

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[J]. 环境科学学报, 28(7): 1441-1446

Guo Y N, Feng X B, He T R, et al. 2008 Temporal and spatial distribution of different mercury species in precipitation of Wujiang River Basin[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 28(7): 1441-1446

乌江流域大气降雨中不同形态汞的时空分布

郭艳娜^{1,2}, 冯新斌^{1,*}, 何天容^{1,2}, 张军方^{1,2}, 梁鹏³, 孟博^{1,2}, 姚珩^{1,2}

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

2 中国科学院研究生院, 北京 100049

3 西南大学资源环境学院, 重庆 400716

收稿日期: 2007-05-06 修回日期: 2007-10-06 录用日期: 2008-04-25

摘要: 2006 年 1~12 月测定了乌江流域 5 个水库库区大气降雨中不同形态汞的浓度。结果表明, 总汞、溶解态汞、颗粒态汞、活性汞、甲基汞的浓度范围分别为 7.49~149.13 ng L⁻¹, 1.23~10.02 ng L⁻¹, 5.76~141.92 ng L⁻¹, 0.56~2.94 ng L⁻¹, 0.082~0.821 ng L⁻¹。降雨中颗粒态汞为主要形态, 约占总汞比例的 67.6%~96.1% (平均 87%), 活性汞、甲基汞占总汞的比例分别为 5.1% 和 0.68%。除活性汞外, 其它形态汞的浓度存在明显的季节变化趋势, 冬春季的浓度明显高于夏秋季, 而不同形态汞的空间分布特征不明显。降雨中汞的浓度主要受降雨量及燃煤等人为活动的影响。

关键词: 大气降雨; 不同形态汞; 时空分布; 乌江流域

文章编号: 0253-2468(2008)07-1441-06 中图分类号: X142 文献标识码: A

Temporal and spatial distribution of different mercury species in precipitation of Wujiang River Basin

GUO Yannan², FENG Xinbin^{1,*}, HE Tianrong², ZHANG Junfang², LIANG Peng³, MENG Bo², YAO Heng²

1 State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002

2 Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

3 College of Resources & Environment, Southwest University, Chongqing 400716

Received 6 May 2007 received in revised form 6 October 2007 accepted 25 April 2008

Abstract: Concentrations of mercury (Hg) species were measured in precipitation collected from five sites in the Wujiang River between January and December, 2006. The concentrations of total Hg (THg) ranged from 7.49 to 149.13 ng L⁻¹, dissolved Hg (DHg) from 1.23 to 10.02 ng L⁻¹, particulate Hg (PHg) from 5.76 to 141.92 ng L⁻¹, reactive Hg (RHg) from 0.56 to 2.94 ng L⁻¹, and methylmercury (MeHg) from 0.082 to 0.821 ng L⁻¹. The particulate fraction, which accounted for 67.6%~96.1% with an average of 87% of the total Hg, was dominant among the different Hg species. The ratios of RHg and MeHg were 5.1% and 0.68%, respectively. Concentrations of THg, DHg, PHg and MeHg in samples collected in winter and spring were significantly higher than those found in summer and autumn, however, no significant spatial differences were obtained among Hg species in samples from five sites. Mercury levels in the precipitation were mainly affected by the amount of rainfall, coal combustion, and other human activities.

Keywords: precipitation; mercury species; temporal and spatial distribution; Wujiang River

1 引言 (Introduction)

汞是具有高挥发性的金属元素, 容易从人为活动源 (主要包括燃煤、垃圾焚烧、金属冶炼) 向偏远

的生态系统传输 (Mason et al., 2002)。大气中的汞主要有零价汞 (Hg⁰)、活性气态汞 (RGM) 和颗粒态汞 (PHg)。Hg⁰ 从释放源进入大气后, 在随大气循环迁移的同时可被大气中的强氧化性自由基氧化成

基金项目: 国家自然科学基金重点项目 (No. 40532014); 中国科学院知识创新工程重要方向项目 (No. KZCX3-SW-443)

Supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 40532014) and the Chinese Academy of Science through an innovation project (No. KZCX3-SW-443)

作者简介: 郭艳娜 (1980-), 女, 博士研究生; *通讯作者 (责任作者), E-mail: fengxinbin@vip.skjg.cn

Biography: GUO Yannan (1980-), female Ph.D. candidate; *Corresponding author; E-mail: fengxinbin@vip.skjg.cn

(C)1994-2021 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

活性的二价汞 (Hg^{2+}) (Lindberg et al., 2002; Schroeder et al., 1998). Hg^{2+} 具有较强的水溶性,可随干湿沉降进入陆地和水生生态系统,并在缺氧的生态系统(如湿地、湖泊沉积物)中转化成具有强神经毒性的甲基汞,从而在水生食物链中富集,对野生动植物和人类健康造成很大的威胁.有研究者认为,大气沉降是汞进入水生和陆地生态系统的重要途径(Landis et al., 2002; Rolhus et al., 2003).不同形态汞的水溶性不同,它们通过干湿沉降进入生态系统的过程也不同, Hg^0 在大气中居留时间较长,可进行长距离传输, RGM和 PH₈居留时间较短,能迅速在释放源附近沉降(Schroeder et al., 1998).目前,大气降雨中汞的形态及分布已受到国际学术界的普遍关注;而国内对大气降雨中汞的研究多局限于城市中总汞、颗粒态汞的研究(方凤满, 2002; 刘俊华等, 2000),对具有强神经毒性的甲基汞的研究非常少,且研究周期较短.本研究中拟对乌江流域2006年大气降雨中不同形态汞(包括总汞、颗粒态汞、溶解态汞、活性汞、甲基汞)的含量进行初步研究,分析不同形态汞的季节变化趋势和空间分布特征,并探讨影响汞时空分布的因素及总汞和甲基汞可能的源,以期为更好地研究乌江流域汞的生物地球化学循环及质量平衡提供基础资料.

2 材料与方法 (Materials and methods)

2.1 采样装置

大气降雨的采样装置参考了国外文献,并进行了修改(Oslo and Paris Commission, 1997).该采样装置主要由3部分组成:①集雨杯,为1000mL的漏斗型烧杯,杯口直径15cm;②连接管,为细孔径的双层硼硅玻璃导管,且外层导管中间留有小孔,连接①和③,并能起到类似毛细管的作用,防止接收到的雨水挥发;③采样瓶,容积800mL.这3个部件均用硼硅玻璃制作,连接管和采样瓶放置在一个用海绵做隔热内衬的圆柱形PVC桶内,以避免太阳辐射使雨水中的汞发生形态的转化(Selers et al., 1996).

2.2 采样点的选择及样品的采集

乌江是长江上游南岸最大的支流,主要位于贵州喀斯特地区.在乌江流域的5个水库库区设置采样点,分别是A普定($N26^{\circ}22'$, $E105^{\circ}48'$), B引子渡($N26^{\circ}34'$, $E106^{\circ}07'$), C洪家渡($N26^{\circ}53'$, $E105^{\circ}51'$), D东风($N26^{\circ}51'$, $E106^{\circ}08'$), E乌江渡($N27^{\circ}$

$19'$, $E106^{\circ}46'$).采样装置放在民房房顶,且远离居民厨房烟囱以免受到污染,用铁架子承托固定并距地面1.5m.采样点周围没有树木、建筑物及局部污染源.集雨杯、连接管、采样瓶均经过超净技术严格处理,且采样瓶内预先加入10mL的超纯盐酸.采样时间为2006年1~12月,每月采集1次混合雨水样品,溶解态汞测定前样品需用0.45 μ m的Millipore滤膜过滤.另外,从2006年4月开始每个采样点增加1套雨水采集装置,收集的样品用于测定PH值.

2.3 样品分析

活性汞、溶解态汞、总汞用两次金汞齐冷原子荧光光谱法测定(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);颗粒态汞为总汞与溶解态汞的差值.

2.4 数据统计方法

所有实验数据均由SPSS 11.5统计软件处理,方差分析和多重比较的显著性水平为 $\alpha = 0.01$.

3 结果 (Results)

3.1 不同形态汞的季节变化

3.1.1 总汞、颗粒态汞、溶解态汞浓度的季节变化

乌江流域大气降雨中总汞浓度的年均值为(49.15 ± 35.50) $ng L^{-1}$,浓度范围为7.49~149.13 $ng L^{-1}$;颗粒态汞、溶解态汞浓度的年均值分别为(44.34 ± 33.94) $ng L^{-1}$ 、(4.82 ± 2.16) $ng L^{-1}$,变化范围分别为5.76~141.92 $ng L^{-1}$ 、1.23~10.02 $ng L^{-1}$.不同季节各形态汞的平均浓度变化较大(见图1),颗粒态汞、溶解态汞的季节变化趋势与总汞一致(见表1),为冬季>春季>秋季>夏季,基本呈现冬春季节高、夏秋季节低的特征.方差分析与多重比较的结果显示,冬、春季与夏、秋季之间各形态汞浓度的差异显著($n=60$, $P < 0.001$),冬季总汞、颗粒态汞、溶解态汞浓度的平均值分别是夏季的4.0、4.3、2.2倍.

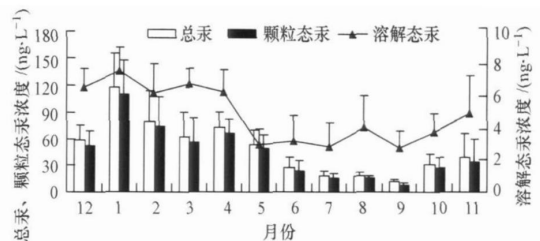


图1 大气降雨中总汞、颗粒态汞、溶解态汞浓度的月变化

Fig. 1 Monthly variations of total, particulate and dissolved mercury concentration in precipitation

颗粒态汞浓度占总汞浓度的比例为 67.6% (9月) ~96.1% (2月), 对颗粒态汞、总汞浓度作正态分布检验和相关分析, 结果显示, 二者均服从正态分布 ($P=0.226$, $P=0.268$, $n=60$), Pearson 相关系

数 $r=0.999$ ($P<0.0001$, $n=60$); 说明颗粒态汞与总汞之间显著相关, 乌江流域大气降雨中的总汞浓度主要受颗粒态汞控制。

表 1 2006年乌江流域不同季节大气降雨中不同形态汞的浓度

Table 1 Seasonal trend of mercury concentration in precipitation in Wujiang

ng L⁻¹

季节	总汞	颗粒态汞	溶解态汞	活性汞	甲基汞
冬 (12, 1, 2月)	85.46 ± 37.63	78.71 ± 37.15	6.75 ± 1.48	1.26 ± 0.42	0.364 ± 0.196
春 (3, 4, 5月)	62.81 ± 21.20	57.13 ± 20.44	5.68 ± 1.82	1.36 ± 0.66	0.292 ± 0.186
夏 (6, 7, 8月)	21.23 ± 8.61	18.22 ± 7.96	3.01 ± 1.31	1.57 ± 0.75	0.191 ± 0.068
秋 (9, 10, 11月)	27.11 ± 20.03	23.29 ± 18.65	3.82 ± 1.75	1.68 ± 0.65	0.164 ± 0.081

3.1.2 活性汞、甲基汞浓度的季节变化 大气降雨中活性汞浓度的年均值为 (1.47 ± 0.64) ng L⁻¹, 浓度范围为 0.56 ~ 2.94 ng L⁻¹ (见图 2)。方差分析结果显示, 活性汞浓度的季节变化不明显 ($P=0.265$); 活性汞占总汞的平均比例为 5.1%, 且秋季 (8.32%) > 夏季 (7.73%) > 春季 (2.37%) > 冬季 (1.84%), 夏秋季活性汞占总汞的比例明显高于冬春季节 ($P<0.001$)。

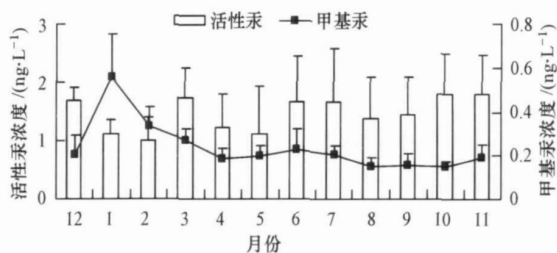


图 2 大气降雨中活性汞、甲基汞浓度的月变化

Fig 2 Monthly variations of reactive and methyl mercury concentration in precipitation

0.132) ng L⁻¹, 浓度范围 0.082 ~ 0.821 ng L⁻¹ (见图 2), 季节变化趋势为冬季 > 春季 > 夏季 > 秋季 (见表 1), 且冬季与春、夏、秋季之间差异显著 ($P<0.001$)。甲基汞浓度占总汞的比例为 0.68%, 且夏季 (0.98%) > 秋季 (0.86%) > 冬季 (0.47%) > 春季 (0.39%), 夏秋季显著高于冬春季 ($P<0.001$)。

3.2 不同形态汞的空间分布

各采样点不同形态汞的年平均浓度见表 2 其中, 乌江渡采样点的总汞、颗粒态汞浓度最高, 东风采样点次之, 普定采样点最低; 乌江渡采样点的溶解态汞、活性汞、甲基汞最高, 洪家渡采样点次之, 东风或引子渡采样点最低。各形态汞的浓度均在乌江渡最高, 可能是受位于该库区的息烽重钙厂和乌江渡铁厂的影响所致。对各采样点间不同形态汞的浓度进行了方差分析, 结果显示, 总汞 ($P=0.215$)、溶解态汞 ($P=0.264$)、颗粒态汞 ($P=0.200$)、活性汞 ($P=0.211$)、甲基汞 ($P=0.911$) 在 5 个采样点间差异均不显著, 说明乌江流域大气降雨中汞的空间分布不明显。

大气降雨中甲基汞浓度的年均值为 (0.253 ±

表 2 2006年乌江流域 5 个采样点大气降雨中不同形态汞的浓度

Table 2 Mercury concentration in precipitation of the sampling sites in Wujiang

ng L⁻¹

采样点	总汞	颗粒态汞	溶解态汞	活性汞	甲基汞
普定	34.57 ± 24.68	30.35 ± 22.99	4.22 ± 2.06	1.31 ± 1.21	0.240 ± 0.161
引子渡	51.22 ± 36.91	46.57 ± 34.33	4.65 ± 2.89	1.21 ± 0.51	0.212 ± 0.088
洪家渡	41.23 ± 24.13	35.81 ± 22.93	5.42 ± 1.55	1.57 ± 0.63	0.248 ± 0.200
东风	51.60 ± 38.54	47.58 ± 37.48	4.02 ± 1.56	1.49 ± 0.78	0.216 ± 0.086
乌江渡	67.15 ± 45.31	61.38 ± 43.76	5.77 ± 2.26	1.77 ± 0.67	0.260 ± 0.105

3.3 乌江流域与其它地区降雨中汞浓度的比较

对乌江流域大气降雨中总汞、甲基汞浓度与其它流域降水中汞的浓度进行了比较, 结果见表 3。由表可以看出, 乌江流域降水中总汞的浓度远高于其

它流域, 而甲基汞浓度与国外其它流域相当。这说明, 乌江流域的大气已受到一定程度的汞污染, 这与贵州主要靠汞含量较高的煤作为生活和工业能源以及贵州严重的酸雨有关 (Feng et al., 1999

2002; Tan et al., 2000).

表 3 乌江流域大气降雨中总汞、甲基汞浓度与其它流域降雨的比较

Table 3 Comparison of THg, MeHg concentration in precipitation of Wujiang with literature data

地区	时间	总汞浓度 / ($\mu\text{g L}^{-1}$)	甲基汞浓度 / (ng L^{-1})	文献
乌江流域, 中国	2006	7.5~149.1	0.041~0.822	本研究
Amazonian, Brazil	1996~1997	3.5~23.4		Fostier et al., 2000
Midwest, USA	1990~1995	4.3~28.9	0.044~0.480	Glass et al., 1999
Vermont, USA	1993~2003	7.8~10.5		Keefer et al., 2005
Ohio, USA	2003~2004	14.0		Keefer et al., 2006
Lake Baikal, Siberia	1992	2.9~20	0.1~0.25	Meulman et al., 1995
Lake Balaton, Hungary	2000~2001	5.2~191	0.09~1.26	Nguyen et al., 2005
Quebec, Canada	1995~1996	0.81~21.7		Poissant et al., 1998
Ontario, USA		0.95~9.31	0.01~0.179	St Louis et al., 1995

4 讨论 (Discussion)

4.1 降雨及其它气象条件的影响

许多研究均表明, 降雨中汞浓度与降雨量呈负相关关系 (Hall et al., 2005; Hoyer et al., 1995; Mason et al., 1997; Morrison et al., 1995; Sorensen et al., 1994), 主要是由于大气中水溶性的活性气态汞及颗粒态汞在降雨初期就被清除. 对乌江流域降雨中总汞、甲基汞浓度和降雨量作正态分布检验和相关分析, 结果表明, 三者均服从正态分布 ($P=0.268$, $P=0.018$, $P=0.076$), 总汞、甲基汞浓度与

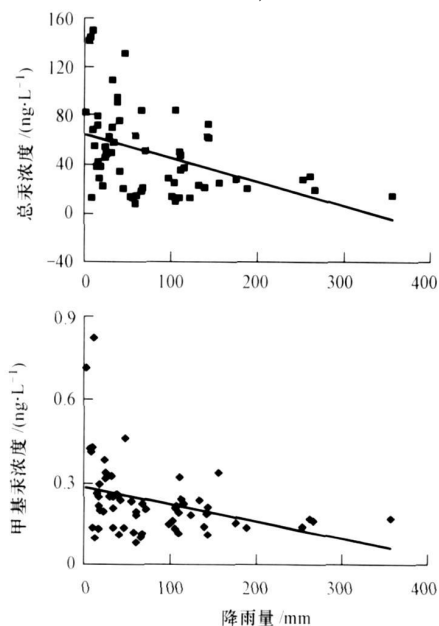


图 3 降雨量与总汞、甲基汞浓度之间的关系

Fig. 3 Relationship between precipitation amount and concentration of THg and MeHg concentrations

降雨量间存在显著的负相关关系 (见图 3), 总汞浓度与降雨量的 Pearson 相关系数 $r = -0.407$ ($P=0.001$, $n=60$), 甲基汞浓度与降雨量的 Pearson 相关系数 $r = -0.347$ ($P=0.007$, $n=60$). 这是由于乌江流域大气降雨中绝大部分汞 (约 87%) 是以颗粒态形式存在的, 在降雨初期即随湿沉降进入陆地生态系统, 当颗粒物进入水相后, 其吸附的一部分汞会溶解在水中.

另外, 在夏季, 随着降雨量和降雨频率的增加, 雨水会对大气中的颗粒汞进行有效的冲刷, 从而使大气中颗粒态汞浓度降低; 且夏季的光照强度增加, 使大气中的甲基汞易发生光致还原反应而使其浓度降低. 而冬季的多雾天气有助于甲基汞的形成 (Malcolm et al., 2003). 因此, 在冬季, 乌江流域大气降雨中除活性汞外其它形态汞的浓度均高于夏季.

4.2 燃煤等人为活动的影响

大气中存在的颗粒物也会影响降雨中汞的分布及季节变化趋势 (St Louis et al., 1995; Hoyer et al., 1995). 贵州大气中颗粒物含量较高且以烟煤颗粒物为主, 尤其是在冬季随着工业用煤 (主要是火力发电) 和民用燃煤量的增加大气中烟煤颗粒物所占比例也增加 (刘建玲, 2001), 导致颗粒态总汞的含量也随之增加 (郑伟, 2006), 从而使降雨中颗粒态汞浓度在冬季达最高值. 另外, 燃煤还导致贵州酸雨污染严重 (高一等, 2005), 2006 年乌江流域 pH 值的范围为 3.41~5.90, pH 值的降低增加了汞的水溶性, 使溶解性较低的汞也能溶解在酸雨中, 从而增加了降雨中汞的浓度. 但是, 在乌江流域 pH 值与总汞、甲基汞之间没有相关性 ($P=0.475$, $P=$

0.148~0.45), 这可能是由于大气降雨中 PH 的变化范围较小且降雨中颗粒物较多. 总之, 乌江流域降雨中冬季汞浓度高与燃煤等人为活动有很大关系. 而在北美发现的夏季汞浓度高于冬季是由于其降雨中的汞主要来自土壤释放, 并且大气中的汞与来自土壤的颗粒物结合, 而冬季积雪覆盖减少了汞从土壤向大气的释放 (St Louis et al., 1995; Hoyer et al., 1995).

4.3 总汞和甲基汞的源分析

乌江流域大气降雨中的总汞主要来自人为源, 并且以燃煤释放为主, 其它人为活动释放汞所占比重的大小还有待于进一步确定. 甲基汞的源较难判断, 但与总汞不同, 甲基汞的源只局限于当地. 初步推测甲基汞可能来自以下 4 种源: ①“水库效应”产生的云和雾. 有研究认为, 云和雾可作为汞水相化学反应的场所 (Malcolm et al., 2003). ②由土壤或其它污染源挥发进入大气的二甲基汞, 二甲基汞在光化学作用下可转化成甲基汞 (Bloom et al., 1996); ③农村生活垃圾随意堆放产生的甲基汞向大气释放 (冯新斌等, 2004); ④降雨过程中活性的 H^+ 与其它可以提供甲基的物质发生水相甲基化反应生成了甲基汞 (Hammerschmidt et al., 2007).

5 结论 (Conclusions)

1) 乌江流域大气降雨中总汞、溶解态汞、颗粒态汞、活性汞、甲基汞的浓度分别为 $7.49 \sim 149.13 \text{ ng L}^{-1}$ 、 $1.23 \sim 10.02 \text{ ng L}^{-1}$ 、 $5.76 \sim 141.92 \text{ ng L}^{-1}$ 、 $0.56 \sim 2.94 \text{ ng L}^{-1}$ 、 $0.082 \sim 0.821 \text{ ng L}^{-1}$, 且以颗粒态汞为主, 约占总汞比例的 $67.6\% \sim 96.1\%$ (平均 87%) 甲基汞、活性汞占总汞的比例分别为 $0.15\% \sim 2.33\%$ (平均 0.68%)、 $0.6\% \sim 18\%$ (平均 5.1%).

2) 大气降雨中总汞、溶解态汞、颗粒态汞、甲基汞的浓度有明显的季节变化趋势, 冬、春季浓度高, 夏、秋季低, 这与降雨量和冬季燃煤释放有关. 活性汞的浓度无明显的季节变化.

3) 乌江流域大气降雨中汞的空间分布特征不明显.

4) 乌江流域降雨中总汞的浓度远高于其它未受污染的流域, 而甲基汞浓度与国外其它流域相当.

责任作者简介: 冯新斌 (1968—), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事汞的生物地球化学研究.

References

- Bloom N S, Prestbo E, Tokos J S et al. 1996. Distribution and origins of mercury species in the Pacific northwest atmosphere. *Fourth International Conference on Mercury as a Global Pollutant* [J]. Hamburg, Germany, 78—82.
- Fang F M. 2002. The preliminary study on mercury pollution in the multimedia environment in Changchun city [D]. Changchun: Changchun Institute of Geography, Chinese Academy of Sciences, 43—50 (in Chinese).
- Feng X B, Hong Y T. 1999. Modes of occurrence of mercury in coals from Guizhou, P. R. China. *J. Fuel* 78: 1181—1188.
- Feng X B, Sommar J, Lindqvist Q et al. 2002. Occurrence, emissions and deposition of mercury during coal combustion in the province Guizhou, China. *J. Water Air and Soil Pollution* 139: 311—324.
- Feng X B, Tang S L, Shang L H et al. 2003. Total gaseous mercury in the atmosphere of Guiyang, P. R. China. *J. The Science of the Total Environment* 304: 61—72.
- Feng X B, Tang S L, Li Z G et al. 2004. Landfill is an important atmospheric mercury emission source. *J. Chinese Science Bulletin* 49(19): 2068—2072.
- Fostier A H, Fortin M C, Guinagaes J R D et al. 2000. Mercury fluxes in a natural forested Amazonian catchment (Serra do Navajo, Amazon State, Brazil) [J]. *The Science of the Total Environment* 260: 201—211.
- Gao Yi, Wei D P. 2005. 2002' acid rain pollution in Guizhou province—A circumstance analysis [J]. *Earth and Environment* 33(1): 59—62 (in Chinese).
- Glass G E, Sorensen J A. 1999. Six-year trend (1990—1995) of wet mercury deposition in the upper Midwest USA [J]. *Environmental Science and Technology* 33: 3303—3312.
- Hall B D, Maniopoulos H, Hurley J P et al. 2005. Methyl and total mercury in precipitation in the Great Lakes region [J]. *Atmospheric Environment* 39: 7557—7569.
- Hammerschmidt C R, Lamborg C H, Fitzgerald W F. 2007. Aqueous phase methylation as a potential source methylmercury in wet deposition [J]. *Atmospheric Environment* 41: 1663—1668.
- Hoyer M, Burke J, Keefer G J. 1995. Atmospheric sources, transport and deposition of mercury in Michigan—two years of event precipitation [J]. *Water Air and Soil Pollution* 80: 199—208.
- Jiang H M, Feng X B, Jiang L et al. 2004. Determination of methylmercury in waters by distillation-GC-CVAFS technique [J]. *China Environmental Science* 24(5): 568—571 (in Chinese).
- Keefer G J, Landis M S, Norris G A et al. 2006. Sources of mercury wet deposition in eastern Ohio, USA [J]. *Environmental Science and Technology* 40: 5874—5881.
- Keefer G J, Graedel F, Alwali K. 2005. Long-term atmospheric mercury wet deposition at undeveloped Vermont [J]. *Ecotoxicology* 14: 71—83.
- Lamborg C H, Fitzgerald W F, Graustein W C. 2000. An examination of the atmospheric chemistry of mercury using ^{210}Pb and ^7Be [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry* 36: 325—338.

- Landis M S, Keeler G J 2002. Atmospheric mercury deposition to Lake Michigan during the Lake Michigan mass balance study [J]. *Environmental Science and Technology* 36: 4518—4524
- Landberg S E, Brooks S, Lin C J et al 2002. Dynamic oxidation of gaseous mercury in the Arctic troposphere at polar sunrise [J]. *Environmental Science and Technology* 36: 1245—1256
- Liu J H, Wang W H, Peng A 2000. The source of mercury in rainfall in Beijing [J]. *Environmental Science* 21(2): 77—80 (in Chinese)
- Liu J L 2001. Preliminary analysis and prevention strategy of soot pollution in the atmosphere in Guizhou Province [J]. *Mineral Security and Environmental Protection* 28(1): 22—23 (in Chinese)
- Malcolm E G, Keeler G J, Lawson S T et al 2003. Mercury and trace elements in cloud water and precipitation collected on Mt Mansfield, Vermont [J]. *Journal of Environmental Monitoring* 5: 584—590
- Mason R P, Lawson N M, Sullivan K A 1997. The concentration, speciation and sources of mercury in Chesapeake bay precipitation [J]. *Atmospheric Environment* 31(21): 3541—3550
- Mason R P, Sheu G R 2002. Role of the ocean in the global mercury cycle [J]. *Global Biogeochemical Cycles* 16: 1093—1106
- Meulman C, Leemakers M, Baeyens W 1995. Mercury speciation in Lake Balaton [J]. *Water Air and Soil Pollution* 80: 539—551
- Morrison K A, Kuhn E S, Watts C J 1995. Comparison of three methods of estimating atmospheric mercury deposition [J]. *Environmental Science and Technology* 29: 571—577
- Nguyen H L, Leemakers M, Kucucz S et al 2005. Mercury distribution and speciation in Lake Balaton, Hungary [J]. *Science of the Total Environment* 340: 231—246
- Oslo and Paris Commission 1997. JAMP guidelines for the sampling and analysis of mercury in air and precipitation [M]. Paris: OSPAR Commission, 1—20
- Poissant L, Pihle M 1998. Mercury concentrations in single event precipitation in southern Quebec [J]. *The Science of the Total Environment* 213: 65—72
- Rollhus K R, Sakamoto H E, Cleckner L B et al 2003. Distribution and fluxes of total and methylmercury in Lake Superior [J]. *Environmental Science and Technology* 37: 865—872
- Schroeder W H, Munthe J 1998. Atmospheric mercury— an overview [J]. *Atmospheric Environment* 32: 809—822
- Sellers P, Kelly C A, Rudd J W M et al 1996. Photooxidation of methylmercury in lakes [J]. *Nature* 380: 694—697
- Shang L H, Feng X B, Zheng W, et al 2003. Preliminary study of the distribution of gaseous mercury species in the air of Guiyang city, China [J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry* 22(2): 156—158 (in Chinese)
- Sorensen J A, Glass G E, Selim I K W 1994. Regional patterns of wet mercury deposition [J]. *Environmental Science and Technology* 28: 2025—2032
- St Louis V L, Rudd J W M, Kelly C A et al 1995. Wet deposition of methylmercury in northwestern Ontario compared to other geographic location [J]. *Water Air and Soil Pollution* 80: 405—414
- Tan H, He J L, Liang L, et al 2000. Atmospheric mercury deposition in Guizhou, China [J]. *The Science of the Total Environment* 259: 223—230
- Yan H Y, Feng X B, Shang L H et al 2003. Speciation analysis of ultra levels of mercury in natural waters [J]. *Journal of Instrumental Analysis* 22(5): 10—13 (in Chinese)
- Zheng W 2006. Mercury species in the urban air of Guiyang [D]. Guiyang: Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, 53—57 (in Chinese)

中文参考文献

- 方凤满. 2002. 长春市汞的多介质环境污染初步研究 [D]. 长春: 中国科学院长春地理研究所. 43—50
- 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 [J]. *科学通报*, 49(23): 2475—2479
- 高一, 卫滇萍. 2005. 贵州省 2002 年酸雨污染情况分析 [J]. *地球与环境*, 33(1): 59—62
- 蒋红梅, 冯新斌, 梁琰, 等. 2004. 蒸馏-乙基化结合 GC-CVAFS 测定天然水体中的甲基汞 [J]. *中国环境科学*, 24(5): 568—571
- 刘建玲. 2001. 浅析贵州省大气煤烟型污染及防治对策 [J]. *矿业安全与环保*, 28(1): 22—23
- 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 [J]. *环境科学*, 21(2): 77—80
- 商立海, 冯新斌, 郑伟, 等. 2003. 贵阳市大气中气态汞形态分布特征的初步研究 [J]. *矿物岩石地球化学通报*, 22(2): 156—158
- 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 [J]. *分析测试学报*, 22(5): 10—13
- 郑伟. 2006. 贵阳市城区大气中不同形态汞的研究 [D]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所. 53—57