

## 履约对我国典型城市和偏远背景地区气态单质汞浓度和源区的影响研究

林健<sup>1,2</sup>, 刘岩<sup>2</sup>, 李晓秀<sup>1,\*</sup>, 俞奔<sup>2,\*</sup>, 张超<sup>3</sup>, 张利飞<sup>2</sup>

(1.首都师范大学 资源环境与旅游学院,北京 100048; 2.国家环境分析测试中心,北京 100029;

3.鲁美科思仪器科技有限公司,北京 100086)

**摘要:** 为了解我国城市和背景地区最新的气态单质汞(gaseous elemental mercury, GEM)水平,比较《关于汞的水俣公约》履约前后这些地区 GEM 来源和迁移规律的差异,本研究选择了 1 个城市监测站(淀山湖站)和 1 个背景监测站(哀牢山站),于 2021 年分别进行了为期 1 个月的 GEM 监测,同时使用潜在源贡献因子计算分析两地 GEM 的来源,并与履约前的结果进行对比。位于长三角地区的淀山湖站 GEM 浓度降幅大于位于我国西南的哀牢山站 GEM 浓度降幅,表明针对我国工业排放源超低排放的改造,获得了显著的履约成效。相对履约前,两地 GEM 的可能源区和传输形式没有显著改变,人为源排放仍然是影响两地 GEM 浓度的主要因素。本研究结果表明随着履约工作的逐步推进,我国城市和背景地区的 GEM 仍有下降的可能,长期在这些站点开展大气汞监测,可以为汞履约成效评估提供有效的数据支撑。

**关键词:** 气态单质汞; 长三角; 西南地区; 超低排放

**中图分类号:** X51; X505 **文献标识码:** A **文章编号:** 1672-9250(2022)03-0380-08 **doi:** 10.14050/j.cnki.1672-9250.2022.50.079

气态单质汞(gaseous elemental mercury, GEM)在大气汞中占比超过 80%<sup>[1]</sup>,是最重要的大气汞形态。GEM 具有 8~13 月的大气居留时间<sup>[2]</sup>,可以随大气环流进行长距离迁移,因此被认为是一种全球污染物。GEM 可通过天然源和人为源排放进入大气。人为源主要包括煤炭燃烧、金属矿开采及冶炼、水泥生产、炼油工业、手工小规模炼金及消费品废弃物,而天然源包括火山及地热活动、岩石风化、森林野火及地表沉降汞的再释放<sup>[3]</sup>。由于 GEM 可通过大气过程转化为二价汞,以活性气态汞、颗粒态汞、凋落物汞的形式沉降至地表,进入地表环境循环,其中部分更可通过甲基化过程转化为具有高度生物富集性和生物放大性的甲基汞,进一步产生环境和人体健康风险,了解 GEM 的来源和迁移过程对于防治环境汞污染具有重要意义。随着我国工业水平的发展,我国逐渐成为汞排放的大国<sup>[4]</sup>。尽管研究表明除了部分环境敏感地区的居住人群外,我国居民整体汞暴露风险水平较低,掌握 GEM 的来

源和迁移规律,可以有效的防止潜在的环境和健康风险。同时《关于汞的水俣公约》(以下简称《汞公约》)于 2017 年在我国生效。根据公约要求,缔约方应进行具有地域代表性的监测活动,同时提供可用于履约成效评估的可比监测数据。因此考虑到国内污染防治和国际公约履约需求,有必要对典型地区的 GEM 进行监测并分析其来源及迁移规律。

伴随着我国工业化和城市化进程的推进,工业生产活动造成的人为源排放成为我国最主要的气态单质汞来源。2015 年的研究<sup>[4]</sup>表明,我国城市地区 GEM 平均浓度为  $9.20 \pm 7.56 \text{ ng/m}^3$ ,显著高于欧美城市地区的 GEM 浓度( $1.60 \sim 4.50 \text{ ng/m}^3$ )。我国城市地区现有 GEM 监测数据表明,监测点附近的工业点源是最主要的大气汞来源。此外,我国北方的居民供暖以及季风气团与本地气团的混合是产生相关城市地区 GEM 季节差异的主要原因。

相对于城市和工业区,偏远地区由于远离排放点源,其 GEM 浓度往往是长距离迁移和当地环境过

收稿日期: 2022-01-31; 改回日期: 2022-04-27

基金项目: 国家环境保护重金属污染监测重点实验室开放基金项目(SKLMHM202102)。

第一作者简介: 林健(1997-)男,硕士研究生,研究方向为大气汞的监测技术研究。E-mail: linjian0907@163.com.

\* 通讯作者: 俞奔(1985-)男,博士,助理研究员,研究方向为汞的环境地球化学和同位素地球化学。E-mail: yuben@edcmep.org.cn.

李晓秀(1962-)女,硕士,副教授,研究方向为环境影响与评价。E-mail: lxiaoxiu0548@sina.com.

程共同作用的结果。我国偏远地区 GEM 平均浓度  $2.86 \pm 0.95 \text{ ng/m}^3$ <sup>[4]</sup>, 虽然高于北半球平均背景浓度 ( $1.5 \sim 1.7 \text{ ng/m}^3$ )<sup>[5]</sup>, 然而显著低于我国城市地区的平均浓度。来自我国主要城市/工业区(如长三角、珠三角、京津冀等经济发达地区)的气团随着长距离迁移影响我国偏远地区,同时海洋季风会携带南亚、东南亚、日韩等地区的人为排放影响我国的西南、华南、华北和东北等地的偏远地区。另一方面,海洋季风和西伯利亚季风会携带海洋边界层和亚洲大陆内陆地区的清洁空气影响我国的偏远地区。因此偏远地区的 GEM 往往呈现出高浓度的人为排放气团和低浓度的洁净空气共同混合的结果。此外偏远地区当地的环境过程,特别是森林、草原等植被对于 GEM 的吸收可以显著降低该地区 GEM 的浓度<sup>[6]</sup>。

随着我国涉汞产品生产的逐步降低、能源结构调整、典型行业超低排放及绿色转型发展,我国环境中 GEM 的含量近年来呈下降趋势。模型计算表明 2013 至 2017 年间,我国气态总汞(TGM,由 GEM 和活性气态汞组成)平均浓度下降了  $0.29 \text{ ng/m}^3$ <sup>[7]</sup>。燃煤电厂的超低排放技术将其烟道气中的汞含量去除率提高到了 87%<sup>[8]</sup>,作为我国人为排放 GEM 的主要工业源的燃煤电厂已被水泥熟料生产取代。随着《汞公约》履约的逐步深入,我国城市和背景地区 GEM 的来源及迁移规律相比履约前是否有所变化,成为了评估履约成效的重要依据。

为了解我国城市和背景地区最新的 GEM 浓度水平,比较履约前后这些地区 GEM 来源和迁移规律的差异,本研究选择了 1 个城市监测站和 1 个背景

监测站进行了为期 1 月的 GEM 监测。使用潜在源贡献因子分析两地 GEM 的来源地区,并与履约前的结果进行比对。

## 1 研究方法

### 1.1 采样点介绍

本研究选择了位于长三角的上海市青浦区淀山湖科学观测站和云南省普洱市的哀牢山森林生态系统国家野外科学观测研究站,分别作为城市监测点和背景监测点。

上海市环境监测中心淀山湖科学观测站(淀山湖站)位于上海市青浦区淀山湖岸边( $31.10^\circ \text{N}$ ,  $121.00^\circ \text{E}$ ),属北亚热带南部季风气候区,年平均气温  $15.5^\circ \text{C}$ ,年平均降雨量  $1056.6 \text{ mm}$ 。淀山湖位于上海市与江苏省苏州市的交界处,是黄浦江的上游水源地。站点周边 5 km 内无主要排放点源,周边 50 km 是上海、昆山、苏州、嘉兴等城市。长三角地区是中国最发达的城市/工业区之一。受到强烈的人为活动的影响,该地区常规污染物如  $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ 、VOCs、 $\text{PM}_{2.5}$  等的单位面积排放因子高于全国平均值  $2.3 \sim 5.2$  倍<sup>[9]</sup>。该地的 GEM(或 TGM)浓度也显著高于北半球背景地区平均浓度( $1.5 \sim 1.7 \text{ ng/m}^3$ ),详见表 1)<sup>[5]</sup>,主要来源为区域内的以燃煤电厂、有色金属冶炼、水泥生产为主的工业排放<sup>[10]</sup>。

云南省哀牢山森林生态系统国家野外科学观测研究站(哀牢山站)位于哀牢山国家级自然保护区北段山顶部( $24.53^\circ \text{N}$ ,  $101.02^\circ \text{E}$ ),在云南省普洱市景东彝族自治县境内,海拔  $2450 \text{ m}$ ,距昆明近 500 km。地处西南季风气候区,属亚热带山地气候,

表 1 淀山湖站 GEM 浓度与长三角监测数据(GEM 或 TGM) 比对

Table 1 GEM concentrations at the Dianshanhu urban site with historical monitoring data (GEM or TGM) observed in Yangtze River Delta region

监测点	经度/ $^\circ$	纬度/ $^\circ$	GEM/TGM 浓度/( $\text{ng/m}^3$ )		监测时间	监测仪器
			平均值	标准偏差		
淀山湖(本研究)	121.00	31.10	2.30	1.29	2021.06~2021.07	Lumex RA-915AM
嘉兴市区 <sup>[11]</sup>	120.70	30.83	5.40	4.10	2005.09	Lumex RA-915+
宁波市区 <sup>[12]</sup>	121.54	29.87	3.79	1.29	2007.10~2008.01	Lumex RA-915+
上海市区 <sup>[13]</sup>	121.54	31.23	2.70*	1.70*	2009.08~2009.9	Tekran 2537A
崇明岛 <sup>[14]</sup>	121.91	31.52	2.50*	1.50*	2009.09~2009.12	Tekran 2537B
南京市区 <sup>[15]</sup>	118.78	32.05	7.90*	7.00*	2011.01~2011.12	Tekran 2537B
大梅山 <sup>[16]</sup>	121.57	29.63	3.31*	1.44*	2011.04~2013.04	Tekran 2537B
花鸟岛 <sup>[17]</sup>	122.67	30.86	2.25	1.03	2013.10~2014.01	Tekran 2537
淀山湖 <sup>[18]</sup>	121.00	31.10	4.19	9.13	2014.06~2014.12	Tekran 2537B
崇明岛 <sup>[19]</sup>	121.97	31.54	2.75	1.13	2014.03~2015.02	Tekran 2537X
淀山湖 <sup>[20]</sup>	121.00	31.10	2.77	1.36	2015.06~2016.05	Tekran 2537B

注:\* 为 TGM 浓度。

周边生长着原生亚热带山地湿性常绿阔叶林。年平均温度 11.0 °C, 年降水量 1 931.1 mm。站点周边 50 km 内无主要排放点源, 周边 10 km 内无人口聚集生活区。2017~2018 年的监测数据<sup>[21]</sup>表明该站点大气汞浓度处于北半球平均背景浓度范围内(表 2)。该站点大气汞受到南亚和中南半岛来源的跨境传输的影响<sup>[22-23]</sup>。

### 1.2 监测方法

本研究利用大气汞在线监测仪(RA-915AM, Lumex Instruments)对监测点的 GEM 进行监测, 监测数据间隔为 5 min。其中淀山湖站的监测时间为 2021 年 6 月 5 日至 7 月 6 日, 袁牢山站的监测时间为 2021 年 7 月 23 日至 8 月 28 日。淀山湖站和袁牢山站的采样口均位于站房楼顶, 距地表分别为 13 m 和 3 m。采样口安装石英纤维滤膜(47 mm 直径, 0.45 μm 孔径)去除大气颗粒物, 监测期间每两周更换一次滤膜。采样工况流速分别为 10 L/min 和 8 L/min。仪器检出限为 0.5 ng/m<sup>3</sup>。RA-915 系列测汞仪在 1~100 ng/m<sup>3</sup> 的 GEM 浓度范围内的监测结果与常用的 Tekran 2537 系列大气汞自动分析仪监测结果具有良好的一致性<sup>[4]</sup>。

### 1.3 质量保证与质量控制

大气汞在线监测仪开始前均使用手工注射汞蒸气校准方式进行校准, 监测期间自动校准间隔为 6 h, 监测仪采样流速以标况(273.15 K, 101.325 kpa)流速计算。

### 1.4 后向轨迹分析及潜在源贡献因子分析

后向轨迹分析和潜在源贡献因子分析所需的间隔 6 h 气象数据均来自美国国家海洋和大气管理局空气资源实验室 FTP 服务器(ftp://arlftp.arlhq.noaa.gov/archives/gdas1)。利用该实验室提供的 HYSPLIT 模型工具(https://ready.arl.noaa.gov/HY-SPLIT\_traj.php), 计算后向轨迹。轨迹的到达高度

设置为距地表 500 m。依据时间将计算获得的轨迹与 6 小时平均 GEM 浓度关联。将轨迹覆盖的地理区域依照 1°×1° 为单位划分单元网格, 使用 GIS 软件统计每个单元网格内所包含的轨迹端点。将落在第  $ij$  个单元网格内的轨迹端点数记为  $N_{ij}$ , 同时设定 GEM 的一个阈值(为研究时间段内 GEM 浓度的中位数), 将高于该阈值的 GEM 浓度对应的轨迹标记为污染轨迹。计算落在第  $ij$  个单元网格内的污染轨迹端点数为  $M_{ij}$ 。则对于第  $ij$  个单元网格, 其潜在源贡献因子  $PSCF$  值为:

$$PSCF_{ij} = W_{ij} \times M_{ij} / N_{ij} \quad (1)$$

对于  $N_{ij}$  较小的单元网格, 为了减轻其对于潜在源贡献因子计算的贡献, 引入权重  $W_{ij}$ , 其定义方法为:

$$W_{ij} = \begin{cases} 1.0, & (N_{ij} \geq 3N_{ave}) \\ 0.70, & (1.5N_{ave} \leq N_{ij} < 3N_{ave}) \\ 0.40, & (N_{ave} \leq N_{ij} < 1.5N_{ave}) \\ 0.20, & (N_{ij} < N_{ave}) \end{cases} \quad (2)$$

其中  $N_{ave}$  为各单元网格内  $N_{ij}$  的平均值。最后使用 GIS 软件, 对全部单元网格的  $PSCF_{ij}$  进行通用克里金插值计算, 并绘制图像。

## 2 结果与讨论

### 2.1 淀山湖站和袁牢山站 GEM 浓度下降

图 1 是淀山湖站和袁牢山站 GEM 小时平均值监测数据。淀山湖站 GEM 平均浓度为 2.30 ng/m<sup>3</sup>, 与 2014 年 6 月(5.1 ± 11.8 ng/m<sup>3</sup>)<sup>[18]</sup> 和 2015 年 6 月(3.2 ± 2.0 ng/m<sup>3</sup>, 图 1 A 灰色线)<sup>[20]</sup> 在同一站点的监测数据相比, 本次监测期间 GEM 的平均浓度下降了 54.9% 和 28.1%。淀山湖站所代表的长三角典型城市地区背景 GEM 浓度仍高于北半球平均背景浓度(1.5~1.7 ng/m<sup>3</sup>)<sup>[5]</sup>, 远低于 2015 年统计<sup>[4]</sup>

表 2 袁牢山站 GEM 浓度与云南省范围内监测数据(GEM 或 TGM) 对比

Table 2 GEM concentrations at the Ailaoshan remote site with historical monitoring data (GEM or TGM) observed in Yunnan Province

监测点	经度/°	纬度/°	GEM/TGM 浓度/(ng/m <sup>3</sup> )		监测时间	监测仪器
			平均值	标准偏差		
袁牢山(本研究)	101.02	24.53	1.61	0.64	2021.07~2021.08	Lumex RA-915AM
香格里拉 <sup>[24]</sup>	99.73	28.02	2.55*	0.73*	2009.11~2010.11	Tekran 2537A
袁牢山 <sup>[23]</sup>	101.02	24.53	2.09*	0.63*	2010.05~2011.05	Tekran 2537A
袁牢山 <sup>[22]</sup>	101.02	24.53	2.10*	0.70*	2011.09~2013.09	Tekran 2537A
袁牢山 <sup>[21]</sup>	101.02	24.53	1.64*	0.81*	2017.01~2018.02	Tekran 2537

注: \* 为 TGM 浓度。

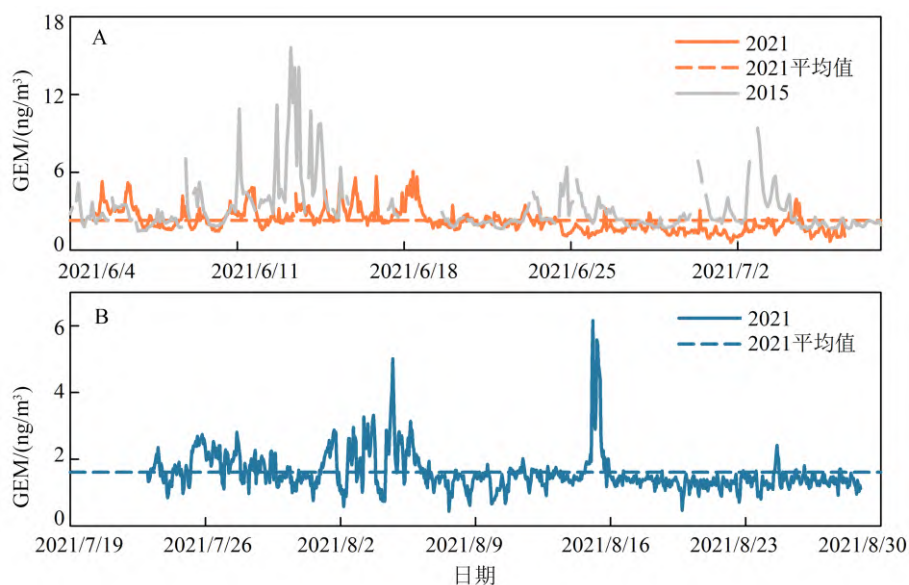


图 1 淀山湖站 (A) 和哀牢山站 (B) GEM 监测数据(小时平均值) 并与淀山湖站 2015 年同期观测值对比(灰色线, 据文献[20])

Fig.1 The hourly averaged GEM concentrations at the Dianshanhu urban site (A) and Ailaoshan remote site (B), compared with monitoring records from the Dianshanhu urban site in the same period of 2015( grey line, from ref. [20])

的中国城市平均值 ( $9.20 \text{ ng/m}^3$ , 监测时间从 1998 年到 2013 年)。哀牢山站 GEM 平均浓度为  $1.61 \text{ ng/m}^3$ , 与 2010 年夏季在同一地点的监测数据 ( $2.20 \pm 0.60 \text{ ng/m}^3$ )<sup>[23]</sup> 相比, 本次监测期间 GEM 的平均浓度下降了 26.8%。哀牢山站所代表的我国西南偏远背景地区 GEM 浓度处于北半球平均背景浓度范围内。

《汞公约》在中国生效后, 国家实施了一系列污染防治措施控制汞的排放。在超低排放和绿色转型的推进过程中, 我国大气汞的浓度水平逐年下降。根据模型计算, 由于上述政策措施的实施, 我国 GEM 浓度均值在 2013~2017 年间下降约  $0.29 \text{ ng/m}^3$ <sup>[7]</sup>。本研究监测数据也表明, 无论是在淀山湖站所代表的长三角地区还是哀牢山站所代表的西南背景地区, 其 GEM 浓度相对于《汞公约》生效 (2017 年) 前均有所下降(表 1 和表 2), 与模型分析结果的趋势一致。长三角典型城市地区 GEM 在春、秋、冬季的主要来源为燃煤电厂和工业锅炉<sup>[19, 25]</sup>。截至 2020 年底, 我国燃煤电厂总装机容量的 89% 已实现超低排放, 其中多种脱硫脱硝和除尘装置的协同减排, 将燃煤电厂烟气汞平均脱汞效率提高到 80%<sup>[26]</sup>, 成为长三角典型城市地区 GEM 浓度下降的主要原因, 也是我国《汞公约》履约成效的重要体现。因此, 随着我国减污降碳, 特别是《汞公约》重

点关注的大气排放行业如燃煤工业锅炉、水泥熟料生产、有色金属冶炼及固体废弃物焚烧等超低排放改造和城市绿色低碳发展, 长三角典型城市 GEM 浓度仍会继续降低。

哀牢山站作为我国西南偏远背景地区的站点, 其 GEM 受到人为排放源的影响主要来自长距离迁移。本研究中哀牢山站的监测开展于夏季。尽管哀牢山夏季主要由印度洋季风控制, 然而部分时间内增强的东亚夏季风会携带我国西南地区的人为源排放到达哀牢山, 提高当地的 GEM 水平<sup>[23]</sup>。西南地区工业源排放的下降可能是哀牢山站 GEM 浓度降低的重要原因。由于在背景地区人为源排放对于当地 GEM 的贡献比率低于城市/工业地区, 因此哀牢山站 GEM 下降幅度也显著低于位于城市/工业地区的淀山湖站。西南地区城市站点的 GEM/TGM 浓度也显著下降, 如贵阳市从 2009 年的  $9.72 \text{ ng/m}^3$ <sup>[27]</sup> 下降至 2019 年的  $3.5 \text{ ng/m}^3$ <sup>[28]</sup>。哀牢山站的 GEM 下降幅度同样低于我国西南地区城市站点的 GEM 下降幅度, 表明人为源排放的下降是导致我国 GEM 浓度降低的主要驱动因素。

本研究中, 淀山湖站 GEM 日变化特征呈现城市地区的共同特点: 午时达到峰值, 日出前达到谷值(图 2)。类似的趋势在 2011 年的南京<sup>[15]</sup>、2012~2013 年的宁波<sup>[16]</sup>、2015~2016 年的上海<sup>[20]</sup> 等城市

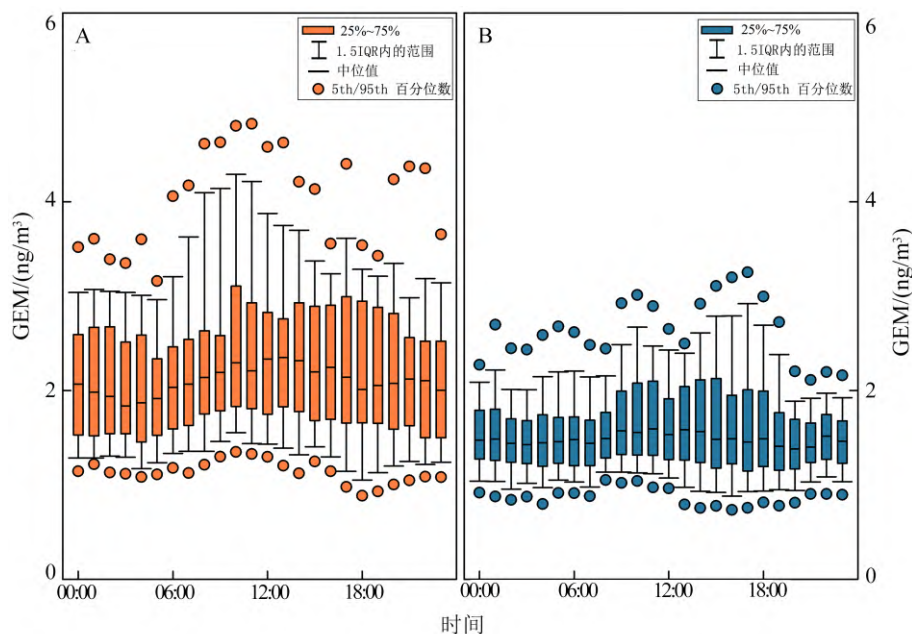


图2 淀山湖站(A)和哀牢山站(B) GEM浓度日变化箱式图

Fig.2 Box plots of diurnal trends of GEM concentrations at the Dianshanhu urban site (A) and Ailaoshan remote site (B)

同样被观测到。这些位于长三角地区的城市的日变化趋势主要受到人为源排放行为和污染物扩散两种环境行为的影响。白天大量排放的GEM会在工作时段结束后的夜晚逐渐扩散,形成昼高夜低的日变化。此外,产生入夜后GEM小峰值的可能原因是夜晚下降的城市大气边界层高度压缩了近地空气中的GEM。这些结果表明,尽管长三角典型城市地区GEM浓度显著下降,其主要排放源仍是该地区活跃的人为源排放活动。然而,该趋势与位于长江入海口的崇明岛日变化趋势<sup>[19]</sup>,以及同样为沿海城市的厦门市日变化趋势<sup>[29]</sup>有所不同。相比较淀山湖站的地理位置,这两个监测点位更靠近海岸线,受海洋边界层的影响更大。海岸地区白天陆地气温升高导致海洋边界层的空气侵入陆地上空,稀释了陆地的人为源排放,同时海洋大气中丰富的活性组分加速了GEM氧化,因此呈现与淀山湖相反的日变化趋势,即白天出现谷值而夜间出现峰值。

哀牢山站GEM白天浓度略高于夜晚,变化幅度不大(图2)。这与我国大多数偏远地区站点的日变化特征一致<sup>[4]</sup>。产生该趋势的主要因素为白天较高的光照强度和温度增强了该地区地表/植被表面再释放过程<sup>[30]</sup>。此外,大多数偏远地区站点位于山顶,白天增强的谷风将低海拔地区较多的人为源排放输送至山顶<sup>[24]</sup>。哀牢山站的GEM日变化特征主

要体现出本地环境过程的影响,而受到人为源排放的影响十分有限。

## 2.2 潜在源贡献因子分析解析来源

淀山湖站和哀牢山站GEM潜在源贡献因子(PSCF)分析见图3。结果表明,淀山湖站高浓度GEM最可能的源区来自江苏南部工业区,其他可能的源区包括江西北部、安徽东部、福建沿海、珠三角、京津冀、山西南部、河南北部。这些地区几乎覆盖了我国东部主要工业区域,表明工业地区的人为源排放对淀山湖站GEM有着重要的贡献。与2015~2016年在同一站点的监测数据进行的潜在源贡献因子分析结果<sup>[20]</sup>对比,最可能的源区由安徽和江西省扩张至江苏南部。此外还有韩国南部、日本西部等境外可能的源区。江苏省大力发展制造业,制造业规模连续9年全国第一,苏南地区有中国最大的制造业集群。制造业及配套的能源产业增加了化石燃料的使用,这可能是该地区大气气排水平提高的重要原因。

云南中部、云贵桂三省交界地区为哀牢山高浓度GEM最可能的源区,而境外源区包括缅甸中部。这与2011~2013年在同一地点开展的监测数据潜在源贡献因子分析结果<sup>[22]</sup>类似。

潜在源贡献因子分析表明,两地高浓度GEM主要源区在《汞公约》生效后并未发生显著变化,即主要源区仍为监测点位周边地区的工业源区。这

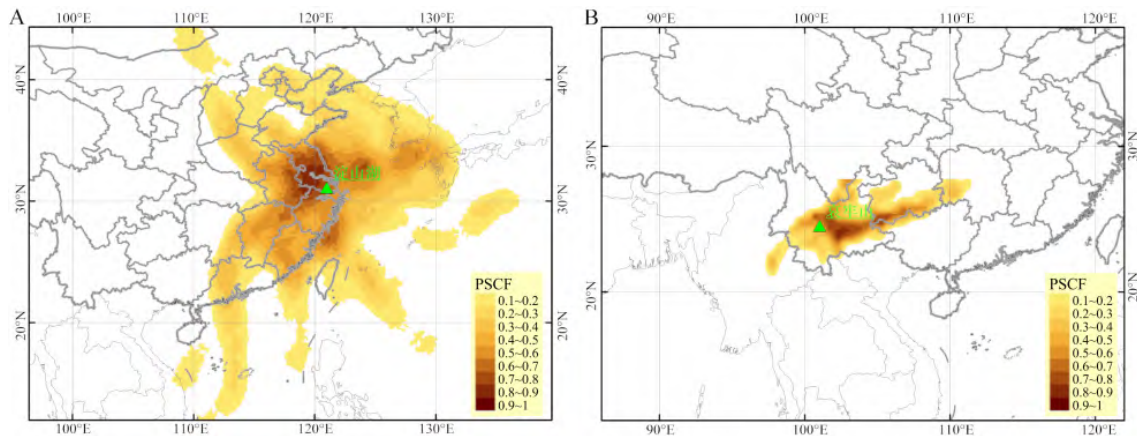


图 3 淀山湖站 (A) 和哀牢山站 (B) GEM 潜在源贡献因子分析

Fig.3 Potential source contribution function analysis of GEM at the Dianshanhu urban site ( A ) and Ailaoshan remote site ( B )

表明我国人为源排放区域,即主要工业地区的空间分布没有显著改变,然而 GEM 浓度下降,表明超低排放等减排策略和低汞无汞生产工艺的使用都有效的降低了我国大气汞排放规模。此外,两个站点都受到跨境传输的影响,由于我国大部分地区都处于季风区,随着跨境传输进入我国的 GEM 在我国大气汞排放降低的背景下值得进一步关注。特别是随着南亚和东南亚地区的工业化进程加速,其产生的大气汞排放随着印度洋季风长距离迁移至我国西南地区<sup>[23-24]</sup>,可能成为我国西南地区重要的排放源区。

在图 1 中,淀山湖站 GEM 浓度出现了阶段性的变化,6 月 18 日前浓度较高(平均值  $2.90 \text{ ng/m}^3$ )而之后降低(平均值  $1.81 \text{ ng/m}^3$ )。长三角地区作为临海的城市区,大气汞受到海陆气团交替的影响较大<sup>[16]</sup>。针对 6 月 18 日前后的浓度变化,图 4 展现

了该日期前后大气后向轨迹的变化。在 6 月 18 日后,气团主要来源由长三角本地和浙江沿海,转变为长江出海口以东的海洋地区。海洋边界层中 GEM 浓度较低,稀释了淀山湖站本地的 GEM,造成了 GEM 浓度阶段性的下降。

另一方面,哀牢山站 GEM 在 8 月 4 日和 8 月 15 日分别出现了污染事件。8 月 4 日 17:40 达到峰值  $5.61 \text{ ng/m}^3$ ,污染事件持续约 10 小时,而在 8 月 15 日 02:00 达到峰值  $8.46 \text{ ng/m}^3$ ,污染事件持续约 14 小时。由于本研究所使用的后向轨迹分析时间分辨率较低,无法用于准确判断持续数小时的污染事件的污染物来源。类似的污染事件在 2011 年夏季的监测<sup>[23]</sup>中也出现过。由于哀牢山站受到东亚夏季风和印度洋季风的共同影响,当东亚夏季风增强时,气团携带我国内陆汞含量较高的人为源排放到达哀牢山站,而当东亚夏季风减退时,印度洋季风

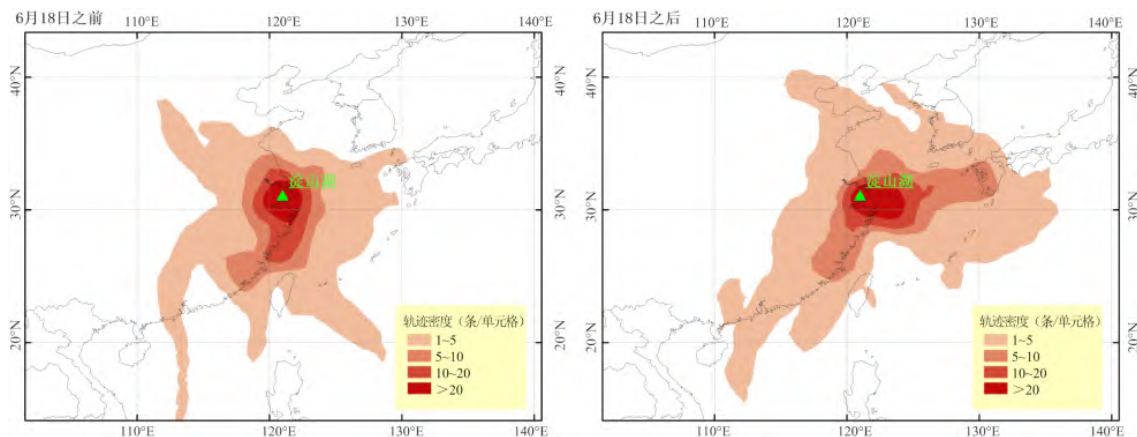


图 4 2021 年 6 月 18 日前后淀山湖站大气后向轨迹频数差异

Fig.4 The variations of back-trajectory frequencies at the Dianshanhu urban site before and after Jun 18<sup>th</sup>, 2021

携带的汞含量较低的气团到达哀牢山站,因此产生了持续数小时的高浓度污染事件<sup>[23]</sup>。

### 3 结论与展望

我国典型城市和偏远背景地区 GEM 浓度在加入《汞公约》后均出现不同程度的下降,但淀山湖站和哀牢山站 GEM 日变化趋势、主要源区和传输模式在履约前后未发生显著变化,周边工业地区的人为源排放仍然是上述点位 GEM 的主要影响因素。随着减污降碳协同增效,大气汞的重点排放行业将在履约过程中逐步实现汞排放的削减,我国典型城市和偏远背景地区的 GEM 仍将继续下降。值得注意

的是,我国不同地区城市群具有差异化的工业结构和居住模式,其大气汞来源和影响因素在空间分布上有较大的差异,因此在政策和科技的推动下,其减排潜力也有所不同。另一方面我国背景站点所处的气候带和季风区也有较大的差异,背景地区大气汞浓度受到远距离传输和本地环境过程如植被吸收或地表再释放等的双重影响,因此由于周边区域人为源排放的减少导致背景地区大气汞水平降低的程度也具有空间上的差异性。长期在这些城市/工业站点和背景站点开展大气汞监测及来源研究,可为履约成效评估提供有效的数据支撑。

### 参 考 文 献

- [1] Gustin M S, Amos H M, Huang J, et al. Measuring and modeling mercury in the atmosphere: A critical review [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(10): 5697-5713.
- [2] Saiz-Lopez A, Sitkiewicz S P, Roca-Sanjuán D, et al. Photoreduction of gaseous oxidized mercury changes global atmospheric mercury speciation, transport and deposition [J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 4796.
- [3] UNEP. Global mercury assessment 2013: Sources, emissions, releases and environmental transport [M]. Denmark: Narayana Press, 2013.
- [4] Fu X W, Zhang H, Yu B, et al. Observations of atmospheric mercury in China: A critical review [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(16): 9455-9476.
- [5] Lindberg S E, 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.
- [6] Wang X, Lin C J, Lu Z, et al. Enhanced accumulation and storage of mercury on subtropical evergreen forest floor: Implications on mercury budget in global forest ecosystems [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2016, 121(8): 2096-2109.
- [7] Liu K, Wu Q, Wang L, et al. Measure-specific effectiveness of air pollution control on China's atmospheric mercury concentration and deposition during 2013-2017 [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(15): 8938-8946.
- [8] Wen M, Wu Q, Li G, et al. Impact of ultra-low emission technology retrofit on the mercury emissions and cross-media transfer in coal-fired power plants [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 396: 122729.
- [9] An J Y, Huang Y W, Huang C, et al. Emission inventory of air pollutants and chemical speciation for specific anthropogenic sources based on local measurements in the Yangtze River Delta region, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, 21(3): 2003-2025.
- [10] Wang L, Wang S, Zhang L, et al. Source apportionment of atmospheric mercury pollution in China using the GEOS-Chem model [J]. *Environmental Pollution*, 2014, 190: 166-175.
- [11] Wang Z W, Chen Z S, Duan N, et al. Gaseous elemental mercury concentration in atmosphere at urban and remote sites in China [J]. *Journal Environmental Sciences*, 2007, 19(2): 176-180.
- [12] Nguyen D L, Kim J Y, Shim S G, et al. Ground and shipboard measurements of atmospheric gaseous elemental mercury over the Yellow Sea region during 2007-2008 [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(1): 253-260.
- [13] Friedli H R, Arellano 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.
- [14] 龚红颖,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.
- [15] 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.
- [16] Yu B, Wang X, Lin C J, et al. Characteristics and potential sources of atmospheric mercury at a subtropical near-coastal site in East China [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2015, 120(16): 8563-8574.
- [17] Fu X W, Yang X, Tan Q, et al. Isotopic composition of gaseous elemental mercury in the marine boundary layer of East China sea [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2018, 123(14): 7656-7669.
- [18] Duan L, Wang X, Wang D, et al. Atmospheric mercury speciation in Shanghai, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 578: 460-468.
- [19] 李舒,高伟,王书肖,等. 上海崇明地区大气分形态汞污染特征[J]. *环境科学*, 2016, 37(9): 3290-3299.

- [20] Qin X, Wang X, Shi Y, et al. Characteristics of atmospheric mercury in a suburban area of east China: Sources, formation mechanisms, and regional transport [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(9): 5923–5940.
- [21] Fu X W, Zhang H, Liu C, et al. Significant seasonal variations in isotopic composition of atmospheric total gaseous mercury at forest sites in China caused by vegetation and mercury sources [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(23): 13748–13756.
- [22] Wang X, Zhang H, Lin C J, et al. Transboundary transport and deposition of Hg emission from springtime biomass burning in the Indo-China peninsula [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2015, 120(18): 9758–9771.
- [23] Zhang H, Fu X W, Lin C J, et al. Monsoon-facilitated characteristics and transport of atmospheric mercury at a high-altitude background site in southwestern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16(20): 13131–13148.
- [24] Zhang H, Fu X W, Lin C J, et al. Observation and analysis of speciated atmospheric mercury in Shangri-La, Tibetan Plateau, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(2): 653–665.
- [25] Guo Y, Xiao L, Chen B, et al. Rapidly changing coal-related city-level atmospheric mercury emissions and their driving forces [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2021, 411: 125060.
- [26] 曹晓满, 刘亚文, 张军梅, 等. 超低排放燃煤电厂污染控制设备协同脱汞研究进展 [J]. *洁净煤技术*, 2021, 27(5): 98–105.
- [27] 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): 4205–4512.
- [28] Zhu W, Fu X, Zhang H, et al. Mercury Isotope Fractionation during the Exchange of Hg(0) between the atmosphere and land surfaces: Implications for Hg(0) exchange processes and controls [J]. *Environmental Science & Technology*, 2021, 56(2): 1445–1457.
- [29] Xu L, Chen J, Yang L, et al. Characteristics and sources of atmospheric mercury speciation in a coastal city, Xiamen, China [J]. *Chemosphere*, 2015, 119: 530–539.
- [30] Yuan W, Wang X, Lin C J, et al. Quantification of atmospheric mercury deposition to and legacy re-emission from a subtropical forest floor by mercury isotopes [J]. *Environmental Science & Technology*, 2021, 55(18): 12352–12361.

## Variations of Concentrations and Potential Source Areas of Gaseous Elemental Mercury at Typical Urban and Remote Sites in China Following the Implementation of Minamata Convention

LIN Jian<sup>1,2</sup>, LIU Yan<sup>2</sup>, LI Xiaoxiu<sup>1</sup>, YU Ben<sup>2</sup>, ZHANG Chao<sup>3</sup>, ZHANG Lifei<sup>2</sup>

(1. College of Resource Environment and Tourism, Capital Normal University, Beijing 100048, China;

2. National Research Center for Environmental Analysis and Measurement, Beijing 100029, China;

3. Lumex Instruments, Beijing 100086, China)

**Abstract:** To obtain the latest gaseous elemental mercury (GEM) levels at urban and remote sites in China, and to compare the variations of sources and transports of GEM at those sites after the implementation of Minamata Convention, monitoring of GEM was conducted respectively at an urban site and a remote site in China for one month in 2021. Potential Source Contribution Function analysis was applied for identifying source areas and transports, and the results were compared to those before the convention implementation. The decrease of GEM level at the Dianshanhu urban site was larger than that at the Ailaoshan remote site, suggesting the effectiveness of ultra-low emission technology for convention implementation. The insignificant changes of potential source areas and transports of GEM at both sites indicated that anthropogenic emissions remained the most important impactor. These results imply that GEM in Chinese urban or remote areas can decrease with the gradual progress of the convention implementation, and long-term monitoring of atmospheric Hg in those areas can provide data support for the effectiveness evaluation of the Minamata Convention implementation.

**Key words:** gaseous elemental mercury; Yangtze River Delta; southwestern China; ultra-low emission