

贵阳市大气降水中汞的分布特征^{*}

刘娜¹ 仇广乐^{1*} 冯新斌¹ LANDISM^{Matthew} 付学吾¹ 商立海¹

¹中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002 ²Office of Research and Development USEPA Research Triangle Park NC 27709 USA

摘要 于2008年7—9月对贵阳市中心城区采集的21个大气降水进行了总汞、甲基汞及阴、阳离子浓度的测定,分析了大气降水中总汞与阴阳离子间的相互关系。结果表明:大气降水中总汞的平均含量为 $18 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,变化范围为 $0.4 \sim 57.4 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$;甲基汞的平均含量为 $0.07 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,变化范围为 $0.02 \sim 0.2 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。大气降水中的阴离子以 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 为主,其浓度平均值分别为 151 和 $145 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$;阳离子主要以 Ca^{2+} 为主,平均浓度达到了 $123 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$,变化范围为 $3.7 \sim 560 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$,其次是 NH_4^+ 和 Mg^{2+} ,其浓度平均值分别为 52.2 和 $20.4 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 。通过分析降水中总汞和阴阳离子之间的相互关系,发现总汞和阴离子 SO_4^{2-} 具有显著的相关性,与F有一定的相关性,而与 NO_3^- 不具有相关性。由此初步判定,大气降水中的总汞主要来源于燃煤等人为释放源。

关键词 大气降水;总汞;甲基汞;阴阳离子

中图分类号 S963 文献标识码 A 文章编号 1000-4890(2011)5-933-06

Distribution characteristics of mercury in precipitation of Guiyang, China. LIU Na, QIU Guangle^{*}, FENG Xinbin, LANDISM^{Matthew}, FU Xuewu, SHANG Lihai (¹State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China; ²Office of Research and Development USEPA, Research Triangle Park, NC 27709, USA). Chinese Journal of Ecology 2011, 30(5): 933-938

Abstract A study of the daily event precipitation in Guiyang was taken between July and September 2008. The average concentration of total Hg (THG) in daily event precipitation was $18 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ with a range from 0.4 to $57.4 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; the average concentration of methyl Hg (MeHg) in daily event precipitation was $0.07 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, with a range from 0.02 to $0.2 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$. The main inorganic ions were SO_4^{2-} , NO_3^- , Ca^{2+} , NH_4^+ , and Mg^{2+} . The average concentrations of SO_4^{2-} and NO_3^- were $151 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ and $145 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$, respectively. The average concentration of Ca^{2+} was $123 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ with a range from $3.7 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ to $560 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$. The average concentrations of NH_4^+ and Mg^{2+} were $52.2 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ and $20.4 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$, respectively. According to the relationships between the concentrations of THG and inorganic ions, we identified that the possible sources were fossil fuels burning.

Key words precipitation; total mercury; methyl mercury; chemical composition

汞是一种人体非必需的有毒重金属元素,是唯一以气态形式存在大气中参与大气循环的全球性金属污染物。大气汞的沉降与全球汞生物地球化学循环演化存在着重要的联系。大气汞主要分为原子气态汞(Hg^0)、活性气态汞(RGM)和颗粒态汞($\text{Hg}(\text{P})$)(Schroeder & Munthe 1998; Lu & Schroeder

2004), 3种不同形态的汞在一定条件下可以互相转化。大气汞的来源主要包括自然源和人为源。自然源(土壤表面的释放、自然水体的排放、植物表面的蒸腾作用、地热活动等)主要排放 Hg^0 (Stein et al, 1996)。人为源(燃煤、化石燃料燃烧、水泥生产、氯碱制造、以及金属冶炼与加工等)排放的汞包含了以上3种形态(Hg^0 : 53%、RGM: 37%、 $\text{Hg}(\text{P})$: 10%),约占全球汞排放量的30%~50%(Pacyna & Pacyna 2002; Wu et al, 2006; Pacyna et al, 2006)。

*国家自然科学基金项目(40773067)资助。

*通讯作者 E-mail: qiuguangle@vip.sj.cn

收稿日期: 2010-10-12; 接受日期: 2011-02-21

大气汞进入地表生态系统的主要途径包括干沉降和湿沉降 2 种, 而大气降水是去除大气中汞的重要过程, 大气降水中汞的含量分布也能表明大气中汞的污染程度。

目前, 不少国外学者通过分析大气降水来判断大气中汞的污染来源 (Dvonch et al., 1998, 1999; Manopoulos et al., 2007), 而国内对大气降水中汞的研究多局限于汞的形态分布方面 (刘俊华等, 2000; 郭艳娜等, 2008), 对降水中汞来源的研究非常少。本研究拟对贵阳市大气降水中的汞含量进行研究, 结合降水中不同阴阳离子含量特征的分析, 初步判断了贵阳市大气降水中汞的来源。

1 采样与分析方法

1.1 样品采集

采样点位于贵阳市南明区西南部青云路 ($106^{\circ}43'3''E$ $26^{\circ}33'56''N$), 采样装置设在楼顶部。

大气降水的采样装置主要包括两部分: 一部分是用来采集测定雨水中汞含量的降雨, 漏斗 (3 L) 和过滤器均是硼硅玻璃材料, 在野外采样前通过高温 ($500^{\circ}C$) 净化, 采样瓶是容积为 1 L 的聚四氟乙烯材料; 另一部分是用来采集测定雨水中阴阳离子, 漏斗 (2.5 L) 和采样瓶 (1 L) 均是聚乙烯材料, 过滤器是硼硅玻璃材料。过滤器和采样瓶放置在圆柱形的 PVC 桶内, 避免太阳辐射使雨水中汞发生形态的转化 (Sellers et al., 1996)。采样装置距地面的垂直距离为 1.5 m。24 采集雨水 1 次, 没有降雨时用保鲜袋封口, 避免干沉降对采集雨水的影响。

采集大气降水样品时, 每个样品量需达到 5 mL 以上, 以保证降水中总汞和微量元素的测定。样品采集后, 用于测定雨水中总汞的样品需加 0.4% (v/v) 的超纯盐酸, 用双层保险袋密封, 并在 $1^{\circ}C \sim 4^{\circ}C$ 条件下避光保存, 28 d 内测定, 避免汞的损失和形态转化; 用于测定微量元素含量的样品需加 0.2% (v/v) 的超纯硝酸, 用双层保险袋密封, 低温避光条件下保存。

1.2 样品分析

样品中的总汞含量采用美国 EPA 的标准方法: 用 Br_2 氧化 - $SnCl_2$ 还原金管富集冷原子荧光结合法测定 (USEPA 1999; 闫海鱼等, 2003); 甲基汞用蒸馏乙基化结合 GC-CVAFS 法测定 (蒋红梅等, 2004)。样品中阴、阳离子 (包括: SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 F^- 、 NO_2^- 、 Br^- 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 Na^+ 、 Li^+) 的测定是在美

国 EPA-NERI 实验室完成 (USEPA 1998)。

1.3 质量控制

样品的试验质量控制主要从以下几方面进行:

空白: 用方法空白、试验器皿空白、野外空白 (控制在样品浓度的 10% 以内) 来控制环境样品中汞形态分析质量。准确度: 总汞和甲基汞均以加标回收率来确保分析的准确性, 其加标回收率分别为 102% 和 83% ~ 105%。精确度: 所有样品按 10% 的比例插入平行样, 验证结果的精确性。平行样的相对标准偏差均小于 12%。样品中阴、阳离子的测定重现性误差范围分别为 $\pm 2.1\%$ 和 $\pm 2.3\%$ 。

1.4 数据处理

本文采用 Origin 8.0 进行数据分析, 利用 Grapher V8.0 作图软件进行作图, 并利用 SPSS 17.0 进行数据的相关性分析。

2 结果与分析

2.1 大气降水中汞的含量分布特征

2008 年 7—9 月, 共采集分析了 21 个雨水样品。雨水中的总汞含量平均为 $18 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 含量变化范围为 $0.4 \sim 57.4 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 甲基汞含量平均为 $0.07 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 含量变化范围为 $0.02 \sim 0.2 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。总汞含量变化比较大, 甲基汞与总汞的变化趋势相似。样品量最少时的降雨量为 5.0 mm, 最大降雨量 61 mm, 采样期间平均降雨量为 24 mm, 雨水的 pH 值最小值为 4.0 (表 1), 低于近年贵阳地区全年降水平均值 (4.53) (韩贵琳和刘丛强, 2005)。目前贵阳市雨水仍存在酸雨现象, 酸雨约占降雨总数的 1/3。

郑伟 (2007) 对贵阳市 2004 年 8 月 (非采暖期) 以及 12 月 (采暖期) 的雨水进行分析, 总汞含量分别为 50 和 $128 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 贵州乌江流域的降水, 其降雨中总汞浓度的年平均值为 $49 \pm 35 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 甲基汞含量的平均在 $0.04 \sim 0.81 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ (郭艳娜, 2008); 而万奇 (2007) 和付学吾 (2008) 分别在我国的背景区长白山、贡嘎山的研究结果显示, 大气降水中总汞含量在 $10 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 左右。国外城区大气降水中总汞含量在 $10 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下, 远低于贵阳市大气降水中总汞的含量 (Lai et al., 2007; Prestbo & Gay 2009; Sanei et al., 2010); 而甲基汞含量平均在 $0.01 \sim 0.48 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 与本研究结果相近, 说明贵阳市大气受到一定程度的汞污染, 这与贵州高汞背景的煤作为工业能源有关 (Feng & Hong 1999; Feng et al., 2002, 2003, 2004)。

表 1 贵阳市大气降水中汞的含量分布
Table 1 Mercury concentration in Precipitation of the samples in Guiyang

日期	雨量 (mm)	pH	THg (ng·L ⁻¹)	MtHg (ng·L ⁻¹)
7-16	22.4	6.3	3.4	0.20
7-22	53.3	5.8	4.7	0.10
7-23	25.3	4.1	0.4	0.03
7-29	20.2	6.9	11.9	—
7-31	22.7	5.2	36.4	0.11
8-2	23.3	—	9.6	—
8-4	8.4	4.0	23.8	0.14
8-7	6.2	7.2	31.8	0.07
8-9	9.3	7.0	19.1	0.03
8-10	6.0	6.7	12.8	0.04
8-13	5.5	5.6	25.8	0.08
8-14	8.0	7.0	16.0	0.04
8-16	58.3	4.6	5.2	—
8-17	28.5	4.4	8.4	0.03
8-20	59.0	5.0	23.8	0.08
8-26	7.5	5.6	19.6	0.03
8-27	30.6	5.9	12.6	0.02
8-28	58.3	4.5	17.4	0.03
9-3	60.8	4.6	8.3	0.03
9-4	5.0	5.9	29.1	0.20
9-13	5.0	5.9	57.4	0.10
范围	5.0~60.8	4.0~7.2	0.4~57.4	0.02~0.2
平均值	24	—	18	0.07

“—”表示未测出。

与郑伟 (2007)的研究结果相比,本研究大气降水中汞含量较低,可能的原因有以下几点:(1)采样时间上,本工作中采样频率为 24 h 而在其他研究中,采样频率均为 30 d;(2)采样点的选择上,本研究是选择具有市区代表性的固定点,郑伟则是按照不同功能区的划分进行采样,不同采样点受污染源的释放影响不同,可能会导致雨水中汞含量有较大差异;(3)样品存放处理上,本研究是在 24 h 内采集样品并及时加 0.5%的超纯盐酸,密封冷藏,并在 14 d 内分析测定,在其他研究中因为采样周期较长,提前在采样瓶中加入适量的超纯盐酸,置于野外,直至采集样品结束。长时间的降水采集过程中,大气干沉降的影响以及野外条件的影响可能是造成降水中总汞含量的偏高的原因。

通过对贵阳市雨水中总汞、甲基汞含量和降雨量的正态分布检验和相关性分析,发现三者均服从正态分布,并且总汞、甲基汞含量与降雨量之间存在负相关关系(图 1)。总汞浓度与降雨量的 Pearson 相关系数 $r = -0.45$ ($P = 0.001$, $n = 21$),甲基汞含量与降雨量的 Pearson 相关系数 $r = -0.28$ ($P =$

0.001 ,

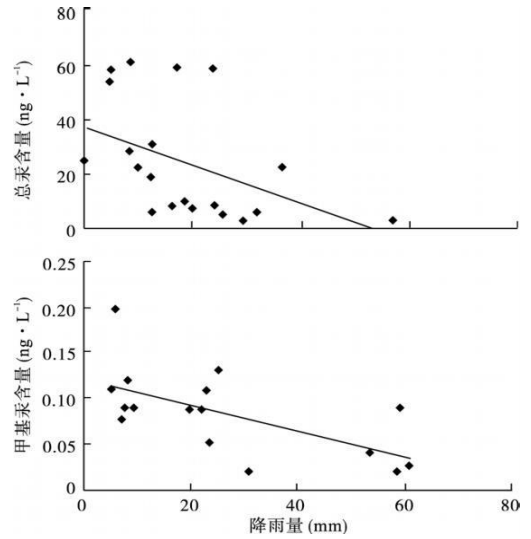


图 1 降雨量与总汞、甲基汞含量之间的关系

Fig 1 Relationships between precipitation amount and concentration of THg and MtHg

$n = 21$)。当降雨量增加时,雨水中的总汞含量比较低,当降雨量较小时 (< 10 mm),雨水中总汞含量相对较高。汞含量较高的样品所对应的降水量都较低,而降水量在 40 mm 以上的样品,其总汞含量都较低,这可能是因为雨水量的增加稀释了雨水中汞的浓度 (Mason et al., 1997; Hall et al., 2005)。

2.2 大气降水中阴、阳离子含量分布特征

由表 3 可见,贵阳市雨水中阴离子以 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 为主,其浓度平均值分别为 151 和 145 $mol \cdot L^{-1}$,变化范围分别为 $48 \sim 613$ 和 $1.5 \sim 922$ $mol \cdot L^{-1}$;其次是 Cl^- 、 F^- 及 NO_2^- ,浓度平均值分别为 17.6 、 23.4 和 7.2 $mol \cdot L^{-1}$; Br^- 含量最低。雨水中阳离子主要以 Ca^{2+} 为主,平均含量达到了 123 $mol \cdot L^{-1}$,

表 2 贵阳市大气降水中阴、阳离子的含量分布特征 ($mol \cdot L^{-1}$)

Table 2 Ions concentration in Precipitation of the samples in Guiyang

离子	最小值	最大值	平均值	标准偏差
SO_4^{2-}	48	613	151	142
NO_3^-	1.5	922	145	242
Cl^-	3.4	73.5	17.6	20.5
F^-	3.4	145	23.4	35.2
NO_2^-	0.7	112	7.2	23.8
Ca^{2+}	3.7	560	123	154
NH_4^+	0.1	361	52.2	73.3
Mg^{2+}	0.2	72.5	20.4	20.0
K^+	1.7	49.3	8.2	10.7
Na^+	0.1	42.4	6.0	10.9

$n = 21$ 。

表 3 大气降水中各离子的相关系数
Table 3 Coefficients among the major ions in Precipitation

离子	F ⁻	Cl ⁻	NO ₂ ⁻	Br ⁻	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Li ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺
F ⁻	1											
Cl ⁻	0.70**	1										
NO ₂ ⁻	0.37	0.10	1									
Br ⁻	0.17	-0.43	0.02	1								
SO ₄ ²⁻	0.95**	0.68**	0.73**	0.12	1							
NO ₃ ⁻	-0.13	0.56**	-0.09	-0.49	-0.10	1						
Li ⁺	0.96**	0.80**	0.32	0.22	0.92**	-0.13	1					
Na ⁺	0.84**	0.57**	0.22	0.33	0.74**	-0.17	0.90**	1				
NH ₄ ⁺	0.88**	0.71**	0.30	-0.17	0.89**	-0.02	0.92**	0.75**	1			
K ⁺	0.98**	0.67**	0.38	0.49	0.93**	-0.15	0.99**	0.89**	0.91**	1		
Mg ²⁺	0.82**	0.44	0.35	0.02	0.87**	-0.3	0.79**	0.53*	0.69**	0.79**	1	
Ca ²⁺	0.88**	0.54**	0.45*	0.17	0.92**	-0.22	0.84**	0.62**	0.76**	0.86**	0.98**	1

** P < 0.01.

变化范围为 3.7 ~ 560 mol·L⁻¹; NH₄⁺、Mg²⁺ 和 K⁺ 次之, 平均含量分别为 52.2、20.4 和 8.2 mol·L⁻¹; Na⁺ 含量较低, 平均含量只有 6.0 mol·L⁻¹; Li⁺ 的含量最少。

如图 2 所示, 阴离子平均浓度顺序依次为 SO₄²⁻ > NO₃⁻ > Cl⁻ > F⁻ > NO₂⁻ > Br⁻; 阳离子为 Ca²⁺ > NH₄⁺ > Mg²⁺ > K⁺ > Na⁺, 这与我国南方降水规律基本一致 (韩贵琳和刘丛强, 2005; 肖红伟等, 2010)。在本研究, 阴离子中, SO₄²⁻ 占阴离子总量的 80%, NO₃⁻ 占 15%, Cl⁻、F⁻ 及 NO₂⁻ 分别占阴离子总量的 3.4%、3.1% 及 2.3%, Br⁻ 仅占到 0.19%。阳离子中, Ca²⁺ 占阳离子总量的 67%, NH₄⁺、Mg²⁺ 和 Na⁺ 分别占阳离子总量的 17%、7.9% 和 2.6%, Li⁺ 仅占阳离子总量的 0.12%。

贵阳市雨水中的阴离子主要以 SO₄²⁻ 为主, 由于 SO₄²⁻ 主要与燃煤排放的 SO₂ 转化有关, 表明燃煤仍是贵阳市大气污染的主要来源之一, 酸雨类型为硫酸型。NO₃⁻ 来源于高浓度的 NO_x 在大气中经过化学转化形成的可溶于水的硝酸或硝酸盐, 代表

来自 NO_x 人为源。雨水中阳离子主要以 Ca²⁺ 为主, NH₄⁺ 和 Mg²⁺ 次之。Ca²⁺ 和 Mg²⁺ 主要作为土壤的典型代表物元素, NH₄⁺ 主要来自气态氨的转化, 因此也可以认为雨水中的 Ca²⁺、Mg²⁺ 和 NH₄⁺ 来源于扬尘和氮肥。

通过分析贵阳市大气降水中各离子成分之间的相关系数 (表 3) 可知, F⁻ 与 SO₄²⁻ 显示极显著的正相关关系 (R² = 0.95, P = 0.01, 双尾), 表明二者均源于燃煤; Ca²⁺ 和 Mg²⁺ 的相关系数为 0.98 说明它们可能具有相同的来源, 并且二者与 SO₄²⁻ 的相关系数也比较高 (R² = 0.92, R² = 0.87), 在雨水中可能以 CaSO₄ 和 MgSO₄ 的形式存在, 与肖红伟等 (2010) 的研究一致, 他们指出, 降水中主要的致酸因子是 SO₄²⁻, 来源主要是工业燃煤和秋冬季节居民燃煤取暖。

2.3 大气降水中汞的来源

通过对贵阳市雨水中总汞、甲基汞含量和各阴阳离子含量的正态分布检验和相关性分析, 发现总汞和阴离子 SO₄²⁻、F⁻ 服从正态分布, 并且总汞含量

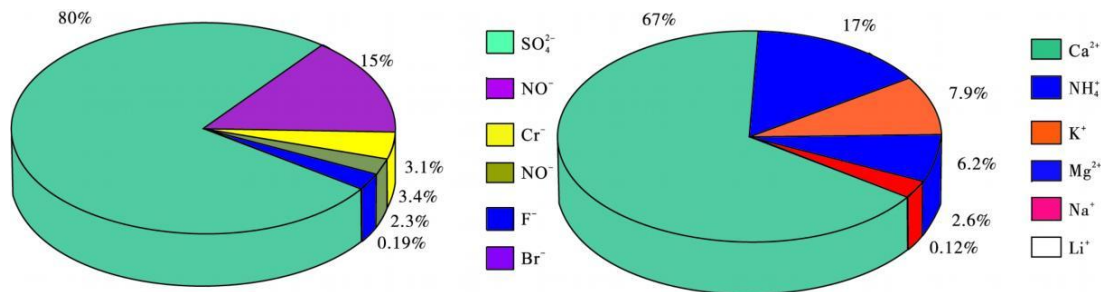


图 2 大气降水中阴、阳离子含量的百分比
Fig 2 Percentage of ions concentration in precipitation

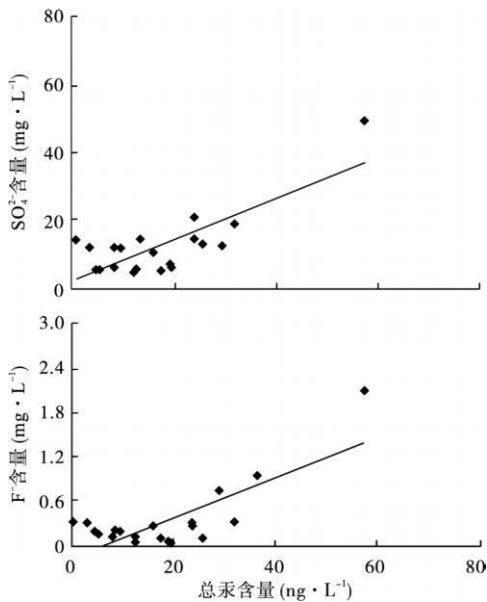


图 3 阴、阳离子与总汞含量的相关性分析

Figure 3 Correlations between concentration of ions and concentration of THg

与 SO_4^{2-} 、 F^- 之间存在着的正相关关系 ($P < 0.001$, $R^2 = 0.62$, $P < 0.001$, $R^2 = 0.60$ 图 3); 而总汞与 NO_3^- 相关关系不显著 ($R^2 = 0.01$, $P < 0.5$)。由此初步判定, 贵阳市大气降水中的总汞的来源主要是燃煤人为活动释放源, 受交通释放源的影响不大。

大气降水中的甲基汞来源复杂, 目前较难判断, 具有一定的局域性。甲基汞的来源主要有以下几种情况: 降雨过程中的活性汞与其他可以提供甲基的物质发生水相甲基化反应, 由此产生甲基汞 (Hammerschmidt et al., 2007); 生活垃圾堆放填埋产生的甲基汞 (冯新斌等, 2004); 另外, 土壤或其他污染源挥发进入大气的二甲基汞, 在光化学作用下转化成甲基汞 (Bloom et al., 1996)。

3 结 论

贵阳市大气降水中总汞的平均含量为 $18 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.4 \sim 57.4 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 甲基汞的平均含量为 $0.07 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.02 \sim 0.2 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 降水中的阴离子以 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 为主, 平均含量分别为 151 和 $145 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$; 阳离子主要以 Ca^{2+} 为主, 平均含量达到了 $123 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, 其次是 NH_4^+ 、 Mg^{2+} 和 K^+ 。贵阳市大气降水中的汞主要与燃煤有关。

参考文献

冯新斌, 汤顺林, 李仲根, 等. 2004. 生活垃圾填埋场是大

- 气汞的重要来源. 科学通报, 49(23): 2475—2479
- 付学吾. 2008. 贡嘎山地区大气中不同形态汞的分布规律及影响因素 (博士学位论文). 贵阳: 中国科学院地球化学研究所.
- 郭艳娜, 冯新斌, 何天容, 等. 2008. 乌江流域大气降雨中不同形态汞的时空分布. 环境科学学报, 28(7): 1441—1446
- 郭艳娜. 2008. 乌江流域不同演化阶段水库汞的输入输出通量研究 (博士学位论文). 贵阳: 中国科学院地球化学研究所.
- 韩贵琳, 刘从强. 2005. 贵阳地区雨水化学与 S 同位素地球化学. 环境化学, 24(2): 213—218
- 蒋红梅, 冯新斌, 梁 璐, 等. 2004. 蒸馏乙基化 GC-CVAFS 法测定天然水体中的甲基汞. 中国环境科学, 24(5): 568—571
- 刘俊华, 王文华, 彭 安. 2000. 降水中汞及其它元素来源的识别分析. 环境科学, 21(2): 77—80
- 万 奇. 2007. 吉林省长白山地区大气中不同形态汞的含量分布及沉降通量 (硕士学位论文). 贵阳: 中国科学院地球化学研究所.
- 肖红伟, 肖化云, 王燕丽, 等. 2010. 典型污染城市 9 个月连续大气降水化学特征: 以贵阳市为例. 环境科学, 31(4): 865—870
- 闫海鱼, 冯新斌, 商立海, 等. 2003. 天然水体中痕量汞的形态分析方法研究. 分析测试学报, 22(5): 10—13
- 郑 伟. 2007. 贵阳市中心城区大气中不同形态汞的研究 (博士学位论文). 贵阳: 中国科学院地球化学研究所.
- Bloom NS, Prestbo E, Tokos JS, et al. 1996. Distribution and origins of mercury species in the Pacific northwest atmosphere // Fourth International Conference on Mercury as a Global Pollutant Hamburg, Germany: 78—82
- Dvonch JT, Graney JR, Marsik FJ, et al. 1998. An investigation of source-receptor relationships for mercury in south Florida using event precipitation data. Science of the Total Environment 213: 95—108
- Dvonch JT, Graney JR, Keefer GJ, et al. 1999. Use of elemental tracers to source apportion mercury in south Florida precipitation. Environmental Science & Technology 33: 4522—4527
- Feng X, Hong Y. 1999. Modes of occurrence of mercury in coals from Guizhou P. R. China. Fuel 78: 1181—1188
- Feng X, Sammar J, Lindqvist Q, et al. 2002. Occurrence, emissions and deposition of mercury during coal combustion in the province Guizhou, China. Water, Air, and Soil Pollution 139: 311—324
- Feng X, Tang S, Shang L, et al. 2003. Total gaseous mercury in the atmosphere of Guiyang, P.R. China. Science of the Total Environment 304: 61—72
- Feng X, Tang S, Li Z, et al. 2004. Landfill is an important atmospheric mercury emission source. Chinese Science Bulletin 49: 2068—2072
- Hammerschmidt CR, Lamborg CH, Fitzgerald WF. 2007. Aqueous phase methylation as a potential source of methylmercury in wet deposition. Atmospheric Environment 41: 1663

- 1668
- Hall BD, Manppopoulos H, Hurley JP et al. 2005. Methyl and total mercury in precipitation in the Great Lakes region. *Atmospheric Environment* **39**: 7557—7569
- Lai S, Holten TM, Hopke PK et al. 2007. Wet deposition of mercury at a New York state rural site: Concentrations, fluxes, and source areas. *Atmospheric Environment* **41**: 4337—4348
- Lu JY, Schroeder WH. 2004. Annual time series of total filterable atmospheric mercury concentrations in the Arctic. *Tellus B* **56**: 213—222
- Mason RP, Lawson NM, Sullivan KA. 1997. The concentration, speciation and sources of mercury in Chesapeake Bay precipitation. *Atmospheric Environment* **31**: 3541—3550
- Manolopoulos H, Snyder DC, Schauer JS et al. 2007. Sources of speciated atmospheric mercury at a residential neighborhood impacted by industrial sources. *Environmental Science & Technology* **41**: 5626—5633
- Pacyna EG, Pacyna JM. 2002. Global emission of mercury from anthropogenic sources in 1995. *Water, Air, and Soil Pollution* **137**: 149—165
- Pacyna EG, Pacyna JM, Steenhuisen F et al. 2006. Global anthropogenic mercury emission inventory for 2000. *Atmospheric Environment* **40**: 4048—4063
- Prestbo EM, Gay DA. 2009. Wet deposition of mercury in the U.S. and Canada 1996—2005. Results and analysis of the NADP mercury deposition network (MDN). *Atmospheric Environment* **43**: 4223—4233
- Sanei H, Outridge PM, Goodarzi F et al. 2010. Wet deposition mercury fluxes in the Canadian sub-Arctic and southern Alberta measured using an automated precipitation collector adapted to cold regions. *Atmospheric Environment* **13**: 1672—1681
- Schroeder WH, Munthe J. 1998. Atmospheric mercury: An overview. *Atmospheric Environment* **32**: 809—822
- Sellers P, Kelly CA, Rudd JW et al. 1996. Photodegradation of methylmercury in lakes. *Nature* **380**: 694—697
- Stein ED, Cohen Y, Winer AM. 1996. Environmental distribution and transformation of mercury compounds. *Critical Reviews in Environmental Science & Technology* **26**: 1—43
- USEPA. 1998. Persistent Bioaccumulative and Toxic Chemical Program [EB/OL] [2010-10-12]. <http://www.epa.gov/pbt/>
- USEPA. 1999. Method 1631, Revision B. Mercury in water by Oxidation, Purge and Trap, and Cold Vapor Atomic Fluorescence Spectrometry. United States Environmental Protection Agency: 1—33
- Wu Y, Wang S, Streets DG et al. 2006. Trends in anthropogenic mercury emissions in China from 1995 to 2003. *Environmental Science & Technology* **40**: 5312—5318

作者简介 刘娜,女,1983年生,硕士研究生,主要从事汞的地球化学研究。Email: liunagy@163.com
责任编辑 魏中青
