

刘明,陈来国,范瑞芳,等.2012.鼎湖山大气气态总汞含量和变化特征的初步研究[J].环境科学学报,32(4):932-939

Liu M, Chen L G, Fan R F, et al. 2012. Preliminary study of the concentration and variation characteristics of total gaseous mercury in Dinghu Mountain Area [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 32(4):932-939

鼎湖山大气气态总汞含量和变化特征的初步研究

刘明^{1,2,3}, 陈来国^{2,*}, 范瑞芳³, 许振成², 陈多宏⁴, 张德强⁵, 郑剑平⁶, 周炎⁴, 孙家仁²

1. 华南师范大学化学与环境学院,广州 510006

2. 环境保护部华南环境科学研究所城市环境研究中心,广州 510655

3. 华南师范大学生命科学学院,广州 510631

4. 广东省环境监测中心站,广州 510045

5. 中国科学院华南植物园,广州 510650

6. 肇庆市环境保护监测站,肇庆 526040

收稿日期:2011-06-02 修回日期:2011-08-05 录用日期:2011-10-09

摘要:利用高时间分辨率自动大气测汞仪(Tekran,2537B),于2009.10—2010.4对珠三角背景点鼎湖山大气气态总汞(TGM)进行了连续7个月的野外观测。结果表明,鼎湖山地区TGM的年均含量为(5.54 ± 2.89) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$,含量明显高于全球大气汞含量的背景值($1.5 \sim 2.0 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)和国内部分地区的背景值,表明该地区大气受到了一定程度的汞污染。监测期间,4月TGM含量最高,11月最低。日变化特征显示白天TGM浓度比晚上高,属典型白天控制型。鼎湖山地区TGM主要受珠三角的区域污染影响,TGM含量变化与大气中NO₂、SO₂的相关性分析和与用电需求变化对比表明,珠三角人为源(尤其是燃煤的汞排放)对鼎湖山大气TGM有较大的贡献。

关键词:鼎湖山;气态总汞;变化特征

文章编号:0253-2468(2012)04-932-08 中图分类号:X131 文献标识码:A

Preliminary study of the concentration and variation characteristics of total gaseous mercury in Dinghu Mountain Area

LIU Ming^{1,2,3}, CHEN Laiguo^{2,*}, FAN Ruifang³, XU Zhencheng², CHEN Duohong⁴, ZHANG Deqiang⁵, ZHENG Jianping⁶, ZHOU Yan⁴, SUN Jiaren²

1. School of Chemistry and Environment, South China Normal University, Guangzhou 510006

2. Center for Research on Urban Environment, South China Institute of Environmental Sciences (SCIES), Ministry of Environmental Protection, Guangzhou 510655

3. College of Life Science, South China Normal University, Guangzhou 510631

4. Environmental Monitoring Center of Guangdong Province, Guangzhou 510045

5. South China Botanical Garden, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510650

6. Zhaoqing Environmental Protection Monitoring Station, Zhaoqing 526040

Received 2 June 2011; received in revised form 5 August 2011; accepted 9 October 2011

Abstract: From October 2009 to April 2010, total gaseous mercury (TGM) in Dinghu Mountain, a background area of the Pearl River Delta (PRD), was continuously monitored using high-resolution automatic atmospheric mercury vapor analyzer (Tekran 2537B). Average concentration of TGM was (5.54 ± 2.89) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ with a range from 1.87 to $29.94 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$, which was much higher than those reported in global and domestic background areas ($1.5 \sim 2.0 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$). This finding suggested mercury pollution in the atmosphere. The highest concentration of TGM was found in April, and the lowest in November during the sampling period. Meanwhile, a diurnal TGM distribution pattern indicated that higher concentration of TGM was observed in daytime. The TGM in Dinghu Mountain area was mainly affected by regional atmospheric pollution from the PRD. Based on the relationship between TGM

基金项目:国家环保公益性行业科研专项项目(No. 200809011)

Supported by the Common weal and Environmental Protection Project of the Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China (No. 200809011)

作者简介:刘明(1985—),男,E-mail:scnulm@126.com; *通讯作者(责任作者),E-mail:chenlaiguo@scies.org

Biography: LIU Ming(1985—), male, E-mail: scnulm@126.com; *Corresponding author, E-mail: chenlaiguo@scies.org

and the concentrations of NO_2 and SO_2 , as well as the analysis of TGM and the variation of electric power demand, we concluded that TGM in this area was contributed from mercury-related anthropogenic sources, especially coal-fired emission.

Keywords: Dinghu Mountain; total gaseous mercury; variation characteristic

1 引言(Introduction)

汞是一种全球污染物,大气中的汞主要以元素态汞(Hg^0)的形式存在, Hg^0 可以在大气中存在0.5~2年(Schroeder *et al.*, 1998),大气是汞最主要的传输媒介,在汞的迁移过程中扮演着重要的角色.开展大气中汞的长期监测能够反映控制人为汞源对大气汞含量变化的影响,帮助理解区域乃至全球大气汞的循环模式(Ebinghaus *et al.*, 2001).国外对大气汞的研究开展较早和较充分(Burke *et al.*, 1995; Lee *et al.*, 1998; Kim *et al.*, 2005),这些研究成果对认识大气汞的污染现状、演化规律和模型提供了重要的数据支撑.中国被认为是世界上最大的人为汞排放国(Streets *et al.*, 2005),早已引起了世界的特别关注,但目前国内关于大气汞的研究很不充分,且研究主要集中在城市、汞矿区和背景地区(刘全友等, 1984; 王定勇等, 1996; 陈乐恬等, 2000; Feng *et al.*, 2003; Han *et al.*, 2004; Wang *et al.*, 2007; Fu *et al.*, 2008; 李红英等, 2009; Wan *et al.*, 2009; Li *et al.*, 2011),一些研究监测数据时间过短,难以有效揭示大气汞的时间和区域变化特征.本研究选取珠三角地区背景点——鼎湖山国家自然保护区作为观测点,开展了大气气态总汞(TGM)的长期监测,以期认识珠三角地区大气汞的污染水平、区域迁移过程及主要来源.

2 监测点概况(Overview of monitoring site)

鼎湖山位于珠三角地区的西北部,属南亚热带季风湿润型气候,冬夏气候交替明显,年平均气温 20.9°C ,年平均相对湿度82%,受东南季风影响,夏季雨量充沛,年均降雨约2000 mm,冬季受北方冷空气影响,风向多为北偏东.鼎湖山是我国第一个自然保护区和著名的风景名胜区,先后成为中国生态系统网络成员站、国家首批重点野外科学观测试验站和中国科学院大气本底观测站,鼎湖山20 km范围内无明显工业排放源.监测点位于保护区内的中国科学院鼎湖山森林生态系统定位研究站气象观测站平台($112^\circ32'57''\text{E}, 23^\circ9'51''\text{N}$).该站所属区域地形相对高差最高达900 m,其间沟壑遍布,西南方向地势较为平坦,其他方位都是山地和丘陵.监测

点具体位置见图1.

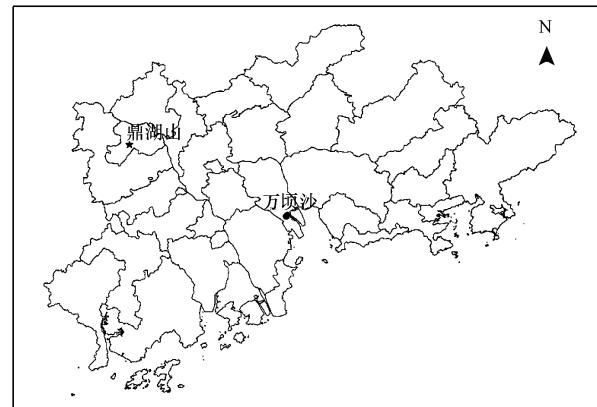


图1 监测点位置图

Fig. 1 Map of sampling site

3 研究方法(Research method)

3.1 采样时间及方法

TGM含量采用高时间分辨率自动测汞仪(Model 2537B, Tekran Inc., Toronto, Canada)实时测定,采样口距地面垂直高度约4 m,仪器每5 min测定1组数据,每日24 h不间断,采样流速为 $1.5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$,仪器最低检测限为 $0.1 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$.仪器于2009年7月底安装调试,经过两个月的试运行后,于2009年10月正式采集有效数据,2010年5月由于仪器故障停止采样,共7个月,中间由于停电有几天无监测数据.

中国科学院鼎湖山森林生态系统定位研究站提供监测点同步气象数据(包括风速、风向、气温、相对湿度、降雨量等), SO_2 、 NO_2 在线数据来自距监测点约1 km处的大气环境监测站.

3.2 数据的质量保证与控制

为了保证TGM数据质量,每24 h仪器通过内置汞源自动校正1次,采样结束后使用外置汞源(Tekran 2505)校正仪器,内外汞源数据偏差不超过10%.

4 结果与讨论(Results and discussion)

4.1 鼎湖山 TGM 含量总体状况

监测期间TGM含量范围为 $1.87 \sim 29.94 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$ (图2),均值为 $5.54 \text{ ng}\cdot\text{m}^{-3}$,与国内外相关

研究对比(表1),明显高于全球背景值($1.5 \sim 2.0 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)(Mason *et al.*, 1994)和国内一些背景点,如贡嘎山(Fu *et al.*, 2008)、南迦巴瓦峰(刘全友等,1984)、长白山(Wan *et al.*, 2009),也高于国内外的乡村地区(Kim *et al.*, 2005; Lee *et al.*, 1998; Burke *et al.*, 1995),与长三角郊区(Wang *et al.*, 2006)和韩国汉城城区水平相当(Kim *et al.*, 2005),略低于国内北京和贵阳城区(陈乐恬等,

2000; Feng *et al.*, 2003),明显低于重庆城区(王定勇等,1996),表明珠三角区域明显受到一定程度的大气汞污染,较大的TGM变化范围也表明除了地表汞的释放外,监测点明显受周边的人为汞排放源影响(Lee *et al.*, 1998).最近Li等(2011)报道珠三角乡村(广州万顷沙,位置见图1)冬季期间(2008年11—12月)TGM的含量范围为 $0.50 \sim 18.67 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,均值为 $2.94 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,明显低于本研究. 万

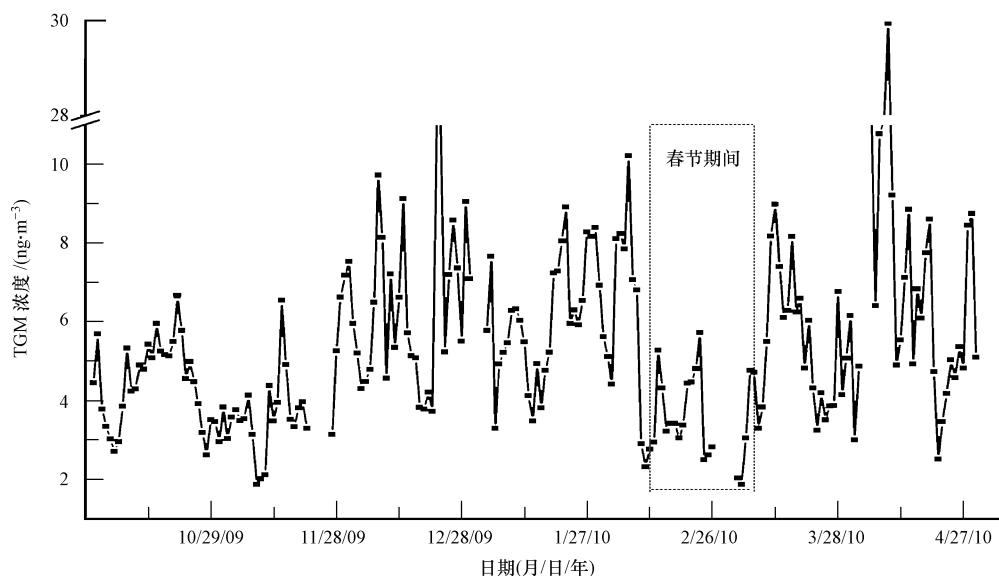


图2 鼎湖山地区大气气态总汞(TGM)的浓度

Fig. 2 TGM concentration of the ambient air in Dinghu Mountain area

表1 不同类型地区大气气态总汞的含量水平

Table 1 TGM concentration in different types of areas

地区	类型	测量值/($\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$)	来源文献
鼎湖山	区域背景	$5.54 \pm 2.89 (1.87 \sim 29.94)$	本研究
贡嘎山,四川	背景点	$3.98 (0.52 \sim 21.03)$	Fu <i>et al.</i> , 2008
南迦巴瓦峰	背景点	$2.0 \sim 4.3$	刘全友等, 1984
长白山,吉林	背景点	3.58 ± 1.78	Wan <i>et al.</i> , 2008
汉城,韩国	城区	5.06 ± 2.46	Kim <i>et al.</i> , 2005
美洲、北极和欧洲	乡村、背景	$1.58 \sim 1.93$	Kim <i>et al.</i> , 2005
Harwell,英国	乡村	1.68	LEE <i>et al.</i> , 1998
Great Lakes,北美	乡村	$1.59 \sim 1.93$	Burke <i>et al.</i> , 1995
纽约洲,美国	乡村	$1.83 \sim 3.02$	Han <i>et al.</i> , 2004
重庆市	城区	34.4	王定勇等, 1996
北京市	市郊	$2.1 \sim 45.2$	陈乐恬等, 2000
贵阳	城区	7.39	Feng <i>et al.</i> , 2003
厦门	城区(秋冬季)	$11.037 (0.408 \sim 126.114)$	李红英等, 2009
嘉兴(长三角)	市郊	$5.4 \pm 4.1 (0.6 \sim 14.4)$	Wang <i>et al.</i> , 2006
广州	城区	$13.5 \pm 7.1 (6 \sim 31)$	Wang <i>et al.</i> , 2006
万顷沙(珠三角)	乡村(冬季)	$2.94 (0.58 \sim 18.67)$	Li <i>et al.</i> , 2011
—	全球背景	$1.5 \sim 2.0$	Mason <i>et al.</i> , 1994

顷沙位于珠三角东部的珠江入海口处,明显处于年主导风向的上风向,而鼎湖山虽为自然保护区,但明显处于主导风向的下风向,易受珠三角地区密布的汞人为大气排放源影响。多个研究都将鼎湖山地区作为珠三角地区的背景区(祁士华等,2001;杨勇杰等,2009),也有研究表明鼎湖山所在地肇庆空气

污染物主要受外地排放源输送影响(余纬等,2011),因此鼎湖山监测点可能反映了珠三角区域的污染水平。图3c显示当刮主导风东北风和东南风时明显汞的含量更高(图3a,c),表明在东北和东南方向有更多的汞排放源。

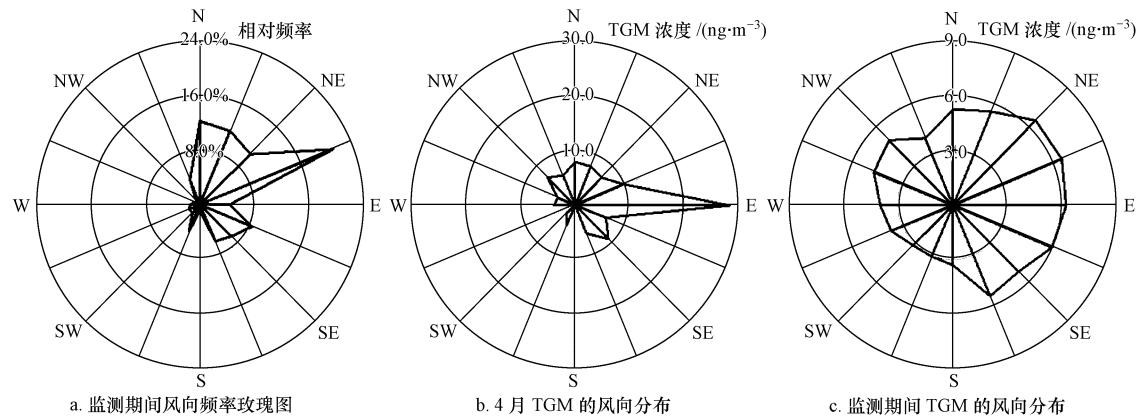


图3 鼎湖山风向频率玫瑰图和大气气态总汞的风向分布

Fig. 3 Wind frequency roses and Mean distribution of TGM at wind directions in Dinghu Mountain area

4.2 鼎湖山TGM的月变化

监测期间鼎湖山大气TGM总体月均浓度变化较大(图4),其范围为 $3.77 \sim 6.08 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ (中值,下同),其中11月最低,4月最高。整体说来,10~11月TGM浓度较低,这段时间温度较高(平均气温 23.1°C),鼎湖山地区大气中的 O_3 含量达到一年中的最大值(白建辉等,2003),由于鼎湖山地区10~11月平均日照时数长达131 h,强辐射会促进 O_3 光解导致 $\text{OH}\cdot$ 生成(陆克定,2010), O_3 和 $\text{OH}\cdot$ 与 Hg^0 反应是TGM氧化的最主要的途径(Han et al., 2004),这样使 Hg^0 的氧化速率加快, Hg^{2+} 最后通过干湿沉降去除导致监测到的TGM浓度较低(Bergan

et al., 2001),同时较高的气温会增加边界层的高度从而稀释汞的浓度(Lee et al., 1998)。监测期间的12月和次年1月大气TGM浓度明显升高($5.95 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),可能与空气扩散条件差相关。有研究报道,每年的10月至次年4月,由于冷空气南下等原因,珠三角地区易形成气流停滞区,污染物扩散条件差,易形成灰霾(陈欢欢等,2010)。

每年的春节期间,由于工厂减停产和大批外来人员返乡过年,广东电力需求呈现十分明显的漏斗形状(罗森波等,2007)。有趣的是,春节期间(2010.02.10—2010.03.09)TGM含量下降明显($3.33 \pm 1.04 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),3月份汞含量又有所回升($5.07 \pm 0.33 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)(图4),其变化趋势与电力需求十分相似,可能暗示汞的排放与以煤电为主的电力供应间存在某种联系,进一步的讨论见下节。4月份大气汞浓度出现最大值($6.08 \pm 0.96 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$),其中有几天出现异常高值(如4月9日最大值为 $29.94 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$)。典型的东北主导风向有利于区域排放源排放的汞迁移至监测点(图3b),另外,4月份进入梅雨季节,相对湿度(Relative Humidity, RH)大($90\% \pm 5.6\%$),监测期间RH与TGM成明显的正相关($r = 0.37, p < 0.001$)(图7),降雨过程也对土壤汞释放有一定的促进作用(王少锋等,2004),这些因素可能导致了4月份的高汞含量,但不排除周

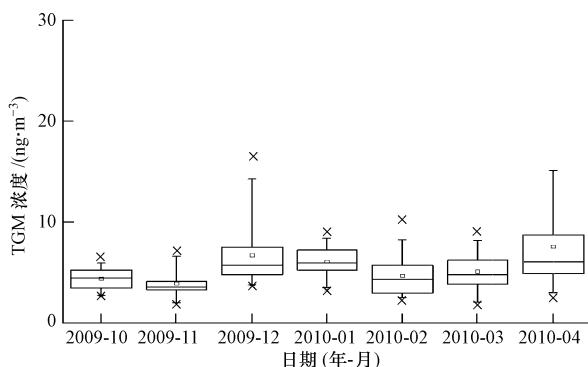


图4 鼎湖山地区大气气态总汞含量的月分布

Fig. 4 Monthly variation of TGM concentration observed in Dinghu Mountain area

边有直接人为源污染的影响.

4.3 鼎湖山 TGM 的日变化

目前的研究表明, 大气 TGM 的日变化有白天控制型(Fu *et al.*, 2008; Kuo *et al.*, 2006; Kellerhals *et al.*, 2003) 和夜晚控制型(Lee *et al.*, 1998; Kim *et al.*, 2009) 两种不同类型, 白天控制型即白天 TGM 浓度高, 反之即为夜晚控制型. 造成不同地区 TGM 的日变化出现不同的原因主要有以下几点: ① 边界层变化, 边界层厚度较低时容易使 TGM 富集在地表附近, 边界层厚度较高会稀释汞的浓度; ② 化学反应强弱, 大气中的强氧化性物质 O₃ 和 OH· 能氧化 Hg⁰, 使大气中的 TGM 浓度降低; ③ 温度变化, 温度升高能增加地表汞的释放, 但同时也可能导致边界层的高度增加; ④ 风向变化, 风向变化可能携带

不同来源或不同强度的汞至监测地点. 鼎湖山的 TGM 白天(06:00—18:00)含量为 5.84 ng·m⁻³, 夜间(18:00—06:00)为 5.34 ng·m⁻³, 变化幅度较小, 在中午(10:00)时达到最高点, 最低浓度出现在凌晨(0:00)(图 5), 属于白天控制型, 其日变化趋势与四川贡嘎山(Fu *et al.*, 2008)极为相似. 其原因可能是在上午 10 时温度和太阳辐射是主导因素, 导致地面汞释放增加空气中的 TGM, 边界层和化学反应起次要作用, 而当温度进一步升高时, 边界层高度变大和大气化学反应加快成为主导因素. 鼎湖山的昼夜特征也可能与风向的变化有关, 鼎湖山周边的城市的污染气体, 受山谷风影响, 白天对采样点影响较大.

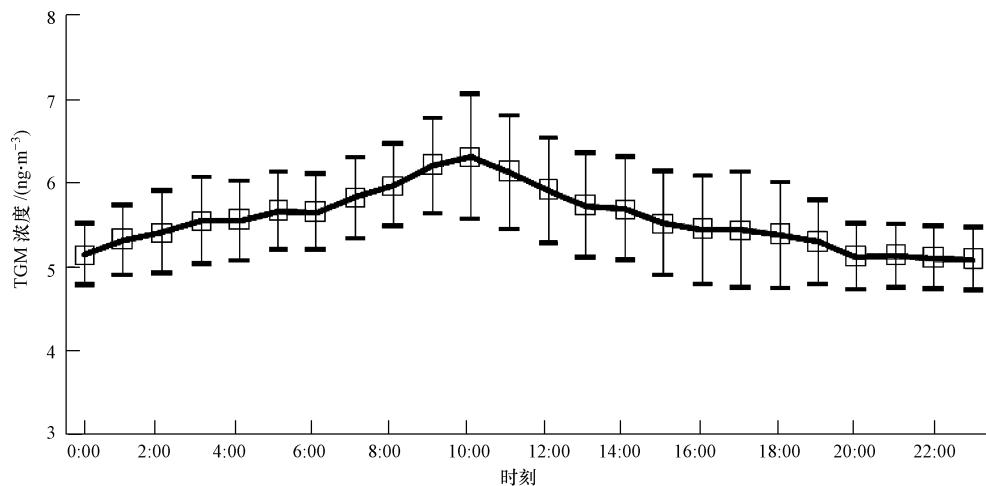


图 5 鼎湖山地区大气气态总汞的日变化

Fig. 5 Hourly median concentrations of TGM in Dinghu Mountain area

4.4 鼎湖山大气 TGM 与 SO₂、NO₂的相关性分析

燃煤是大气中 SO₂、NO₂最重要的来源之一, 也是最主要的汞排放源, 中国燃煤汞排放占总汞排放的 62.1% (Streets *et al.*, 2005). 因此 SO₂、NO₂ 数据也经常用来与 TGM 数据对比来识别汞的来源(Lee *et al.*, 1998; Li *et al.*, 2011). 一般气象混合条件下, SO₂ 与 TGM 有很明显的相关性(Lee *et al.*, 1998). 通过与邻近大气常规监测站 SO₂、NO₂ 浓度变化趋势进行对比(图 6), 我们发现在监测期间 TGM 与 SO₂ 变化趋势十分相似且相关性明显($r = 0.36, p < 0.001$), TGM 与 NO₂ 变化趋势也相似($r = 0.29, p < 0.001$). 广东省 2009 年原煤消耗量占到一次能源消费的 45.4%, 电力和热力原煤消耗占原煤消费总量的 64.5% (广东统计年鉴, 2010), 在珠三角区域, SO₂ 和 NO₂ 的最大排放源来自于化石燃料

燃烧(特别是煤的燃烧), 可能解释了 TGM 含量与 SO₂、NO₂ 间的关系, 同时如上节讨论, 由于电力需求与 TGM 间的变化趋势相近, 进一步确证了大气 TGM 与珠三角燃煤汞排放间的关系.

4.5 监测期间 TGM 与气象因子的关系

有研究表明, TGM 浓度与风速和风向明显相关, 当有本地源时, 风速增大明显有利于汞的扩散(Wan *et al.*, 2009), 本研究中 TGM 与风速成显著的负相关($r = -0.29, p < 0.001$)(图 7), 表明本地汞排放源的影响, 风速对 TGM 浓度的稀释有一定的贡献. 另外研究区域气温与 TGM 浓度成负相关($r = -0.15, p < 0.05$)(图 7), 这与 Lee 等(1998)、Poissant 等(2000) 和 Han 等(2004) 的研究结果一致, 相关性并不十分显著可能与大气中氧化物的季节性变化有关(Han *et al.*, 2004). 研究区域相对湿

度与 TGM 浓度成明显的正相关 ($r = 0.37, p < 0.001$) (图 7), 这与 Rosa 等(2004)对墨西哥城的研究结果一致。有研究表明, 土壤表面温度升高能增强土壤汞的释放(王少锋等, 2004)。研究区域地温

与 TGM 浓度成负相关, 但是相关性并不十分显著, 可能因为影响地表温度变化的因素比较多, 比如地表湿度、气温、光照强度、地表材质等都会对地温造成影响。

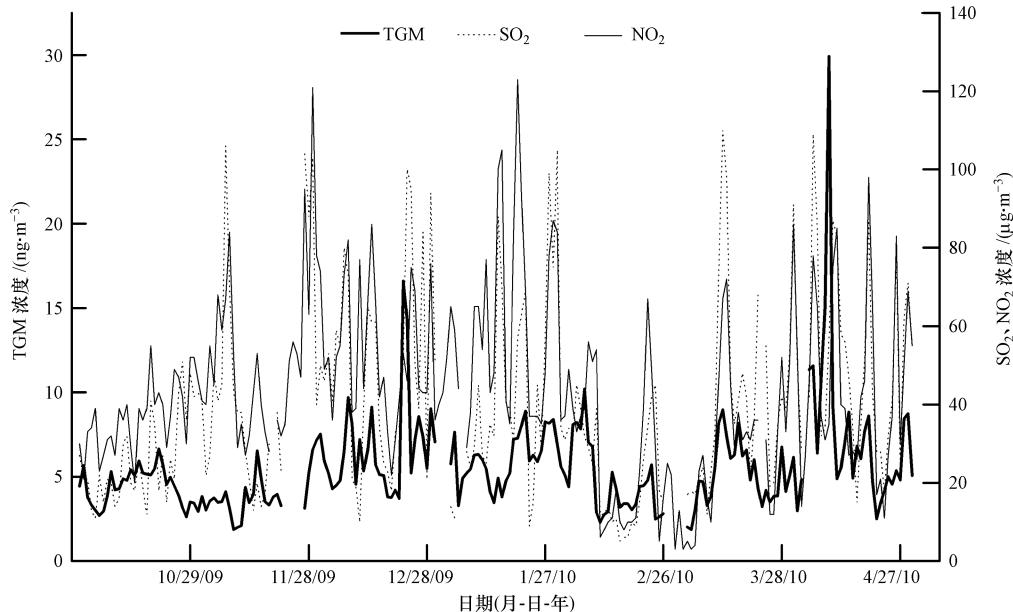


图 6 鼎湖山大气气态总汞(TGM)与 SO_2 、 NO_2 的浓度

Fig. 6 Time series of TGM, SO_2 and NO_2 concentrations in Dinghu Mountain area

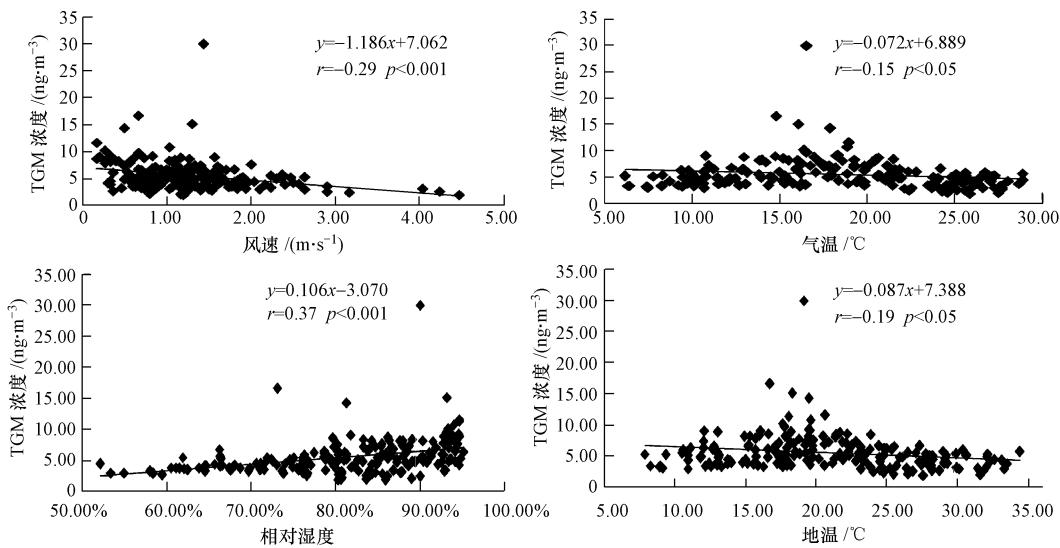


图 7 TGM 与气象因子的关系

Fig. 7 The relationship between TGM and meteorological factors

5 结论(Conclusion)

1) 鼎湖山地区 TGM 年平均含量远高于北半球大气汞含量的背景值、国内外许多乡村地区, 但低

于北京、贵阳等城市, 表明该地区的大气受到了一定程度的汞污染。

2) 鼎湖山大气 TGM 白天比夜晚高, 最高值出现在正午前后(10:00—12:00), 属于白天控制型,

控制性因素可能是升温导致地表的释放增加以及昼夜不同风向的影响。

3) 鼎湖山大气 TGM 的含量变化主要受到珠三角区域污染的影响, TGM 含量变化与大气中 NO₂、SO₂的相关性和与用电需求变化相关性分析表明, 珠三角人为源尤其是燃煤的汞排放对鼎湖山 TGM 有较大的贡献。

4) 鼎湖山大气 TGM 变化与气象条件有紧密联系。

致谢:感谢中国科学院华南植物园鼎湖山森林生态系统定位研究站工作人员在监测过程中提供的帮助,感谢中国科学院地球化学研究所冯新斌研究员课题组提供的技术支持。

责任作者简介:陈来国,男,高工,主要从事环境中毒害污染物(特别是 POPs 和汞)在环境中的迁移转化过程和人体暴露水平研究。已在国内外刊物发表论文 27 篇,其中 SCI 论文 12 篇。

参考文献(References) :

- Bahm K, Khalil M A K. 2004. A new model of tropospheric hydroxyl radical concentrations [J]. *Chemosphere*, 54: 143-166
- 白建辉,徐永福,陈辉,等. 2003. 鼎湖山森林地区臭氧及前体物的变化特征和分析[J]. 气候与环境研究,8(3):370-380
- Bai J H, Xu Y F, Chen H, et al. 2003. The variation characteristics and analysis of ozone and its precursors in the Dinghushan Mountain forest area[J]. *Climatic and Environmental Research*, 8(3):370-380 (in Chinese)
- Bergan T, Rodhe H. 2001. Oxidation of elemental mercury in the atmosphere: constraints imposed by global scale modeling [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 40: 191-212
- Burke J, Hoyer M, Keeler G, et al. 1995. Wet deposition of mercury and ambient mercury concentration at a site in the Lake Champlain basin [J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 80: 353-362
- 陈欢欢,吴兑,谭浩波,等. 2010. 珠江三角洲 2001—2008 年灰霾天气过程特征分析[J]. 热带气象学报, 26(2): 147-155
- Chen H H, Wu D, Tan H B, et al. 2010. Study on the character of haze weather process from the year 2001 to 2008 over the Pearl River Delta [J]. *Journal of Tropical Meteorology*, 26(2): 147-155 (in Chinese)
- 陈乐恬,刘俊华,佟玉芹,等. 2000. 北京地区大气中汞污染状况的初步调查[J]. 环境化学, 19(4): 357-361
- Chen L T, Liu J H, Tong Y Q, et al. 2000. The preliminary investigation of gaseous mercury pollution in Beijing area [J]. *Environmental Chemistry*, 19(4): 357-361 (in Chinese)
- Ebinghaus R, Kock H H, Schmolke S R. 2001. Measurements of atmospheric mercury with high time resolution: recent applications in environmental research and monitoring [J]. *Fresenius Journal of Analytical Chemistry*, 371: 806-815
- Feng X B, Tang S L, Shang L H, et al. 2003. Total gaseous mercury in the atmosphere of Guiyang, PR China [J]. *The Science of the Total Environment*, 304: 61-72
- Fu X W, Feng X B, Zhu W Z, et al. 2008. 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*, 42: 970-979
- 广东省统计局,国家统计局广东调查总队. 2010. 广东统计年鉴 2010 [R]. B004H73NLU. 广州: 广东统计年鉴编辑委员会. 167
- Statistics Bureau of Guangdong Province, Guangdong Survey Office of National Bureau of Statistics. 2010. *Guangdong Statistical Yearbook 2010* [R]. B004H73NLU. Guangzhou: Guangdong Statistical Yearbook Editorial Committee. 167 (in Chinese)
- Han Y J, Thomas M H, Soonnn L, et al. 2004. Atmospheric gaseous mercury concentrations in New York State: relationships with meteorological data and other pollutants [J]. *Atmospheric Environment*, 38: 6431-6446
- Kellerhals M, Beauchamp S, Belzer W, et al. 2003. Temporal and spatial variability of total gaseous mercury in Canada: results from the Canadian atmospheric mercury measurement network (CAMNet) [J]. *Atmospheric Environment*, 37: 1003-1011
- Kim K H, Ebinghaus R, Schroeder W H, et al. 2005. Atmospheric mercury concentrations from several observatory sites in the northern hemisphere [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 50: 1-24
- Kim S H, Han Y J, Thomas M, et al. 2009. Characteristics of atmospheric speciated mercury concentrations (TGM, Hg(II) and Hg(p)) in Seoul, Korea [J]. *Atmospheric Environment*, 43: 3267-3274
- Kuo T H, Chang C F, Urba A, et al. 2006. Atmospheric gaseous mercury in Northern Taiwan [J]. *Science of Total Environment*, 368: 10-18
- Lee D S, Dollard G J, Pepler S. 1998. Gas-phase mercury in the atmosphere of the United Kingdom [J]. *Atmospheric Environment*, 32(5): 855-864
- 李红英,罗津晶,李金兰. 2009. 厦门市秋冬季节大气汞污染调查 [J]. 环境科学与管理, 34(9): 48-52
- Li H Y, Luo J J, Li J L. 2009. The atmospheric mercury pollution survey during autumn and winter seasons in Xiamen [J]. *Environmental Science and Management*, 34 (9): 48-52 (in Chinese)
- Li Z, Xia C H, Wang X M, et al. 2011. Total gaseous mercury in Pearl River Delta region, China during 2008 winter period [J]. *Atmospheric Environment*, 45: 834-838
- 刘全友,徐良才,庞淑薇. 1984. 南迦巴瓦峰地区大气中汞的环境自然背景值[J]. 环境化学, 3(6): 64-67
- Liu Q Y, Xu L C, Pang S W. 1984. Natural environmental background values of atmospheric mercury in the MT. Namjagbarwa area [J]. *Environmental Chemistry*, 3(6): 64-67 (in Chinese)
- 陆克定,张远航. 2010. HO_x自由基的实地测量及其化学机制解析 [J]. 化学进展, 22(2/3): 500-514
- Lu K D, Zhang Y H. 2010. Observations of HO_x radical in field

- studies and the analysis of its chemical mechanism [J]. Progress in Chemistry, 22(2/3):500-514 (in Chinese)
- 罗森波,纪忠萍,马煜华,等. 2007. 2002—2004年广东电力负荷的变化特征及预测[J]. 热带气象学报, 23(2): 153-161
- Luo S B, Ji Z P, Ma Y H, et al. 2007. The variability characteristics and prediction of Guangdong electrical load during 2002—2004 [J]. Journal of Tropical Meteorology, 23 (2): 153- 161 (in Chinese)
- Mason R P, Fitzgerald W F, Morel F M M. 1994. The biogeochemical cycling of elemental mercury — anthropogenic influences [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 58(15): 3191-3198
- Poissant L. 2000. Total gaseous mercury in Quebec Canada in 1998[J]. The Science of the Total Environment, 259: 191-201
- 祁士华,盛国英,傅家模,等. 2001. 鼎湖山自然保护区大气气溶胶中的PAHs[J]. 地球科学:中国地质大学学报,26(1):83-87
- Qi S H, Sheng G Y, Fu J M, et al. 2001. PAHs in aerosols at Dinghushan natural protection Zone [J]. Earth Science-Journal of China University of Geosciences,26(1):83-87 (in Chinese)
- Rosa D A, Volke-Sepulveda T, Solorzano G, et al. 2004. Survey of atmospheric total gaseous mercury in Mexico [J]. Atmospheric Environment, 38: 4839-4846
- Schroeder W H, Munthe J. 1998. Atmospheric mercury—an overview [J]. Atmospheric Environment, 32: 809-822
- Streets D G, Hao J M, Wu Y, et al. 2005. Anthropogenic mercury emissions in China [J]. Atmospheric Environment, 39: 7789-7806
- 王定勇,李孝华,吴成. 1996. 重庆大气汞初步调查[J]. 重庆环境科学, 18(4): 58-61
- Wang D Y, Li X H, Wu C. 1996. Preliminary investigation on the atmospheric mercury in Chongqing [J]. Chongqing Environmental Science, 18(4): 58-61 (in Chinese)
- Wan Q, Feng X B, Lu J L, et al. 2009. Atmospheric mercury in Changbai Mountain area, northeastern China I. The seasonal distribution pattern of total gaseous mercury and its potential sources [J]. Environmental Research, 109: 201-206
- 王少锋,冯新斌,仇广乐,等. 2004. 贵州滥木厂汞矿区土壤与大气间气态汞交换通量及影响因素研究[J]. 地球化学, 33(4): 405-413
- Wang S F, Feng X B, Qiu G L, et al . 2004. Mercury exchange between soil and air in Lan mu chang Hg mine, Guizhou Province [J]. Geochimica, 33(4): 405-413 (in Chinese)
- Wang Z W, Chen Z S, Duan N, et al. 2007. Gaseous elemental mercury concentration in atmosphere at urban and remote sites in China [J]. Journal of Environmental Sciences, 19: 176-180
- 杨昕,李兴生. 1999. 近地面O₃变化化学反应机理的数值研究[J]. 大气科学, 23(4): 426-438
- Yang X, Li X S. 1999. A numerical study of photochemical reaction mechanism of ozone variation in surface layer [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 23 (4): 426-438 (in Chinese)
- 杨勇杰,王跃思,温天雪,等. 2009. 鼎湖山PM_{2.5}中化学元素的组成及浓度特征和来源[J]. 环境科学,30(4):988-992
- Yang Y J, Wang Y S, Wen T X, et al. 2009. Element characteristics and sources of PM_{2.5} at Mount Dinghu in 2006 [J]. Environmental Science, 30(4):988-992 (in Chinese)
- 余纬,罗栩羽,范绍佳,等. 2011. 珠三角一次重空气污染过程特征分析及数值模拟[J]. 环境科学研究,24(6):645-653
- Yu W, Luo X Y, Fan S J, et al. 2011. Characteristic analysis and numerical simulation of a heavy air pollution process in Pearl River Delta [J]. Research of Environmental Sciences, 24 (6):645-653 (in Chinese)
- Zheng J Y, Zhong L J, Wang T, et al. 2010. Ground-level ozone in the Pearl River Delta region: Analysis of data from a recently established regional air quality monitoring net work [J]. Atmospheric Environment, 44: 814-823