

金矿区冬季环境气态汞分布特征研究

杨春雨^{1,2}, 张 刚^{2,3*}, 王 艺², 王 宁^{2,3}, 袁 星², 杨松滔²

(1.吉林东北煤炭工业环保研究有限公司, 长春 130062; 2.东北师范大学城市与环境科学学院, 长春 130024; 3.国家环境保护湿地生态与植被恢复重点实验室, 长春 130024)

摘 要:为掌握冬季季节性积雪条件室内环境空气和室外大气的汞浓度水平与变化特征及汞源,在夹皮沟金矿区内设置了4处采样点,使用汞分析仪(Zeeman RA915⁺)连续测定了气态汞浓度,同步测定了气压、气温和风速等气象因子,研究室内外气态汞浓度分布特征,并分析主要气态汞源和释汞过程。结果表明:春秋宾馆、宾馆室外、开阔农田和沟谷林地4处采样点研究期间气态汞浓度均值依次为106.8、6.1、5.8、1.8 ng·m⁻³;室内气态汞浓度水平比室外高两个数量级。冬季季节性积雪控制下,自然释汞过程微弱,人为释汞控制气态汞浓度水平和变化趋势,是大气汞主要来源。冬季逆温等气象过程严重影响区域大气汞扩散,从而引起局部短暂的严重汞污染现象。

关键词:汞;金矿区;寒区;积雪;农田

中图分类号:X169 **文献标志码:**A **文章编号:**1672-2043(2013)03-0607-05 **doi:**10.11654/jaes.2013.03.029

The Distribution Characteristics of Gaseous Mercury in Gold Mine Area During the Period of Winter

YANG Chun-yu^{1,2}, ZHANG Gang^{2,3*}, WANG Yi², WANG Ning^{2,3}, YUAN Xing², YANG Song-tao²

(1.Jilin Northeast Coal Industry Environmental Protection Research Co., Ltd. Changchun 130062, China; 2.Northeast Normal University, School of Urban and Environmental Sciences, Changchun 130024, China; 3.State Key Lab for Environmental Protection, Wetland Ecology and Vegetation Restoration, Changchun 130024, China)

Abstract: In order to grasp the concentration levels and the variation characteristics of air mercury indoors and outdoors under the condition of seasonal snow cover in winter, four sampling sites in Jiapigou gold mine area have been set and the concentration level of gaseous mercury have been monitored continuously by Zeeman RA915⁺ as well as air pressure, temperature and wind velocity simultaneously. The distribution characteristics of the gaseous mercury indoors were explored and its major sources as well as releasing process came into the focus of the analysis. The result is represented that the concentration levels (based on the height of 150 cm from the ground) are 106.8 ng·m⁻³, 6.1 ng·m⁻³, 5.8 ng·m⁻³ and 1.8 ng·m⁻³ in the four sampling sites of Spring and Autumn Hotel, outdoor Hotel, spacious cornfield and woods. Furthermore, it is shown that the concentration level of gaseous mercury indoors is 2 orders higher than that of the outdoors. In addition, during the winter seasonal snow cover period, the natural releasing process of gaseous mercury is weaker while it is the releasing process impacted by human contributing to the distinct changes in concentration as well as variation trend of gaseous mercury that converses to be the major source. Overall, the temperature inversion severely results in the proliferation of the gaseous mercury, which can be designated as the cause for the serious mercury pollution partially in time and space.

Keywords: mercury; gold mine area; high-cold area; snow cover; field

汞是全球性污染物^[1-2],汞在大气中主要以 Hg⁰ 形

态存在,占大气总汞的90%以上^[3-4],它在大气中的滞留时间为0.5~2 a。大气在作为重要的汞库的同时也是汞进行迁移的重要通道。据美国环保署估算,大约有50%~70%的人为汞排放来源于化石燃料的燃烧,其中50%以上来自中国、印度及其他亚洲国家^[4-5]。我国是世界上最大的汞排放源地区,有研究^[6]显示,约有1/3全球总汞排放量来自于中国人为排放。我国人为

收稿日期:2013-01-10

基金项目:国家自然科学基金项目(40673059);中央高校基本科研业务费专项资金资助(09QNJ024);吉林省科技厅青年基金项目资助(2009114)

作者简介:杨春雨(1983—),女,吉林人,博士研究生,工程师,主要从事环境影响评价和汞环境地球化学研究。

*通信作者:张 刚 E-mail:zhangg217@nenu.edu.cn

汞排放高的主要原因是中国位于世界第一煤炭消费大国,而且煤炭平均汞含量($0.15\sim 0.20\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$)高于世界平均含量 $0.13\ \mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ^[6-8]。此外,偏远地区生物质燃料释汞也是重要原因,且上述汞污染排放控制能力较弱。目前,国内已经开展的大气汞污染研究主要集中在大气汞形态分布及测定方法,汞排放源清单的建立及排放因子估算,以及局部受污染地区或某些城市区域汞的形态分析及浓度分布等研究^[9]。万奇等报道了长白山地区大气气态总汞含量季节性特征^[10],王起超研究了长春市汞界面交换通量并估算了区域汞收支平衡^[11],张刚等研究了松花江上游夹皮沟金矿暖季大气汞时空分布^[12],而我国北方偏远乡村冬季大气汞时空分布特征方面则鲜有报道。本文研究了夹皮沟金矿区冬季气态汞浓度分布特征,以期对矿区重金属汞迁移和转化等研究提供参考。

1 材料与方法

1.1 区域概况

夹皮沟金矿区($127^{\circ}15'\sim 127^{\circ}30'\text{E}$, $42^{\circ}41'\sim 43^{\circ}00'\text{N}$)地处长白山西北部,为典型低山丘陵区,地势起伏,沟谷纵横。矿区内林地资源和矿产资源丰富,多混交林,耕地多为坡田。研究区域地处中温带大陆性季风气候区,四季分明,冬季气候严寒,气温年、日较差大。年均温 $1.9\sim 4.4\ ^{\circ}\text{C}$,年降雨量 $650\sim 850\ \text{mm}$;年均风速 $2.2\ \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。夹皮沟金矿带长 $50\ \text{km}$,宽 $1\sim 3\ \text{km}$,1821年起金矿正式土法采金,1940—2008年金矿区盛行混汞

法提金工艺,混汞法提金汞用量约 $20\ \text{kg}\cdot\text{a}^{-1}$,其中 $50\%\sim 60\%$ 通过点源和非点源途径进入水、土壤和大气^[12]。

1.2 采样及测定方法

2011年12月13日至17日,在夹皮沟金矿区内老金厂(现夹皮沟镇政府),选择镇内春秋宾馆($127^{\circ}21.227'\text{E}$, $42^{\circ}54.378'\text{N}$, $340.5\ \text{m}$)、宾馆室外($127^{\circ}21.227'\text{E}$, $42^{\circ}54.378'\text{N}$, $340.5\ \text{m}$)、开阔农田($127^{\circ}20.995'\text{E}$, $42^{\circ}54.435'\text{N}$, $333.0\ \text{m}$)和沟谷林地($127^{\circ}21.229'\text{E}$, $42^{\circ}54.662'\text{N}$, $345.2\ \text{m}$)作为采样点(图1),在各样点内接近地面垂向 0 、 50 、 100 、 $150\ \text{cm}$ 4个层次连续测定气汞浓度,同步监测气压、气温和风速等气象因子。采用塞曼效应汞分析仪(LUMEX Zeeman RA915⁺),分辨率 $1\ \text{s}$,检出限 $1\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$,本研究按 $10\ \text{s}$ 均值方式连续监测记录数据。气象因子使用气象综合观测仪(DZM2-1型)同步监测。用 GARMIN:GPS76记录地理信息。

2 结果与讨论

2.1 各样点气态汞浓度分布特征

春秋宾馆、宾馆室外、开阔农田和沟谷林地4处气态汞浓度均值(按高度 $150\ \text{cm}$ 计)依次为 106.8 、 6.1 、 5.8 、 $1.8\ \text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$,见表1,表明矿区冬季环境气态汞浓度室内比室外高2个数量级。已有研究表明,夏季区内室外大气汞浓度比室内高2~3个数量级^[12],二者相异初步说明区内冷暖两季气态汞来源不同。

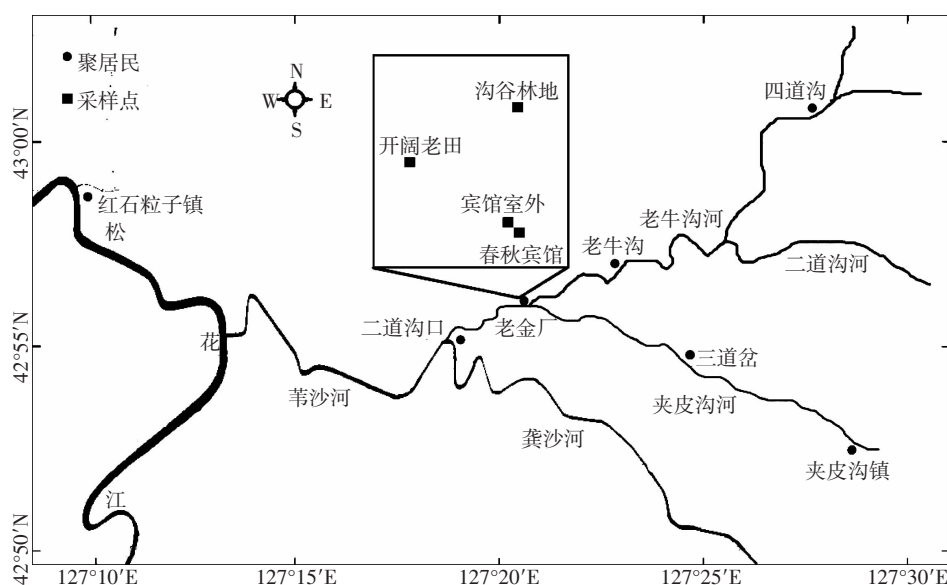


图1 研究区域地理位置及采样点分布

Figure 1 Location of research area and distribution of all sampling sites

在垂直方向上,因气态汞密度高于环境空气,故在垂向上汞有近地面分布特征,仅在沟谷林地此类避风凹处有上述垂向特征。另据各监测点现状,宾馆室内有火炕作为采暖,空气对流作用显著;宾馆室外为居住密集区,房屋排气筒烟气下洗干扰作用明显;开阔农田地表覆积雪,风速大,大气稀释扩散能力强(表2)。推测上述原因是除沟谷林地外,气态汞垂向逆态分布特征的主要原因。在水平分布上,宾馆室外和开阔农田两处大气汞浓度水平接近,但明显高于沟谷林地,推测其原因是各样点距源远近、地形地表条件差异及各类气象因子综合作用相异所致。综上可初步断定,冬季区域内人为释汞过程为大气汞主要来源。

表 1 典型室内空间环境空气汞含量统计

Table 1 Statistics of ambient air mercury concentration in typical indoor space

采样点分组	采样层次	汞含量/ng·m ⁻³		
		最小值	最大值	均值
春秋宾馆	150 cm	72	138	106.8
	100 cm	89	142	110.5
	50 cm	79	149	111.3
	0 cm	63	180	108.8
宾馆室外	150 cm	1	11	6.1
	100 cm	4	11	7.0
	50 cm	4	9	5.1
	0 cm	6	16	8.6
开阔农田	150 cm	2	19	5.7
	100 cm	2	17	5.6
	50 cm	2	12	4.8
	0 cm	1	9	3.6
沟谷林地	150 cm	1	4	1.8
	100 cm	1	5	1.9
	50 cm	1	4	1.9
	0 cm	2	6	2.8

研究表明,化石燃料燃烧是重要人为汞源^[8,14],据王起超等^[11]研究结果,长春市年耗煤量 707.6×10⁴ t,煤中含汞量 626.8 kg,其中排入大气中汞 425.6 kg·a⁻¹;

另有研究表明,吉林省偏远乡村地区大气汞浓度最低值一般在 1~2 ng·m⁻³ 水平^[13],长白山地区大气汞含量年均值(3.22±1.78)ng·m⁻³^[10]。上述研究表明,聚居区内人为源释汞作用显著。本区内人们冬季室内采暖混用煤与薪材,且一般以从附近山坡上收集而来枯枝和倒木为主。在春秋宾馆内,分别测定火炕燃烧室内明火燃烧和灰烬两种状况下环境空气汞浓度,最大值分别为 208、435 ng·m⁻³;而在宾馆室外,距离排气筒下风向 10 m 处,气态汞浓度可达 35 ng·m⁻³。研究区域内,冬季 11 月份至次年 3 月份,地表覆季节性积雪,天气严寒,暖季时土壤、水体和植被等自然释汞源此时释汞作用微弱,但人为源即各类燃料燃烧释汞却已成为大气汞的主要源。

2.2 各采点环境空气汞浓度日变化特征曲线

统计各样点内 0、50、100 和 150 cm 4 个层次环境空气汞的连续监测数据,见图 2。春秋宾馆和宾馆室外两处采样点均位于聚居区内,由图 2a 和图 2b,环境空气汞浓度高值区大致位于 6:00—7:00、12:00—13:00 和 17:00—18:00 3 个时段,与当地人们日常生活起居一致。以春秋宾馆为代表,冬季北方农村房屋为防寒,均采取密封门窗方式进行保暖,在封闭的室内,环境空气汞浓度变化过程受源影响显著,由图 2a,两个高值区时段分别对应使用薪材烧炕采暖,且采暖时段内,0 cm 层次气态汞浓度明显高于其他层次。与此对应的是,在采暖时段外,0 m 层次气态汞浓度则明显低于其他层次,表明冬季室内环境空气汞源主要是燃料燃烧过程。

开阔农田和沟谷林地两样点距居住区较远,大气汞浓度高值区一般分布在当天清晨阶段(即 7:00 前后),分析原因发现,研究区域属低山丘陵地带,冬春季节易发生逆温,逆温层结致大气污染物不易扩散,这种不利气象条件直至日出后方逐步消失,从而使近地面大气边界层稀释能力恢复,大气汞浓度水平始呈现为明显下降趋势,见图 2c 和图 2d。同时,发生逆温期间,研究区域内大气汞浓度水平已与重庆市主城区

表 2 同步气象因子统计

Table 2 Meteorology factors in every layer from 0 cm to 150 cm in all the sampling points

监测点	0 cm		50 cm	100 cm	150 cm	
	气压/hPa	T/℃	T/℃	T/℃	风速/m·s ⁻¹	T/℃
春秋宾馆	946.0~988.5	15.2~17.2	14.6~19.0	15.2~19.8	—	15.6~20.6
宾馆室外	975.5~978.0	-6.3~-19.8	-6.0~-9.0	-6.6~-19.2	0~3	-8.2~-20.0
开阔农田	974.0~990.0	-8.0~-20.0	-8.8~-20.6	-7.4~-20.2	0~8	-6.2~-20.4
沟谷林地	977.5~990.0	-8.2~-20.2	-7.8~-20.6	-8~-20.6	0~5	-7.2~-20.2

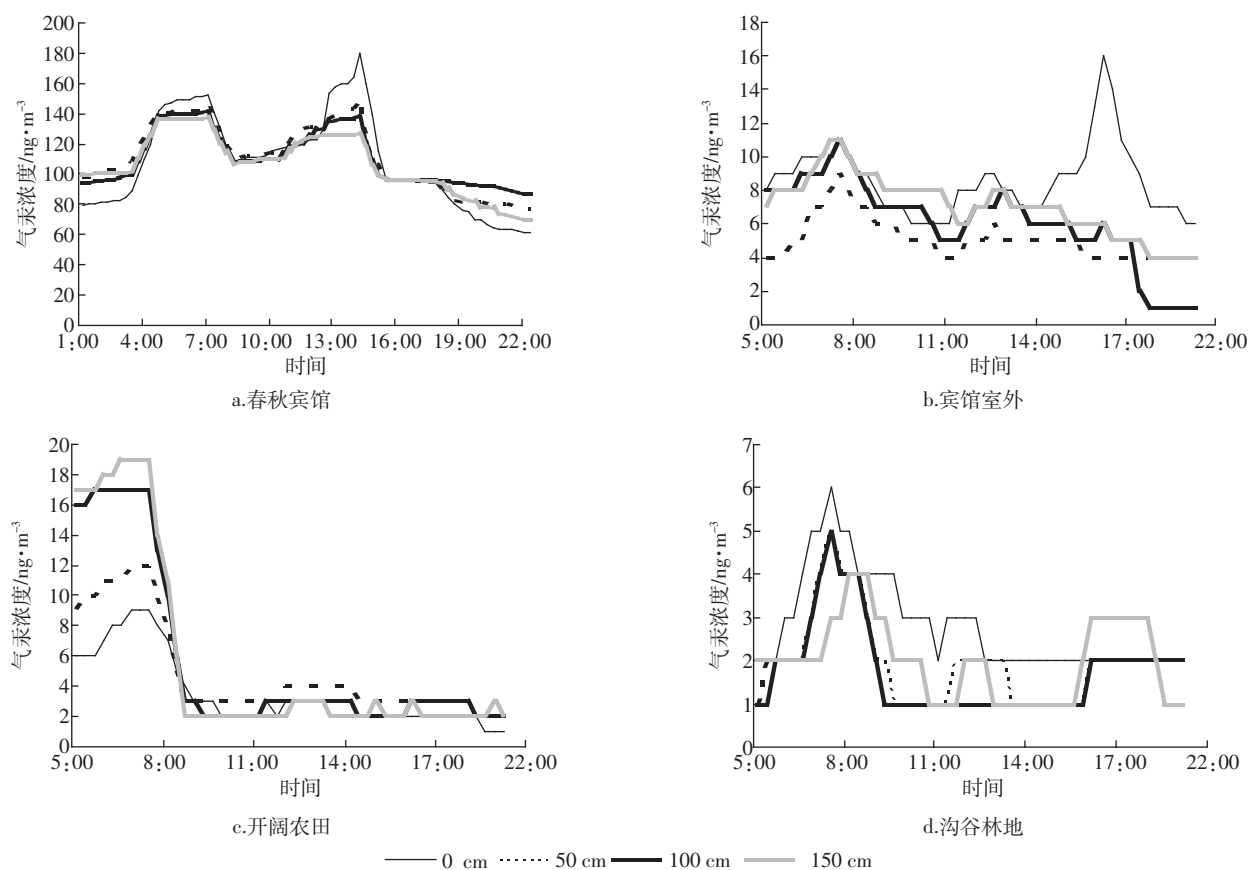


图2 各采样点环境空气汞浓度日变化曲线

Figure 2 Diurnal variation curve of ambient air mercury concentration in all samples sites

大气汞含量均值(6.45 ± 0.03) $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$ 和厦门地区大气汞含量均值 $11.037 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ [13,15]相当,而逆温消失后,大气汞浓度水平则趋于北半球大气汞浓度背景值 $1.5 \sim 2 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$ [4]。可见,在偏远乡村地区,诸如逆温等不利气象条件严重影响区域大气汞浓度水平及迁移过程。

3 结论

(1)研究区域所置春秋宾馆、宾馆室外、开阔农田和沟谷林地4处采样点研究期间气态汞浓度均值(按高度150 cm计)依次为106.8、6.1、5.8、1.8 $\text{ng} \cdot \text{m}^{-3}$;且在冬季室内环境空气汞浓度水平比室外高两个数量级。

(2)在冬季季节性积雪条件控制下,自然释汞过程微弱,人为释汞过程已成为大气汞重要贡献源,明显影响气态汞水平和变化趋势。

(3)北方农村地区冬季易发生的逆温等不利气象过程严重影响区域大气汞扩散,从而可造成局部短时间内较为严重的大气汞污染现象。

参考文献:

[1] Jaffea D, Prestbob E, Swartzendruber P, et al. Export of atmospheric

mercury from Asia[J]. *Atmospheric Environment*, 2005, 39:3029–3038.

[2] Seigneur C, Vijayaraghavan K, Lohman K. Modeling the atmospheric fate and transport of mercury over North America: Power plant emission scenarios[J]. *Fuel Processing Technology*, 2004, 85:441–450.

[3] Li P, Feng X B, Qiu G L, et al. Mercury pollution in Asia: A review of the contaminated sites[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, 168(2–3): 591–601.

[4] Lindqvist O. Special issue of first international on mercury as a global pollutant[J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 1991, 56:1–8.

[5] Wilson S J, Steenhuisen F, Pacyna J M. Mapping the spatial distribution of global anthropogenic mercury atmospheric emission inventories[J]. *Atmospheric Environment*, 2006, 40:4621–4632.

[6] Wu Y, Wang S X, Streets D G, et al. Trends in anthropogenic mercury emissions in China from 1995 to 2003[J]. *Environmental Science and Technology*, 2006, 40(17):5312–5318.

[7] Streets D G, Hao J M, Wu Y, et al. Anthropogenic mercury emissions in China[J]. *Atmospheric Environment*, 2005, 39(40):7789–7806.

[8] 方凤满,王超起,郝庆菊. 大气汞的来源、形态及环境过程研究现状[J]. *环境导报*, 2001(2):18–21.

FANG Feng-man, WANG Qi-chao, HAO QING-ju, et al. Atmospheric mercury—An overview of its sources, specification, and environmental process[J]. *Environment Herald*, 2001(2):18–21.

[9] 朱云,王书肖,Chen Lin,等. 大气汞污染模拟研究进展及控制策

- 略优化方法[J]. 环境科学, 2011, 32(6):1851-1856.
- ZHU Yun, WANG Shu-xiao, CheJen Lin, et al. Development and optimization of mercury emission control strategies using advanced modeling approaches[J]. *Environmental Science*, 2011, 32(6):1851-1856.
- [10] 万 奇, 冯新斌, 郑 伟, 等. 长白山地区大气气态总汞含量的季节性特征研究[J]. 环境科学, 2008, 29(2):296-298.
- WAN Qi, FENG Xin-bin, ZHENG Wei, et al. Seasonal variation of total gaseous mercury in Changbai Mountain Area[J]. *Environmental Science*, 2008, 29(2):296-298.
- [11] 王起超, 方凤满, 李志博. 长春市汞界面交换通量的研究[J]. 中国环境科学, 2005, 25(4):475-479.
- WANG Qi-chao, FANG Feng-man, LI Zhi-bo. Exchange flux of mercury on the interface exchange in Changchun City [J]. *China Environmental Science*, 2005, 25(4):475-479.
- [12] 张 刚, 王 宁, 王 媛, 等. 松花江上游夹皮沟金矿土壤与大气汞污染特征[J]. 环境科学, 2012, 33(9):2953-2959.
- ZHANG Gang, WANG Ning, WANG Yuan, et al. Characteristics of mercury pollution in soil and atmosphere in Songhua River Upstream Jia-pi-gou Gold Mining Area[J]. *Environment Science*, 2012, 33(9):2953-2959.
- [13] 张 刚, 王 宁, 盛连喜, 等. 吉林省自东向西城乡连续空间大气汞分布特征研究[J]. 东北师大学报(自然科学版), 2012, 44(3):130-135.
- ZHANG Gang, WANG Ning, SHENG Lian-xi, et al. The spatial distribution characteristics of atmospheric mercury in the continuous space of city and countryside from east to west in Jilin province[J]. *Journal of Northeast Normal University (Natural Science Edition)*, 2012, 44(3):130-135.
- [14] 刘文霞, 李 博, 吴明作, 等. 燃煤烟气对土壤-小麦系统中汞累积及分布的影响[J]. 农业环境科学学报, 2012, 31(1):30-35.
- LIU Wen-xia, LI Bo, WU Ming-zuo, et al. The influence of coal-fired flue gas on accumulation and distribution of mercury in soil-wheat system[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2012, 31(1):30-35.
- [15] 满洪喆, 杨永奎, 王定勇. 重庆市主城区大气汞调查研究[J]. 西南大学学报(自然科学版), 2009, 31(9):131-137.
- MAN Hong-zhe, YANG Yong-kui, WANG Ding-yong. Investigation of atmospheric mercury in the main urban area of Chongqing[J]. *Journal of Southwest University(Natural Science Edition)*, 2009, 31(9):131-137.