氧氨氧化污泥群落的影响 邢崇阳, 范禹辰, 陈璇, 郭劲松, 申渝, 晏楠, 方芳, 陈猷鹏 (3365)

低温下丝状菌膨胀污泥的微生物多样性 高春娣, 张娜, 韩徽, 任浩, 李悦, 侯春艳, 王传德, 彭永臻 (3373)

我国剩余污泥厌氧消化的主要影响因素及强化 董滨, 高君, 陈思思, 杨殿海, 戴晓虎 (3384)

城镇河流CO₂及CH₄排放与市政排水管网污水输入的关联影响 李磊, 陈浩, 朱奔, 王宇晖, 聂云汉, 赵昕, 贾其隆, 叶建峰 (3392)

控释尿素对黄河故道沙性潮土N₂O排放的影响 姜右锦, 袁俊吉, 丁维新, 刘阳, 张松林 (3402)

我国典型露地蔬菜生产中的温室气体排放 张芬, 程泰鸿, 陈新平, 王孝忠 (3410)

不同母质发育土壤Cd环境行为对水分管理模式的响应差异 黄敬, 李欣阳, 文沙, 蒋凯, 龙坚, 彭佩钦, 侯红波 (3418)

锰基改性生物炭对弱碱性Cd污染土壤团聚体结构以及Cd含量特征的影响 孙彤, 付宇童, 李可, 徐应明, 孙约兵 (3426)

钝化与叶面阻控对不同基因型红菜苔镉累积的影响 曹坤坤, 李成成, 胡学玉, 郭晓, 黄洋 (3434)

叶面喷施2,3-二巯基丁二酸对水稻幼苗镉吸收转运及抗氧化系统的影响 杨晓荣, 黄永春, 刘仲齐, 黄益宗, 程六龙, 张长波 (3441)

《环境科学》征订启事 (3011) 《环境科学》征稿简则 (3084) 信息 (3174, 3185, 3391)

苏州市大气中汞的形态分布特征及来源分析

卢仁杰¹, 吴也正^{1,2}, 张晓婕³, 沈莹¹, 吴福全^{1,2}, 薛媛媛¹, 邹强^{1,2}, 麻春艳^{4*}

(1. 江苏省苏州环境监测中心, 苏州 215000; 2. 江苏省环境保护空气复合污染物监测重点实验室, 苏州 215000; 3. 苏州常卫环保科技有限公司, 苏州 215000; 4. 中国科学院生态环境研究中心, 北京 100085)

摘要: 针对苏州市大气中汞的分布特征和污染来源, 自2018年1月1日至2018年12月31日对苏州市大气中的气态元素汞(GEM)、气态氧化汞(GOM)和颗粒态汞(PBM)进行1 a的连续监测, 并基于浓度权重轨迹分析法(CWT)和浓度玫瑰图法, 研究2018年大气汞来源和浓度变化规律。结果表明, 监测期间苏州市大气中GEM、GOM和PBM浓度分别在 $0 \sim 53.3 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $0 \sim 256 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $0 \sim 5208 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$, 年均浓度分别为 $(2.57 \pm 2.09) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ 、 $(5.27 \pm 15.7) \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $(16.0 \pm 157) \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$ 。其中, GEM是苏州市大气汞的主要成分, 约占99.2%。监测期间, 苏州市大气中GEM季节平均浓度表现出冬季 $(3.17 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}) >$ 春季 $(3.09 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}) >$ 秋季 $(2.30 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}) >$ 夏季 $(1.98 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3})$ 的规律。根据CWT分析结果, 苏州大气中汞迁移具有季节性差异: 春季和冬季的含汞气团主要来自于内陆, 夏季主要来自于苏州本地、黄海和东海, 秋季的含汞气团来自于内陆、黄海和渤海。同时研究发现西北方向来自内陆的大气汞浓度较高, 东方向来自海洋的大气汞浓度较低。苏州市大气中GEM和PBM平均浓度表现为昼间低夜间高, 与大气参数进行相关性拟合, 得出大气中GEM日变化规律与太阳总辐射亦呈显著的相关性($r = -0.664, P < 0.001$), 与湿度呈显著的相关性($r = 0.859, P < 0.001$), 与气温呈显著的相关性($r = -0.866, P < 0.001$); PBM与太阳总辐射呈一般相关性($r = -0.554, P < 0.01$), 与湿度呈显著的相关性($r = 0.835, P < 0.001$), 与气温呈显著的相关性($r = -0.831, P < 0.001$)。苏州市大气中GOM平均浓度在1 d内出现多次峰值(05:00、12:00、18:00和23:00)和谷值(02:00、10:00、15:00和19:00)。GOM浓度升高与早晚高峰燃料油燃烧排放正相关, 亦与 O_3 浓度升高导致GEM氧化生成GOM正相关。

关键词: 气态元素汞; 气态氧化汞; 颗粒态汞; 来源分析; 浓度权重轨迹; 分布特征

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)07-3102-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201910076

Distribution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric Mercury Speciation in Suzhou

LU Ren-jie¹, WU Ye-zheng^{1,2}, ZHANG Xiao-jie³, SHEN Ying¹, WU Fu-quan^{1,2}, XUE Yuan-yuan¹, ZOU Qiang^{1,2}, MA Chun-yan^{4*}

(1. Jiangsu Suzhou Environmental Monitoring Center, Suzhou 215000, China; 2. Key Laboratory of Atmospheric Combined Pollution Monitoring, Environmental Protection Department of Jiangsu Province, Suzhou 215000, China; 3. Suzhou Changwei Environmental Protection Technology Co., Ltd., Suzhou 215000, China; 4. Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100085, China)

Abstract: To explore the variation of mercury in the atmosphere in Suzhou, continuous monitoring of gaseous element mercury (GEM), gaseous oxidized mercury (GOM), and particulate bound mercury (PBM) was conducted from January 1 to December 31, 2018, in Suzhou. The weights trajectory analysis method (CWT) and concentration rose were used to analyze the atmospheric mercury sources and concentration variation. The results showed that during the monitoring period, the concentration ranges of GEM, GOM, and PBM in Suzhou were $0\text{-}53.3 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, $0\text{-}256 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$, and $0\text{-}5208 \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$, respectively. The corresponding annual average concentrations of the three mercury species were $(2.57 \pm 2.09) \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$, $(5.27 \pm 15.7) \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$, and $(16.0 \pm 157) \text{ pg}\cdot\text{m}^{-3}$, respectively. GEM was the main component of atmospheric mercury in Suzhou. During the monitoring period, the average concentration of GEM in Suzhou was highest in winter, higher in spring than in autumn, and lowest in summer. According to the CWT, the mercury-containing air mass in spring and winter predominantly originated from inland; in summer, it mainly originated from the local area, the Yellow Sea, and the East China Sea, and in autumn from inland, the Yellow Sea, and the Bohai Sea. The wind and mercury rose charts showed that atmospheric mercury concentrations were higher from inland and lower from the ocean. During the monitoring period, the average concentrations of GEM and PBM in Suzhou were lower during the day than the night. The diurnal variation of GEM and PBM was significantly and strongly correlated with solar radiation, humidity, and air temperature. The average concentration of GOM showed multiple peaks and valleys in one day. Some peaks were caused by fuel oil combustion emissions, and some by O_3 oxidation with GEM.

Key words: gaseous element mercury; gaseous oxidized mercury; particulate bound mercury; source analysis; concentration-weighted trajectory; distribution characteristic

收稿日期: 2019-10-12; 修订日期: 2020-01-16

基金项目: 江苏省环境监测科研基金项目(1716)

作者简介: 卢仁杰(1988~), 男, 硕士, 工程师, 主要研究方向环境监测综合分析, E-mail: lurenjie990@163.com

* 通信作者, E-mail: cyma@cees.ac.cn

汞是一种持久性的有毒金属污染物,对人类健康和生态环境造成极大危害^[1,2]. 环境中汞的来源分为自然源和人为源,自然源主要来自火山、森林火灾、地热喷口、土壤和水面的蒸发;而人为源主要来自煤炭燃烧、有色金属生产、水泥生产和固体废物焚烧等^[3,4]. 据推测,2010年,全球约有6 500 t汞通过自然源和人为源排放到大气中,东亚和东南亚贡献了全球约40%的人为汞排放^[5]. 目前,随着我国经济快速增长和工业迅速发展,汞作为能源消费的重要污染排放物,我国每年人为大气汞排放量约为500~800 t,占全球人为汞排放总量的30%左右^[6,7],汞污染已经成为我国环境污染问题之一,研究大气汞分布特征和来源有助于从源头控制人为源汞污染的排放,实现汞污染排放的有效控制.

人为源排放的汞会通过大气进行长距离的传输,在沉降到地面之前经历各种物理和化学转变,再到地表水和土壤等环境中. 因而大气汞是汞污染的主要迁移转化过程,大气汞具有3种形态:气态元素汞(gaseous element mercury, GEM 或 Hg^0)、气态氧化汞(gaseous oxidized mercury, GOM 或 Hg^{2+})和颗粒汞(particulate bound mercury, PBM 或 Hg_p)^[3,4]. GEM 是大气中最稳定的汞,占90%以上,在大气中的停留时间0.5~2 a,可以长距离迁移^[6,7]. GEM 在云水中与 O_3 、 OH^- 和 H_2O_2 等氧化剂反应生成 GOM,或在气相中直接被 O_3 氧化;反过来,GOM 被 $\text{SO}_2(\text{g})$ 或 $\text{SO}_3^{2-}(\text{aq})$ 还原转化为 GEM^[8]. GEM 和 GOM 结合或吸附在颗粒物上,形成 PBM^[8]. GOM 和 PBM 具有较高的表面反应活性和水溶性,干湿沉降速率较快,它们在大气中的停留时间较短,仅有几小时到几周不等^[8,9].

近20年,加拿大、美国和欧洲国家通过一系列监测网络对本地区和全球范围内大气汞进行了监测^[10,11]. 目前,全球大气中汞的本底浓度的普遍共识是:北半球约为 $1.50 \sim 1.70 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,南半球约为 $1.10 \sim 1.30 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ ^[12,13]. 由于受大气汞长距离迁移等综合作用,在北极和小部分南极地区监测到 GEM 的年均浓度分别为 $1.60 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.00 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ ^[13]. 2012~2017年南美洲南部的火山带内的 GEM 平均浓度为 $(0.86 \pm 0.16) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,最高浓度出现在春天 $[(0.95 \pm 0.13) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$,最低浓度出现在秋天 $[(0.80 \pm 0.15) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}]$,风向、气温和相对湿度影响 GEM 浓度的动态监测数据^[14].

近年来,我国多地也开展大气中汞的研究工作,2015~2016年,Zhang 等^[15]对北京大气中汞进行了监测,GEM、GOM 和 PBM 的平均浓度分别为 $(4.70 \pm 3.53) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $(18.47 \pm 22.27) \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(85.18$

$\pm 95.34) \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$,研究发现随着 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的升高,PBM 浓度升高,GOM 浓度逐渐降低. Sheu 等^[16]在中国台湾北部的郊区站点开展了大气汞监测,研究发现受局部人为源影响,35%的监测日中,大气汞浓度升高发生在午夜和清晨,通过反向轨迹研究认为我国东部地区雾-霾期间的汞排放可能是中国台湾北部郊区大气汞浓度增强的原因之一. 已开展的区域性大气汞污染研究表明,区域大气汞污染的变化规律差异性较大,针对区域大气汞的污染特征仍然有深入研究的价值.

江苏苏州地处长三角重要的地理位置,经济发达、城市化进程迅速、能源消耗巨大、季节季风强烈,具有独特的自然和人为环境. 本研究针对苏州市大气汞污染特征及来源,在苏州市区设立监测点,采用 Tekran 监测系统对大气中 GEM、GOM 和 PBM 进行连续监测,表征汞的种类,分析汞与共同污染物和气象条件的关系,利用潜在源分析法给出苏州市大气汞的浓度,揭示影响大气汞行为的主要因素和汞污染的潜在来源,并探讨其浓度变化规律和对其它大气污染物的依赖关系.

1 材料与方法

1.1 监测点位和时间

监测点位设置在苏州市环境科学研究所办公大楼四楼楼顶(120.6275°E , 31.2864°N),采样头距离地面高度约为15 m. 采样点周围主要为居民区,1 km 范围内无工业生产污染物排放,往北直线距离500 m 为苏州市护城河,往南直线距离370 m 为苏州市南环高架路,监测点30 km 范围内的汞污染排放点源详见图1.

汞测量工作于2018年1月1日至2018年12月31日开展.

1.2 监测仪器和方法

本研究使用 Tekran 分析仪(2537B/1130/1135, Tekran 公司,美国)对 GEM、GOM 和 PBM 进行测量. 系统自动采样分析过程分成两个周期:第一个周期,采样气体经过采样管路,采样气体中 GEM 直接进入 Tekran 2537B 完成 GEM 分析,而 GOM 和 PBM 则分别富集在 Tekran 1130 和 Tekran 1135 的采样管路中;第二个周期,大流量载气经过采样管路,同时系统依次加热 Tekran 1130(800°C)和 Tekran 1135(500°C)中的采样管路,将富集在采样管路中的 GOM 和 PBM 先后解析成 GEM 并进入 Tekran 2537B 中完成定量分析. 整个大气汞监测系统两个独立过程耦合进行,完成大气中单质汞及其分类化合物的实时连续监测,完成整个采样分析周期需要2 h.



图1 监测点位及其周边汞排放源分布示意

Fig. 1 Location of the sampling site and distribution of industrial Hg emitters

1.3 其它监测指标和气象数据

分别采用 Thermo Fisher 49i、43i、48i、43i 和 5030 (赛默飞世尔科技公司, 美国) 在监测点同时监测 O_3 、 SO_2 、 CO 、 NO_x 和 $PM_{2.5}$ 等大气污染物. 采用 R. M. Young 气象仪 (R. M. Young 公司, 美国) EMM-03/04 在监测点同时监测气温、湿度、太阳总辐射、风速、风向等气象参数. 对仪器进行了定期的测试和校准.

1.4 质量控制和质量保证

Tekran 2537B 仪器日常使用内部 GEM 渗透源进行自动校准, 必要时进行外部手动校准. 对每个纯金药筒分别进行两点校准, 包括零点校准和量程校准. 用人工注入的方法来评估这些使用标准饱和汞蒸气的自动校准. 人工注射与自动校准的相对偏差小于 2%, GEM 的检出限为 $0.1 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$; 检出率在 85%~110% 之间, 平均为 96.3%. 玻璃管涂上 KCl 溶液 (45 g KCl: 250 g H_2O), 每两周更换一次.

收集到的数据是每 2 h 一次, 每天自动校准进行 1 h. 例如, 采样时间第 1 d 是 00:00、02:00、04:00、06:00、08:00、10:00、12:00、14:00、16:00、18:00、20:00 和 22:00, 那么自动化日常校准进行 1 h 和采样时间第 2 d 是 01:00、03:00、05:00、07:00、09:00、11:00、13:00、15:00、17:00、19:00、21:00 和 23:00.

1.5 浓度权重轨迹分析方法

使用浓度权重轨迹分析法 (CWT) 进行大气汞的来源分析. 该方法将研究区域划分为 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ 的网格, 每一个网格内计算权重浓度, 其浓度计算公式如下:

$$c_{ij} = \frac{\sum_{l=1}^M c_l \tau_{ijl}}{\sum_{l=1}^M \tau_{ijl}} \quad (1)$$

式中, c_{ij} 是网格 (i, j) 的权重浓度; c_l 为 l 轨迹对应的浓度; τ_{ijl} 为轨迹 l 在网格 (i, j) 中停留的时长; M 是网格 (i, j) 中轨迹节点数^[17,18].

2 结果与讨论

2.1 大气中汞的浓度

表 1 为苏州市大气中 GEM、GOM 和 PBM 浓度监测统计结果. 苏州市大气中 GEM、GOM 和 PBM 浓度分别在 $0 \sim 53.3 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $0 \sim 256 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $0 \sim 5208 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, 年均浓度分别为 $(2.57 \pm 2.09) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $(5.27 \pm 15.7) \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(16.0 \pm 157) \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$. GEM 约占总汞的 99.2%, 远超 GOM (0.2%) 和 PBM (0.6%), 并高于上海 (97%) 和厦门 (93.7%)^[6]. 总体而言, 苏州大气中 3 种汞含量均高于北半球的本底浓度 (GEM: $1.5 \sim 1.7 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$; GOM 和 PBM: $1 \sim 5 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$)^[12,13].

表 1 GEM、GOM 和 PBM 浓度统计分析

Table 1 Statistical summary for the concentrations of GEM, GOM, and PBM

项目	GEM/ $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$	GOM/ $\text{pg} \cdot \text{m}^{-3}$	PBM/ $\text{pg} \cdot \text{m}^{-3}$
年均值	2.57	5.27	16.0
春季	3.09	15.1	10.9
夏季	1.98	3.04	18.4
秋季	2.30	0.559	19.7
冬季	3.17	2.47	10.3
标准偏差	2.09	15.7	157
最小值	0	0	0
第 10 百分位数	1.19	0	0
第 95 百分位数	5.75	31.4	48.1
最大值	53.3	256	5208

表 2 给出了各地区大气汞浓度, 并按照城市、郊区、农村和偏远 (或背景) 分为 4 类进行大气汞浓度的比较. 从中可以看出, 上海、厦门、南京、台湾、广州、贵阳等市区和郊区的 GEM 在 $2.70 \sim 9.72 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 苏州市大气中的 GEM 年均浓度为 $2.57 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, 相对较低, 甚至低于一些农村和偏远地区的 GEM, 如北京密云 ($3.23 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)、广东万顷沙 ($2.94 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) 和吉林长白山 ($3.58 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$). 即使与吉林长白山之外的偏远地区的 GEM 浓度 ($1.60 \sim 3.41 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) 相比, 苏州的 GEM 浓度也并不算高. 沿海城市上海的两次大气汞浓度监测结果均高于苏州, 同样, 沿海城市厦门的 GEM 监测结果也高于苏州. 贵阳地区 GEM 和 PBM 浓度相对偏高 [GEM 和 PBM 浓度分别为 $(9.72 \pm 10.2) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(368 \pm 676) \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$], 归因于该地区汞冶炼和居民燃煤等人为排放增加所致^[22]. 韩国偏远地区的 GEM 浓度相对较高 [$(3.85 \pm 1.68) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$], 与周边国家的远程输送有关, 同时受海洋排放影响^[35]. 在日本农

村和偏远地区,汞的浓度明显较低($1.90 \sim 2.04 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),但由于受当地汞源的影响,东海村汞的浓度偏高[(3.78 ± 1.62) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$] [37,38]. 北美和欧洲大部分地区的 GEM 浓度低于 $2 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, GOM 和 PBM 浓度分别在 $0.47 \sim 41.6 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $1.61 \sim$

$37.2 \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 之间 [42~47,49,51,52], 低于苏州. 但是由于人为源汞的排放,如水泥生产、石油精炼和氯碱工厂,墨西哥城、上西里西亚地区和罗西格纳诺苏威等地区汞的浓度都较高,达到 $2.8 \sim 8.7 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ [39,40,50].

表 2 全球各地的汞浓度比较

Table 2 Comparison of Hg species at various locations worldwide

国家	站点属性	城市	研究时间	监测方法	GEM / $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$	GOM / $\text{pg} \cdot \text{m}^{-3}$	PBM / $\text{pg} \cdot \text{m}^{-3}$	文献	
中国	市区	江苏苏州	2018-01~12	Tekran 2537, 1130, 1135	2.57 ± 2.09	5.27 ± 15.7	16.0 ± 157	本研究	
	郊区	上海青浦	2013-06~12	Tekran 2537, 1130, 1135	4.19 ± 9.13	21.1 ± 100.7	197.8 ± 877.2	[9]	
	郊区	福建厦门	2012-03~2013-02	Tekran 2537, 1130, 1135	3.50	61.05	174.41	[8]	
	市区	江苏南京	2011-01~12	Tekran 2537	7.90 ± 7.00	— ¹⁾	—	[19]	
	市区	中国台湾台中	2010-03~2011-03	手工监测	6.14 ± 3.91	332 ± 153	71.1 ± 46.1	[20]	
	市区	广东广州	2010-11~2011-10	Tekran 2537	4.60 ± 1.36	—	—	[21]	
	偏远地区	南海北部	2010-03, 04	手工监测	2.01	—	—	[22]	
	市区	贵州贵阳	2009-08~10	Tekran 2537, 1130, 1135	9.72 ± 10.2	35.7 ± 43.9	368 ± 676	[23]	
	市区	上海浦东	2009-08, 09	Tekran 2537	2.70 ± 1.70	—	—	[24]	
	农村	北京密云	2008-12~2009-11	Tekran 2537, 1130, 1135	3.23	10.1	98.2	[25]	
	农村	广东万顷沙	2008-11, 12	Tekran 2537	2.94 ± 2.02	—	—	[26]	
	偏远地区	青藏高原瓦里关	2007-09~2008-09	手工监测	1.98 ± 0.98	7.4 ± 4.8	19.4 ± 18.1	[27]	
	农村	山东威海成山头	2007-07, 10; 2009-01, 04, 05	Lumex RA-915 +	2.31 ± 0.74	—	—	[28]	
	背景点	中国台湾鹿林	2006-04~2007-12	Tekran 2537, 1130, 1135	1.73 ± 0.61	12.1 ± 20.0	2.3 ± 3.9	[29]	
	偏远地区	四川康定贡嘎山	2006 年春天、夏天	Tekran 2537	$1.60 \sim 3.41$	—	—	[30]	
	偏远地区	吉林长白山	2005-08~2006-07	Tekran 2537, 1130, 1135	3.58 ± 1.78	65 ± 84	77 ± 136	[31, 32]	
	韩国	市区	首尔汉南	2005-02~2006-12	Tekran 2537	3.44 ± 2.13	—	—	[33]
		市区	首尔汉南	2005-02~2006-02	Tekran 2537, 1130, 1135	3.22 ± 2.10	27.2 ± 19.3	23.9 ± 19.6	[34]
偏远地区		济州岛	2004-12~2006-04	手工监测	3.85 ± 1.68	—	—	[35]	
日本	农村	鹿儿岛	2010-08~2012-06	手工监测	1.90 ± 0.50	—	—	[36]	
	农村	东海村	2005-10~2006-08	Nihon AM-3	3.78 ± 1.62	—	—	[37]	
	偏远地区	冲绳边户岬	2004-03~05	Tekran 2537, 1130, 1135	2.04 ± 0.38	4.5 ± 5.4	3.0 ± 2.5	[38]	
意大利	海滨市区	罗西格纳诺苏威	2002~2003	手工监测	$2.8 \sim 8.7$	$277 \sim 691$	$25 \sim 70$	[39]	
波兰	市区	上西里西亚地区	2006-010~2007-04	手工监测	6.19	—	100.40	[40]	
英国	市区	牛津	2008-02~4	Tekran 2537	3.17 ± 1.59	—	—	[41]	
格陵兰	偏远地区 (高海拔)	峰会	2007-05, 6	Tekran 2537, 1130, 1135	1.31 ± 0.21	41.6 ± 42.9	37.2 ± 31.9	[42]	
美国	城市、郊区、农村	美国 11 个站点	2008~2010	Tekran 2537, 1130, 1135	1.32 ± 2.02	0.47 ± 12.4	1.61 ± 13.7	[43]	
	郊区	纽约罗契斯特	2007-12~2009-11	Tekran 2537, 1130, 1135	1.6 ± 0.4	5.6 ± 10.3	8.7 ± 12.8	[44]	
	市区	内华达州里诺	2007-02~2009-01	Tekran 2537, 1130, 1135	2.0 ± 0.7	18 ± 22	7 ± 7	[45]	
	偏远地区 (高海拔)	科罗拉多州	2008-04~07	Tekran 2537, 1130, 1135	1.6 ± 0.3	20 ± 21	9 ± 6	[46]	
	农村	亚特兰大	2005~2008	Tekran 2537, 1130, 1135	1.35 ± 0.17	4.43 ± 5.59	8.55 ± 18.8	[47]	
	市区	芝加哥	2007-07~11	Tekran 2537, 1130, 1135	2.5 ± 1.5	17 ± 87	9 ± 20	[48]	
	市区	休斯顿	2006-08~10	Tekran 2537, 1130, 1135	1.66 ± 0.36	6.9 ± 7.9	2.5 ± 5.2	[49]	
墨西哥	市区	墨西哥城	2006-03	Tekran 2537, 1130, 1135	7.2 ± 4.8	62 ± 64	187 ± 300	[50]	
加拿大	海滨市区	新斯科舍	2010-01~2011-12	Tekran 2537, 1130, 1135	1.67 ± 1.01	2.07 ± 3.35	2.32 ± 3.09	[51]	
	农村	安大略伊劳拉	2006-011~2007-08	Tekran 2537, 1130, 1135	1.17	15.10	16.4	[52]	
	市区	多伦多	2003-12~2004-11	Tekran 2537, 1130, 1135	4.5 ± 3.1	14.2 ± 13.2	21.5 ± 26.4	[53]	

1) “—”表示所引文献中未提供相关数据

2.2 大气汞来源分析

2.2.1 大气中汞迁移

由表 1 可见,苏州市大气中 GEM 平均浓度表现为冬季($3.17 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) > 春季($3.09 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) > 秋季($2.30 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$) > 夏季($1.98 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),为了进一

步研究苏州大气汞浓度的季节变化规律,进行了 4 个季节的 GEM 浓度权重轨迹分析法(CWT),详见图 2. 一年四季的汞气团轨迹差异较大:春季的汞气团主要来自于正南方的内陆,少量来自于东南方向的东海;夏季的汞气团来自于本地和东北方向的黄

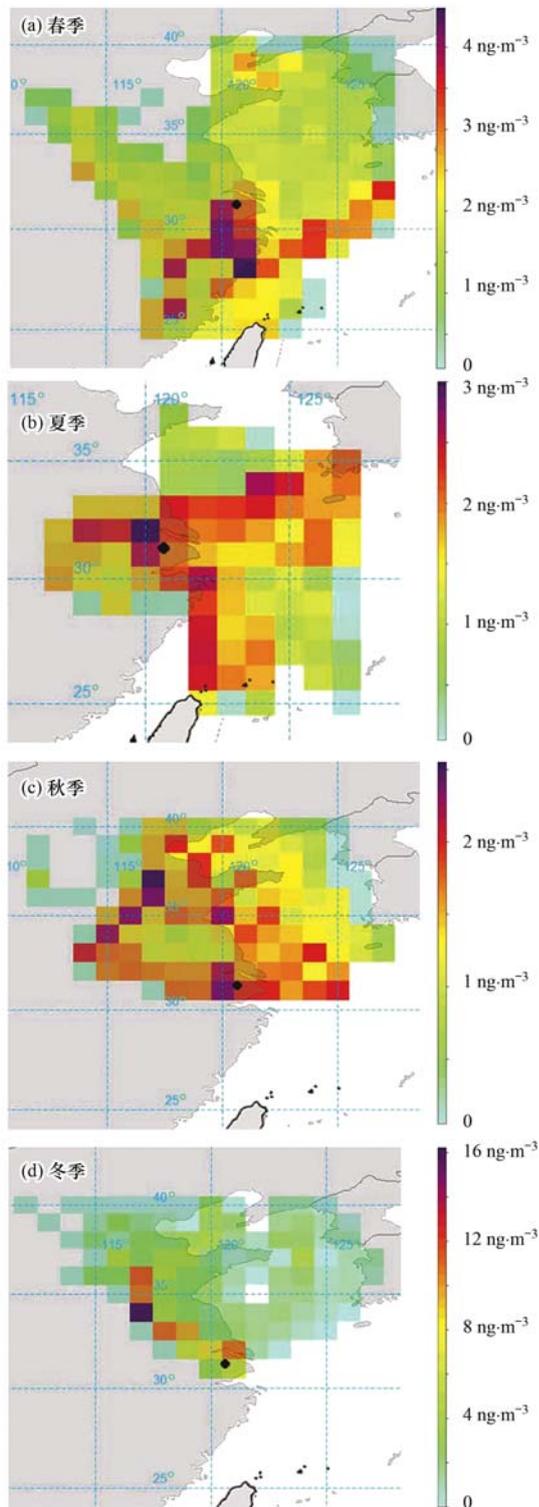


图2 利用 CWT 模型模拟的不同季节 GEM 空间分布源

Fig. 2 Spatial contribution of GEM sources simulated by CWT model in different seasons

海和东南方向的东海；秋季的汞气团来自于北方的内陆、黄海和渤海；冬季的汞气团来自于东北方向的内陆。大气中汞浓度较低通常与来自开阔海域的气团有关,包括南海和西太平洋^[54]。苏州市夏季和秋季部分汞气团来自海洋,海洋的空气质量相对较好,大气中汞浓度较低。

2.2.2 大气汞的来源判定

如图3所示,采用风玫瑰图和汞玫瑰图分析 GEM、GOM 和 PBM 对风速和风向的依赖性,研究监测点附近汞的人为排放源对苏州市汞物种分布的影响。

中国城市地区汞排放源的复杂性普遍较高,苏州大气汞的人为排放活动主要来自燃煤、钢铁生产、固废焚烧和燃料油的消耗。根据苏州统计年鉴,2017年苏州市规模以上工业企业分行业能源消耗量统计结果折算,2017年苏州市因燃煤向大气中排放的汞为2.54 t,非燃煤向大气中排放的汞为1.72 t。监测点周边30 km范围内的大型点源如图1所示,在此区域内汞的点源中以固废焚烧和热电排放源较多,且主要集中分布在西北方向。

由图3(a)可见,苏州地区低风速($\leq 1.5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$)盛行东偏北风($0 \sim 135^\circ$),高风速($> 1.5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$)盛行东风($45^\circ \sim 135^\circ$)。由图3(b)分析 GEM 的风向依赖性,在低风速时,在西北方向($270^\circ \sim 360^\circ$)上 GEM 浓度出现了峰值;在东方向($0 \sim 180^\circ$)上 GEM 浓度相对较低,尤其在高风速时。低风速情况下,GEM 浓度与监测点周边汞排放源分布有关,西北方向上分布着较多的汞排放源(热电厂、固废焚烧厂、钢铁厂等),使得该方向上 GEM 浓度出现强烈的峰值;东向($0 \sim 180^\circ$)汞排放源相对较分散,从而该方向上 GEM 浓度总体较低,并出现了一个弱峰值。高风速情况下,东风($0 \sim 180^\circ$)来自太平洋,西风($180^\circ \sim 360^\circ$)来自内陆,导致东向 GEM 浓度总体低于西向($180^\circ \sim 300^\circ$)的。

GOM 和 PBM 的风向依赖性显示[图3(c)和图3(d)],在低风速下,除东北方向($0 \sim 90^\circ$)外,其它风向上 GOM 和 PBM 均出现了浓度峰值;在高风速下,除东北方向($0 \sim 90^\circ$)外,其它风向上 GOM 出现了浓度峰值;而在高风速下,PBM 的峰值仅出现在西偏北方向($270^\circ \sim 300^\circ$)。由于 GOM 和 PBM 在大气中停留时间较短,在大气中的浓度受当地源影响较大,因此,出现所监测到的以上描述的 GOM 和 PBM 的风向依赖性现象与监测点周边汞排放源的分布情况密不可分。

2.3 大气汞浓度变化规律

2.3.1 月变化规律

如图4所示,苏州市大气中 GEM、GOM 和 PBM 平均浓度月变化规律。GEM 的平均浓度总体变化趋势表现为冬季(1、2月)和春季(4、5月)高于夏季(6~8月)和秋季(9、10月),这种月变化规律在国内外的监测结果中比较典型。一方面,燃烧源是大气中 GEM 的重要来源,在寒冷月份,大气中的汞浓度

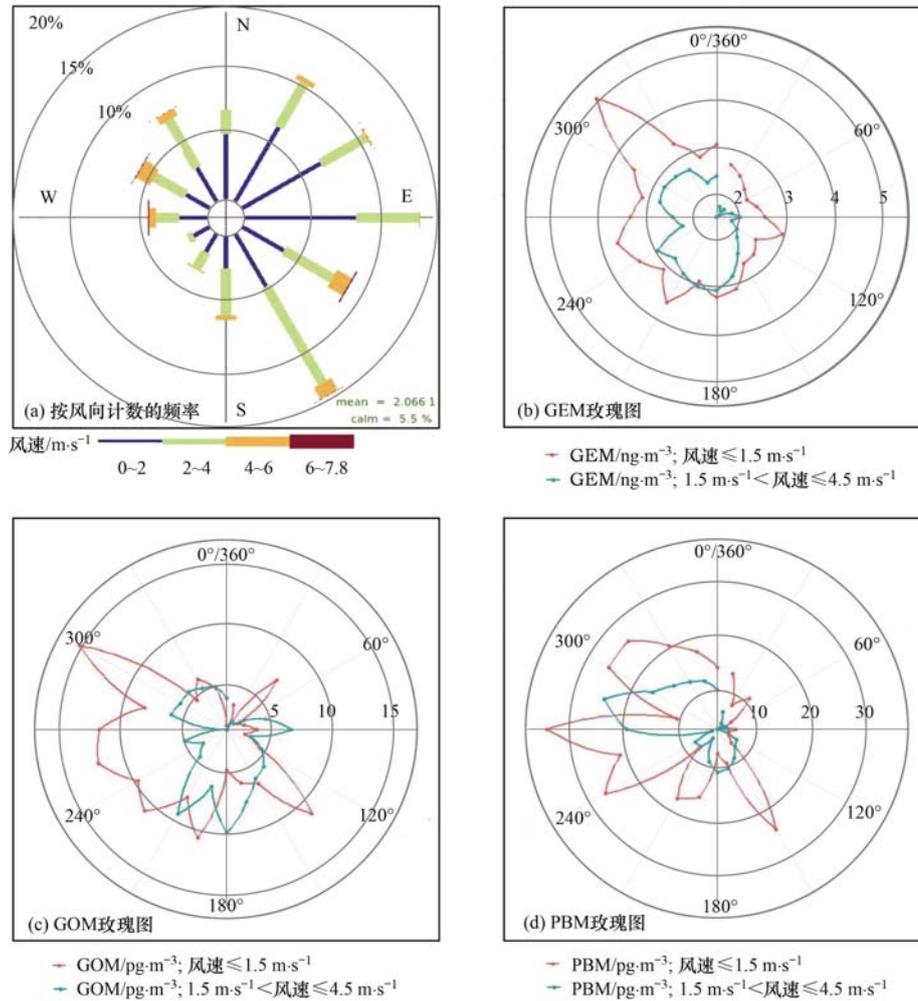


图 3 监测期间风玫瑰图和汞玫瑰图

Fig. 3 Wind roses and pollution roses of Hg species during the measurement period

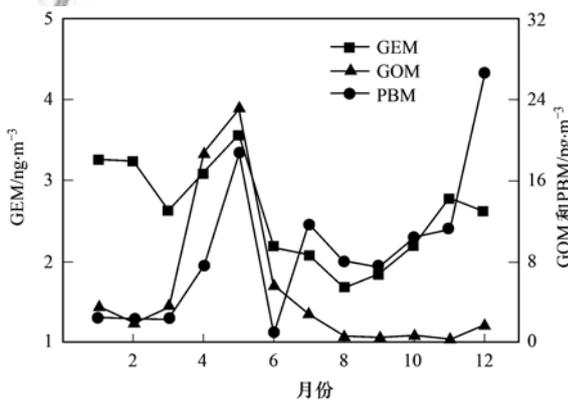


图 4 汞平均浓度月变化规律

Fig. 4 Monthly variations of Hg species

会随着燃煤量的增加而升高^[55]。同时,由于气温较冷时大气混合层高度降低,不利于污染物的扩散,较暖的季节不仅大气混合层高度增加,而且干湿沉降幅度较大^[56]。另一方面,由以上的 CWT 分析可以看出,夏季和秋季部分气团来自海洋,海洋的空气质量相对较好,汞浓度相对较低。因此,常常出现 GEM 的平均浓度冬季和春季高、夏季和秋季低的现象。然

而,相邻的沿海城市上海的监测结果却不同,上海的为夏季(6、7月)和初冬(12月)较高,8、11月较低。此外,可能由于夏季气温高,加快海洋和地表释放,也可能是人为排放导致的,使得上海和阿尔马登等地出现夏季一些月份 GEM 较高的现象^[9]。

4月和5月苏州市大气中的 GOM 月平均浓度相对较高,而其它月份 GOM 月平均浓度很低,且相对稳定。从汞的风向玫瑰图可见[图 5(b)],4月和5月监测点周边各个方向上的 GOM 浓度都高于其它月份的。由于 GOM 在大气中停留时间较短,长距离输送对 GOM 的影响有限,GOM 通常被认为是 GEM 的光化学氧化和 PBM 的光还原或光分解形成的,在夏季 GOM 的浓度应该更高^[8]。然而,这一监测结果对 GOM 的主要来源的研究不应被忽视,GOM 人为排放可能是导致这一规律的主要原因。

12月苏州市大气中的 PBM 平均浓度最高,其次是5月的,6月 PBM 平均浓度断崖式下降到一年中的最低值。从汞的风向玫瑰图可见[图 5(c)],5月高浓度的 PBM 主要来自于东南方向;12月,高浓

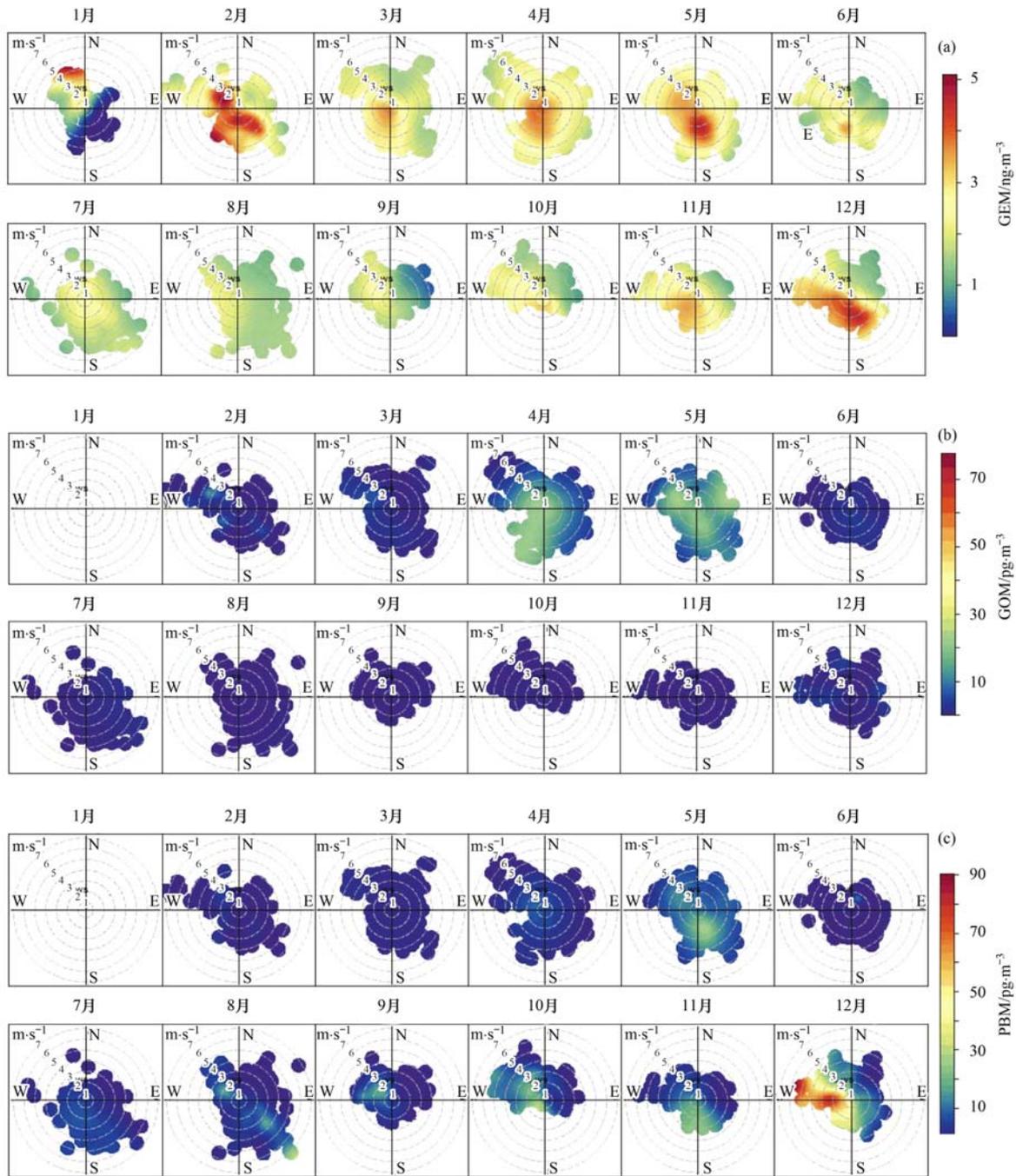


图5 各风向汞浓度的月变化规律

Fig. 5 Monthly variation of mercury concentration in different wind directions

度的PBM主要来自于西方向.该变化规律不同于其它城市监测到的规律,厦门大气的PBM月变化与GEM的相同,上海大气中PBM的12月的月平均浓度是9月的10倍^[8,9].PBM与GEM的月变化不一致,说明PBM的来源与GEM的来源存在一定的差异.

2.3.2 日变化规律

图6所示为苏州市大气中3种形态汞(GEM、GOM和PBM)、共同污染物浓度(O₃、NO_x、CO和SO₂)和气象参数(太阳总辐射、湿度和气温)的平均浓度日变化规律.3种形态汞均表现出明显的日变

化,其中GEM和PBM的变化规律很相似.总体而言,白天GEM和PBM平均浓度低于夜间的[图6(a)].这一日变化规律与之前在上海、贵阳、重庆、哥德堡和阿尔马登等城市进行的研究一致^[8,9,23].

苏州市大气中GEM与太阳总辐射呈极其显著的相关性($r = -0.664, P < 0.001$),与湿度呈极其显著的相关性($r = 0.859, P < 0.001$),与气温呈极其显著的相关性($r = -0.866, P < 0.001$);PBM与太阳总辐射呈非常显著的中等相关性($r = -0.554, P < 0.01$),与湿度呈极其显著的相关性($r = 0.835, P < 0.001$),与气温呈极其显著的相关性($r =$

-0.831, $P < 0.001$). 因此,除了人为排放,GEM 和 PBM 与气象参数有很强的相关性,其日变化规律很大程度上是由气象条件引起的.

GOM 平均浓度在 1 d 内出现多次峰值(出现在 05:00、12:00、18:00、23:00)和谷值(出现在 02:00、10:00、15:00 和 19:00),如图 6(a). 上午 04:00~08:00 和下午 16:00~18:00 为早晚高峰时间,GOM 浓度升高与燃料油燃烧直接排放有关;12:00~13:00 是一天中 O_3 浓度较高的时段,GOM 浓度升高与 O_3 氧化 GEM 生成 GOM 有关. Sillman 等^[57]运用输送和光化学模型表明,GEM 与 GOM 之间的强相关性与人为排放和光化学转换有关. 因此,在人为源和 GEM 氧化转化影响下,苏州市大气中 GOM 平均浓度在 1 d 内出现多次峰值和谷值.

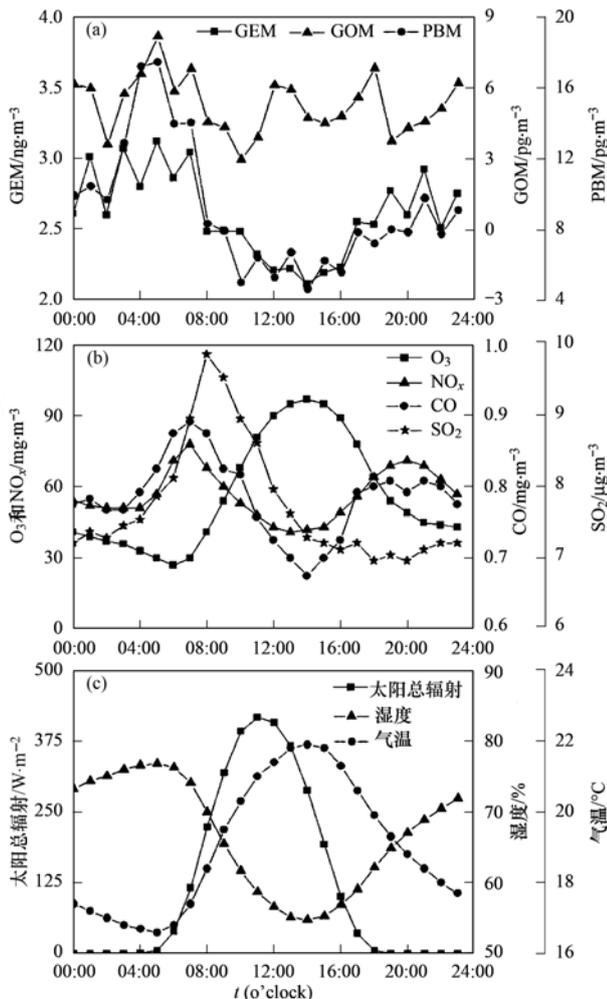


图 6 形态汞、共同污染物浓度 (O_3 、 NO_x 、 CO 和 SO_2) 和气象参数 (太阳总辐射、湿度和气温) 平均浓度日变化规律

Fig. 6 Diurnal variations of Hg species, selected co-pollutants (O_3 , NO_x , CO , SO_2), and meteorological parameters (SR, RH, and T)

3 结论

(1) 2018 年苏州市大气中 GEM、GOM 和 PBM

年均浓度分别为 $(2.57 \pm 2.09) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 、 $(5.27 \pm 15.7) \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(16.0 \pm 157) \text{ pg} \cdot \text{m}^{-3}$, 其中, GEM 约占总汞的 99.2%, 远超 GOM (0.2%) 和 PBM (0.6%).

(2) 苏州市大气中汞迁移具有季节性差异: 春季的汞气团主要来自于正南方的内陆, 少量来自于东南方向的东海; 夏季的汞气团来自于本地和东北方向的黄海和东南方向的东海; 秋季的汞气团来自于北方的内陆、黄海和渤海; 冬季的汞气团来自于东北方向的内陆.

(3) 苏州市大气中汞分布特征具有风向依赖性, 在低风速时, 西北方向 ($270^\circ \sim 360^\circ$) 上 GEM 浓度出现了峰值; 在高风速时, 东方向 ($0 \sim 180^\circ$) 上 GEM 浓度相对较低. 在低风速下, 除东北方向 ($0 \sim 90^\circ$) 外, 其它风向上 GOM 和 PBM 均出现了浓度峰值; 在高风速下, 除东北方向 ($0 \sim 90^\circ$) 外, 其它风向上 GOM 出现了浓度峰值; 而在高风速下, PBM 的峰值仅出现在西偏北方向 ($270^\circ \sim 300^\circ$).

(4) 2018 年苏州市大气中 GEM 月平均浓度总体变化趋势表现为冬季 (1、2 月) 和春季 (4、5 月) 的 GEM 高于夏季 (6~8 月) 和秋季 (9、10 月). 4 月和 5 月苏州市大气中的 GOM 月平均浓度较高, 而其它月份很低且相对稳定. 12 月苏州市大气中的 PBM 平均浓度最高, 其次是 5 月, 6 月断崖式下降到一年中的最低值.

(5) 苏州市大气中 GEM 和 PBM 平均浓度表现为昼间低于夜间的, 与太阳总辐射、湿度和气温呈现正相关, GEM 和 PBM 日变化规律受人为源和气象条件影响. GOM 平均浓度在一天内出现多次峰值和谷值, GOM 日变化规律是人为源和 GEM 氧化转化共同引起的.

参考文献:

- [1] Nguyen L S P, Sheu G R, Lin D W, *et al.* Temporal changes in atmospheric mercury concentrations at a background mountain site downwind of the East Asia continent in 2006-2016 [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **686**: 1049-1056.
- [2] 尚帅, 田珮, 蒋煜, 等. 水稻对气态单质汞的吸收与挥发 [J]. *环境科学*, 2017, **38**(12): 5308-5314.
Shang S, Tian P, Jiang Y, *et al.* Uptake and volatilization of gaseous elemental mercury by paddy rice [J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(12): 5308-5314.
- [3] Zhao L S, Xu L L, Wu X, *et al.* Characteristics and sources of mercury in precipitation collected at the urban, suburban and rural sites in a city of Southeast China [J]. *Atmospheric Research*, 2018, **211**: 21-29.
- [4] 杨静, 陈龙, 刘敏, 等. 上海典型燃烧源铅和汞大气排放趋势分析 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(9): 3987-3994.
Yang J, Chen L, Liu M, *et al.* Historical trends of atmospheric Pb and Hg emissions from fossil fuel combustion in Shanghai [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(9): 3987-3994.

- [5] UNEP. Global mercury assessment 2013: sources, emissions, releases and environmental transport[R]. Geneva, Switzerland: UNEP Chemicals Branch, 2013. 6-11.
- [6] 张成, 张雅惠, 王永敏, 等. 重庆市燃煤电厂汞排放特征及排放量[J]. 环境科学, 2017, **38**(2): 495-501.
Zhang C, Zhang Y H, Wang Y M, *et al.* Characteristics of mercury emissions from coal-fired power plants in Chongqing[J]. Environmental Science, 2017, **38**(2): 495-501.
- [7] Zhang L, Wang S X, Wang L, *et al.* Updated emission inventories for speciated atmospheric mercury from anthropogenic sources in China[J]. Environmental Science & Technology, 2015, **49**(5): 3185-3194.
- [8] Xu L L, Chen J S, Yang L M, *et al.* Characteristics and sources of atmospheric mercury speciation in a coastal city, Xiamen, China[J]. Chemosphere, 2015, **119**: 530-539.
- [9] Duan L, Wang X H, Wang D F, *et al.* Atmospheric mercury speciation in Shanghai, China [J]. Science of the Total Environment, 2017, **578**: 460-468.
- [10] Kock H H, Bieber E, Ebinghaus R, *et al.* Comparison of long-term trends and seasonal variations of atmospheric mercury concentrations at the two European coastal monitoring stations Mace Head, Ireland, and Zingst, Germany [J]. Atmospheric Environment, 2005, **39**(39): 7549-7556.
- [11] Sprovieri F, Gratz L E, Pirrone N. Development of a ground-based atmospheric monitoring network for the Global Mercury Observation System (GMOS) [A]. In: E3S Web of Conferences. Proceedings of the 16th International Conference on Heavy Metals in the Environment[C]. EDP Sciences, 2013.
- [12] Lindberg S, Bullock R, Ebinghaus R, *et al.* A synthesis of progress and uncertainties in attributing the sources of mercury in deposition[J]. AMBIO: A Journal of the Human Environment, 2007, **36**(1): 19-33.
- [13] Sprovieri F, Pirrone N, Ebinghaus R, *et al.* Worldwide atmospheric mercury measurements: a review and synthesis of spatial and temporal trends [J]. Atmospheric Chemistry & Physics Discussions, 2010, **10**(1): 1261-1307.
- [14] Diéguez M C, Bencardino M, Garcia P E, *et al.* A multi-year record of atmospheric mercury species at a background mountain station in Andean Patagonia (Argentina): temporal trends and meteorological influence[J]. Atmospheric Environment, 2019, **214**: 116819.
- [15] Zhang H, Wang Z W, Wang C J, *et al.* Concentrations and gas-particle partitioning of atmospheric reactive mercury at an urban site in Beijing, China[J]. Environmental Pollution, 2019, **249**: 13-23.
- [16] Sheu G R, Nguyen L S P, Truong M T, *et al.* Characteristics of atmospheric mercury at a suburban site in northern Taiwan and influence of trans-boundary haze events [J]. Atmospheric Environment, 2019, **214**: 116827.
- [17] Kabashnikov V P, Chaikovskiy A P, Kucsera T L, *et al.* Estimated accuracy of three common trajectory statistical methods [J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**: 5425-5430.
- [18] 刘心东, 刘明, 张若宇, 等. 华东高山背景点大气气态汞含量与传输特征[J]. 中国环境科学, 2019, **39**(7): 2758-2764.
Liu X D, Liu M, Zhang R Y, *et al.* Level and transport characteristic of gaseous elemental mercury at a background mountain site of East China[J]. China Environmental Science, 2019, **39**(7): 2758-2764.
- [19] Zhu J, Wang T, Talbot R, *et al.* Characteristics of atmospheric Total Gaseous Mercury (TGM) observed in urban Nanjing, China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, **12**(24): 12103-12118.
- [20] Huang J Y, Liu C K, Huang C S, *et al.* Atmospheric mercury pollution at an urban site in central Taiwan; mercury emission sources at ground level[J]. Chemosphere, 2012, **87**(5): 579-585.
- [21] 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.
- [22] Sheu G R, Lin N H, Lee C T, *et al.* Distribution of atmospheric mercury in northern Southeast Asia and South China Sea during Dongsha Experiment[J]. Atmospheric Environment, 2013, **78**: 174-183.
- [23] Fu X W, Feng X B, Qiu G L, *et al.* Speciated atmospheric mercury and its potential source in Guiyang, China [J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(25): 4205-4212.
- [24] Friedli H R, Arellano Jr A F, Geng F, *et al.* Measurements of atmospheric mercury in Shanghai during September 2009 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011, **11**(8): 3781-3788.
- [25] Zhang L, Wang S X, Wang L, *et al.* Atmospheric mercury concentration and chemical speciation at a rural site in Beijing, China: implications of mercury emission sources [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, **13**(20): 10505-10516.
- [26] 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**(5): 834-838.
- [27] Fu X W, Feng X, Liang P, *et al.* Temporal trend and sources of speciated atmospheric mercury at Waliguan GAW station, Northwestern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, **12**(4): 1951-1964.
- [28] Ci Z J, Zhang X S, Wang Z W, *et al.* Atmospheric Gaseous Elemental Mercury (GEM) over a coastal/rural site downwind of East China: temporal variation and long-range transport [J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(15): 2480-2487.
- [29] 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.
- [30] 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.
- [31] Wan Q, Feng X B, Lu J L, *et al.* Atmospheric mercury in Changbai Mountain area, northeastern China II. The distribution of reactive gaseous mercury and particulate mercury and mercury deposition fluxes[J]. Environmental Research, 2009, **109**(6): 721-727.
- [32] 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**(3): 201-206.
- [33] Choi E M, Kim S H, Holsen T M, *et al.* Total gaseous concentrations in mercury in Seoul, Korea; local sources compared to long-range transport from China and Japan [J]. Environmental Pollution, 2009, **157**(3): 816-822.

- [34] Kim S H, Han Y J, Holsen T M, *et al.* Characteristics of atmospheric speciated mercury concentrations (TGM, Hg(II) and Hg(p)) in Seoul, Korea[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(20): 3267-3274.
- [35] Nguyen H T, Kim M Y, Kim K H. The influence of long-range transport on atmospheric mercury on Jeju Island, Korea[J]. *Science of the Total Environment*, 2010, **408**(6): 1295-1307.
- [36] Kono Y, Tomiyasu T. Variations in atmospheric mercury concentration in Kagoshima city during 2010-2012[J]. *Bunseki Kagaku*, 2014, **63**(1): 17-21.
- [37] Osawa T, Ueno T, Fu F F. Sequential variation of atmospheric mercury in Tokai-mura, seaside area of eastern central Japan[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2007, **112**(D19): D19107.
- [38] Chand D, Jaffe D, Prestbo E, *et al.* Reactive and particulate mercury in the Asian marine boundary layer[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(34): 7988-7996.
- [39] Gibičar D, Horvat M, Logar M, *et al.* Human exposure to mercury in the vicinity of chlor-alkali plant[J]. *Environmental Research*, 2009, **109**(4): 355-367.
- [40] Pyta H, Rosik-Dulewska C, Czaplicka M. Speciation of ambient mercury in the Upper Silesia Region, Poland[J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2009, **197**: 233-240.
- [41] Witt M L I, Meheran N, Mather T A, *et al.* Aerosol trace metals, particle morphology and total gaseous mercury in the atmosphere of Oxford, UK[J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(12): 1524-1538.
- [42] Brooks S, Moore C, Lew D, *et al.* Temperature and sunlight controls of mercury oxidation and deposition atop the Greenland ice sheet[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(16): 8295-8306.
- [43] Lan X, Talbot R, Castro M, *et al.* Seasonal and diurnal variations of atmospheric mercury across the US determined from AMNet monitoring data[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(21): 10569-10582.
- [44] Choi H D, Huang J Y, Mondal S, *et al.* Variation in concentrations of three mercury (Hg) forms at a rural and a suburban site in New York State[J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **448**: 96-106.
- [45] Lyman S N, Gustin M S. Determinants of atmospheric mercury concentrations in Reno, Nevada, U. S. A. [J]. *Science of the Total Environment*, 2009, **408**(2): 431-438.
- [46] Faïn X, Obrist D, Hallar A G, *et al.* High levels of reactive gaseous mercury observed at a high elevation research laboratory in the Rocky Mountain[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(20): 8049-8060.
- [47] Nair U S, Wu Y L, Walters J, *et al.* Diurnal and seasonal variation of mercury species at coastal-suburban, urban, and rural sites in the southeastern United States[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **47**: 499-508.
- [48] Gratz L E, Keeler G J, Marsik F J, *et al.* Atmospheric transport of speciated mercury across southern Lake Michigan; influence from emission sources in the Chicago/Gary urban area [J]. *Science of the Total Environment*, 2013, **448**: 84-95.
- [49] Brooks S, Luke W, Cohen M, *et al.* Mercury species measured atop the Moody Tower TRAMP site, Houston, Texas [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(33): 4045-4055.
- [50] Rutter A P, Snyder D C, Stone E A, *et al.* In situ measurements of speciated atmospheric mercury and the identification of source regions in the Mexico City Metropolitan Area[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(1): 207-220.
- [51] Cheng I, Zhang L, Blanchard P, *et al.* Concentration-weighted trajectory approach to identifying potential sources of speciated atmospheric mercury at an urban coastal site in Nova Scotia, Canada[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, **13**(12): 6031-6048.
- [52] Baya A P, Van Heyst B. Assessing the trends and effects of environmental parameters on the behaviour of mercury in the lower atmosphere over cropped land over four seasons [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(17): 8617-8628.
- [53] Song X J, Cheng I, Lu J L. Annual atmospheric mercury species in Downtown Toronto, Canada[J]. *Journal of Environmental Monitoring*, 2009, **11**(3): 660-669.
- [54] 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: Atmospheres*, 2010, **115**(D6): D06303, doi: 10.1029/2009JD012958.
- [55] Zhang F W, Xu L L, Chen J S, *et al.* Chemical compositions and extinction coefficients of PM_{2.5} in peri-urban of Xiamen, China, during June 2009-May 2010[J]. *Atmospheric Research*, 2012, **106**: 150-158.
- [56] Blanchard P, Froude F A, Martin J B, *et al.* Four years of continuous Total Gaseous Mercury (TGM) measurements at sites in Ontario, Canada[J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(23): 3735-3743.
- [57] Sillman S, Marsik F J, Al-Wali K I, *et al.* Reactive mercury in the troposphere; model formation and results for Florida, the northeastern United States, and the Atlantic Ocean[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2007, **112**(D23): D23305, doi: 10.1029/2006JD008227.

CONTENTS

Contribution of Emissions from the Iron and Steel Industry to Air Quality in China	TANG Ling, XUE Xiao-da, BO Xin, <i>et al.</i> (2981)
Interannual Characteristics of Fine Particulate Matter in North China and Its Relationship with Land Use and Land Cover Change	YANG Wei, JIANG Xiao-li (2995)
Evaluation of the Reduction in PM _{2.5} Concentration During the National Traditional Games of Ethnic Minorities in Zhengzhou	WANG Shen-bo, LOU Ya-min, XU Yi-fei, <i>et al.</i> (3004)
Pollution Characteristics of Water-soluble Inorganic Ions in Chengdu in Summer and Winter	FENG Yan-peng, ZHANG Jun-ke, HUANG Xiao-juan, <i>et al.</i> (3012)
Analysis of Transport Pathways and Potential Sources of Atmospheric Particulate Matter in Zigong, in South of Sichuan Province	LEI Yu, ZHANG Xiao-ling, KANG Ping, <i>et al.</i> (3021)
Source Composition Spectrum of Volatile Organic Compounds in Typical Industries in Sichuan	XU Chen-xi, CHEN Jun-hui, HAN Li, <i>et al.</i> (3031)
Source Profiles of Industrial Emission-Based VOCs in Chengdu	ZHOU Zi-hang, DENG Ye, ZHOU Xiao-ling, <i>et al.</i> (3042)
Emission Characteristics and Risk Assessment of Volatile Organic Compounds from Typical Factories in Zhengzhou	QI Yi-jin, NI Jing-wei, ZHAO Dong-xu, <i>et al.</i> (3056)
Characteristics, Source Apportionment, and Environmental Impact of Volatile Organic Compounds in Summer in Yangquan	NIU Yue-yuan, LIU Zhuo-cheng, LI Ru-mei, <i>et al.</i> (3066)
Characteristics and Reactivity of VOCs in Hangzhou During a Typical Photochemical Pollution Episode	JING Sheng-ao, YE Xu-hong, GAO Ya-qin, <i>et al.</i> (3076)
Pollution Characteristics and Sensitivity of Surface Ozone in a Typical Heavy-Industry City of the North China Plain in Summer	OU Sheng-ju, WEI Wei, WANG Xiao-qi, <i>et al.</i> (3085)
Source Apportionment of Atmospheric Ammonia; Sensitivity Test Based on Stable Isotope Analysis in R Language	GU Meng-na, PAN Yue-peng, HE Yue-xin, <i>et al.</i> (3095)
Distribution Characteristics and Source Analysis of Atmospheric Mercury Speciation in Suzhou	LU Ren-jie, WU Ye-zheng, ZHANG Xiao-jie, <i>et al.</i> (3102)
Emission Characteristics of Light-Duty Gasoline Vehicle Exhaust Based on Acceleration Simulation Mode	XIE Yan, LIAO Song-di, ZHU Man-ni, <i>et al.</i> (3112)
Comparative Analysis of NO _x Emission Characteristics of Non-Ultra-Low- and Ultra-Low-Emission Coal-Fired Power Units During the Start-Up Process	LI Hui, ZHU Fa-hua, SUN Xue-li, <i>et al.</i> (3121)
Source Identification and Pollution Characteristics of Heavy Metals in Suspended Particles of Urban Road Dust from Xingtai City	SONG Yi, LU Xin-wei, ZHOU Xiao, <i>et al.</i> (3130)
Impacts of Leaf Surface Micromorphology Variation on the Ability to Capture Particulate Matter	WEI Wen-jun, WANG Bing, NIU Xiang (3136)
Analysis of Hydrogen and Oxygen Stable Isotope Characteristics and Vapor Sources of Precipitation in the Guanzhong Plain	ZHAO Ming-hua, LU Yan-wei, Rachana Heng, <i>et al.</i> (3148)
Analysis of Nitrate Sources in Different Waters of a Karst Basin	TIAN Yong-zhu, HAN Zhi-wei, ZHAO Ran, <i>et al.</i> (3157)
Analysis of Nitrogen Pollution and Its Pollution Sources in the Muli River Basin	QI Ran, XU Fei-fei, YANG Fan, <i>et al.</i> (3165)
Temporal and Spatial Variation Patterns of the Environmental Elements in the Sediments of the Liaohu Estuary and the Related Influencing Factors	QI Yue, SUN Yong-guang, MA Gong-bo, <i>et al.</i> (3175)
Transport Characteristics of Phosphorus Sources at the Multi-scale Watershed and the Associated Ecological Effects on Poyang Lake	WANG Shuo-yue, GAO Yang, LU Yao, <i>et al.</i> (3186)
Risk Assessment and Source Analysis of Heavy Metals in the River of a Typical Bay Watershed	WANG Lei, WANG Wen-dong, LIU Dong, <i>et al.</i> (3194)
Concentrations of Typical Perfluoroalkyl Acids and Contributions of Their Precursors in the Water of the Le'an River in China	ZHANG Hui, WANG Shi-liang, YU Yang (3204)
Distribution Characteristics of Microplastics in Surface Water and Sediments of Haizhou Bay, Lianyungang	LI Zheng, GAO Chun-mei, YANG Jin-long, <i>et al.</i> (3212)
Profiles and Risk of Antibiotic Resistance Genes in Domestic Wells in the Maozhou River Basin	WU Dai-ling, ZOU Hai-yan, HE Lu-xi, <i>et al.</i> (3222)
Release Mechanisms of Iron and Manganese from Sediments in Jinpen Reservoir	LU Lin-chao, HUANG Ting-lin, LI Nan, <i>et al.</i> (3231)
Characterization of Microplastic Pollution of Sediments from Urban Lakes	WANG Xuan, NIU Si-ping, SONG Xiao-long, <i>et al.</i> (3240)
Structural Characteristics of Microbial Communities in the Sediments of the Niyang River in Tibet	LIU Xiao-dan, HUANG Yi, WANG Yong-hua, <i>et al.</i> (3249)
Combined Effects of Erythromycin and Nutrients on Microalgae in Seawater	WANG Na, ZHAO Wei-hong, MIAO Hui (3257)
Longitudinal Distribution of Benthic Macroinvertebrates Affected by a Hydropower Plant Cascade in the Mudan River	WEN Jia-qi, WANG Hao-ran, CHEN Yong-can, <i>et al.</i> (3266)
Analysis of Rainwater Runoff Pollution Characteristics of Various Typical Underlying Surfaces in Ningbo	XU Yu-jie, GONG Yue-min, BI Jun-peng, <i>et al.</i> (3275)
Water Quality and Bacterial Population Driving Mechanism of Algae Vertical Succession in Stratified Reservoir	YAN Miao-miao, CHEN Sheng-nan, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (3285)
Distribution Characteristics of Disinfection By-Products and the Effects of Booster Chlorination in Long-Distance Water Supply Systems	BI Wei-wei, YE Sheng, YU Jian-quan, <i>et al.</i> (3297)
Occurrence and Prediction Model of Disinfection By-Products in Tap Water	LIU Jun-ping, CHEN Jing-ji, SONG Ya-li, <i>et al.</i> (3307)
Adsorption Characteristics and Mechanism of Cadmium in Water by Alkali and Magnetic Composite Modified Wheat Straw Biochar	CUI Zhi-wen, REN Yan-fang, WANG Wei, <i>et al.</i> (3315)
Enhanced Chromate (VI) Removal Characteristics and Mechanism Using Graphene Oxide Immobilized Nanoscale Zero-Valent Iron Coupled with a Weak Magnetic Field (GO-nFe ⁰ /WMF)	JI Meng, BAO Jian-guo, ZHU Xiao-wei, <i>et al.</i> (3326)
Characteristics and Influencing Factors of Monothioarsenate Adsorption on Goethite	LIAO Dan-xue, SHAN Hui-mei, ZHANG Jin-xian, <i>et al.</i> (3337)
Fast Start-Up ANAMMOX Operation Strategy and Flora Characteristics of a Biofilter	WANG Xiao-tong, YANG Hong, SU Yang, <i>et al.</i> (3345)
Effects of Aeration Strategy on Denitrifying Performance of Activated Sludge Processes in Treating Low-Carbon-Source Municipal Wastewater	ZHANG Xin-ni, CHI Yu-lei, WANG Qian, <i>et al.</i> (3356)
Effect of Hydroxylamine on Community of ANAMMOX Sludge	XING Chong-yang, FAN Yu-chen, CHEN Xuan, <i>et al.</i> (3365)
Microbial Diversity of Filamentous Sludge Bulking at Low Temperature	GAO Chun-di, ZHANG Na, HAN Hui, <i>et al.</i> (3373)
Main Influencing Factors and Strengthening of Anaerobic Transformation of Excess Sludge in China	DONG Bin, GAO Jun, CHEN Si-si, <i>et al.</i> (3384)
Relationship Between CO ₂ and CH ₄ Emissions in Urban Rivers and Sewage Discharging from a Municipal Drainage Network	LI Lei, CHEN Hao, ZHU Yi, <i>et al.</i> (3392)
Effects of Controlled-Release Urea Application on N ₂ O Emission in Maize-Cultivated Sandy Loam Soil	JIANG You-jin, YUAN Jun-ji, DING Wei-xin, <i>et al.</i> (3402)
Greenhouse Gas Emissions for Typical Open-Field Vegetable Production in China	ZHANG Fen, CHENG Tai-hong, CHEN Xin-ping, <i>et al.</i> (3410)
Effects of Water Management on Soil Properties and Cd Behavior of Typical Paddy Soils	HUANG Jing, LI Xin-yang, WEN Sha, <i>et al.</i> (3418)
Effect of Mn-Modified Biochar on the Characteristics of Aggregate Structure and the Content of Cd in Weakly Alkaline Cd-Contaminated Soil	SUN Tong, FU Yu-tong, LI Ke, <i>et al.</i> (3426)
Effects of the Immobilization of Cadmium in Soil Alone or Combined with Foliar Application of Selenium on Cadmium Accumulation in the Plants of Different Genotypes of Tsai-tai	CAO Kun-kun, LI Cheng-cheng, HU Xue-yu, <i>et al.</i> (3434)
Effects of Foliar Spraying of 2,3-dimercaptosuccinic Acid on Cadmium Uptake, Transport, and Antioxidant System in Rice Seedlings	YANG Xiao-rong, HUANG Yong-chun, LIU Zhong-qi, <i>et al.</i> (3441)