

降水引起的地表径流中汞来源的研究

王文华¹, 刘俊华¹, 彭安²

(1. 上海交通大学环境学院, 上海 200240, E-mail: whwang@mail1.sjtu.edu.cn;

2. 中国科学院生态环境研究中心 环境水化学国家重点实验室, 北京 100085)

摘要: 收集了北京市西北郊玉米地块的夏季降水和地表径流水样, 对样品中各形态的汞和理化性质进行了测定。结果表明, 地表径流中的汞含量大于降水中汞的含量, 用典型相关分析确定了地表径流中的汞来源及其影响因素。降水产生的地表径流与土壤接触后发生反应, 可溶解土壤中的汞向水体中输送, 地表径流的性质影响地表径流中汞的形态。估算出地表径流每年汞输出率约为 $18.24 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$ 。

关键词: 汞; 降雨; 地表径流; 北京

中图分类号: X522 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-0267(2001)05-

Mercury Origin in Surface Runoff Caused by Precipitation

WANG Wen-hua¹, LIU Jun-hua², PENG An²

(1. School of Environmental Sciences & Engineering, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China;

2. Skleac, Research Center for Eco-environmental Sciences, Academic Sinica P. O. Box 2871, Beijing 100085, China)

Abstract: Rain samples and runoff water samples were collected in summer 1998 from cornfield in Northwest of Beijing. The kind of mercury and physical, chemical properties of the samples were determined and evaluated. The origin of mercury in runoff water was analyzed by a statistics method. It has been discovered that the mercury contents in runoff water samples were more than that in rain samples and this may be explained by that the runoff water can react with soil and may dissolve some mercury into water body. It is also concluded that the properties of runoff water can affect nature of mercury in runoff water, while the outlet rate of mercury by runoff water was found to be $18.24 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$.

Keywords: mercury; rainfall; running water; Beijing

进入土壤中的汞可以各种形式迁移转化, 通过淋失和地面径流可将汞带入地表水体或渗入地下。因此, 降水对大气、土壤和水体中汞的循环及其通量都有影响。大气降雨可以通过湿沉降将大气中汞冲刷带到地面, 有关的研究已很多, 但大强度的降雨同时可以引起地表径流, 使部分汞被带入水体, 这部分研究还未见报道。Edward B. Swain 等人 (1992) 的研究认为, 水域汇流区每年大气汞沉降率从 1850 年的 3.7 增加到 $12.5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{a}^{-1}$, 并且 25% 的汞经渗透过程进入湖水中。在降水过程中, 特别是降雨量大时, 地表径流会使表层土壤中的汞溶出。本工作将收集夏季降水和地表径流样品, 并对其中汞的形态进行测定和比较, 以判断地表径流的汞来源, 从而分析降雨过程

对地表径流中汞形态分布的影响。

1 方法与材料

1.1 地表径流样品的采集

在北京市近郊中国科学院生态环境研究中心选择两块面积分别为 10 m^2 平整的实验地, 两侧挖掘两条排水沟, 并与两个蓄水池相连, 池底面积为 $0.53 \text{ m} \times 0.52 \text{ m}$ 。土壤类型为华北平原潮土, 质地以较大粒径的沙粒为主 (59%), 土壤有机质为 0.80, 孔隙度为 59.8%, pH 值和土壤阳离子交换量分别为 7.70 和 $16.0 \text{ mg} \cdot 100\text{g}^{-1}$ 土, 汞含量为 $0.16 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。在实验地上种植春玉米。在降雨时收集每次降雨和地表径流水样, 同时记录降水量和地表径流量。

1.2 降雨和地表径流中汞的测定

采集的样品不过滤, 测定降雨和地表径流中可挥发性汞 (Hg^0)、活性态汞 (Hg^{2+}) 和非活性态汞 (Hg^{re})。具体方法如下:

收稿日期: 2000-11-10

基金项目: 中国科学院重点基金资助 K952-j1-205

作者简介: 王文华, 52 岁, 研究员, 主要从事环境与化学的研究与教学工作。

取一定体积(100 mL)的降雨样品,加入浓 H_2SO_4 2 mL 酸化,通入氮气,用金管富集汞,测定降水中的挥发性汞,以 Hg^0 表示。再加入 20% SnCl_2 将降水中活性汞还原为 Hg^0 , 氮气吹出的汞用金管富集,冷蒸气原子吸收法(CVAA)测定,以 Hg^{2+} 表示,降雨中非活性态汞可用浓 HNO_3 、浓 H_2SO_4 及 KMnO_4 (5%) 消解已测定过 Hg^{2+} 的雨样,以 CVAA 法测定,以 Hg^{re} 表示。总汞为 Hg^0 、 Hg^{2+} 、 Hg^{re} 之和,以 Hg^{T} 表示。

1.3 降雨和地表径流性质的测定

将采集的降雨和地表径流水样直接用电位电极法测定其 pH 值和氧化还原电位(Eh),用电导仪测定电导率(EC),经 0.45 μm 的纸过滤后,用 TOC 仪测定有机碳(TOC)、无机碳(TIC)和总碳(TC)含量。

1.4 数据处理

实验所得数据经标准化后进行相关分析和典型相关分析。

典型相关分析:

典型相关分析是研究两组变量之间相关关系的统计方法。为了研究两组随机变量 X 和 Y 之间的相关关系,基本设想是分别在两组变量中选取综合变量,即所谓典型变量,并通过两组典型变量之间的相关关系研究,以展示原来两组为数很多的变量间的相关关系。若将 X 和 Y 的分量各组成一个线性组合,即

$$\begin{cases} u = a_1x_1 + a_2x_2 + \dots + a_{m_1}x_{m_1} = a^T X \\ v = b_1y_1 + b_2y_2 + \dots + b_{m_2}y_{m_2} = b^T Y \end{cases}$$

u 和 v 的相关系数为: $\rho = a^T S xy b$ 。设 $m_1 \leq m_2$, 为第 1 组变量个数, m_2 为第 2 组变量个数, S 为 X 的样本协方差阵,如对样本观测数据进行标准化处理,则 S 即为样本相关阵,将 R 划分为:

$$R = \begin{pmatrix} R_{11} & R_{12} \\ R_{21} & R_{22} \end{pmatrix}$$

其中 R_{11} 为 $m_1 \times m_1$ 的矩阵,是 X 各分量的相关阵, R_{22} 为 $m_2 \times m_2$ 的矩阵,是 Y 各分量的相关阵, R_{12} 为 $m_1 \times m_2$ 的矩阵,是 X 与 Y 各分量的相关阵, R_{21} 为 $m_2 \times m_1$ 的矩阵,是 Y 与 X 各分量的相关阵。

上述问题可归结为如下条件极值问题:

$$\begin{cases} a^T \sum xa = 1 \\ b^T \sum yb = 1 \\ \rho = a^T \sum xyb \end{cases}$$

则 a 和 b 的非零特征值为 $\lambda_1^2 \geq \lambda_2^2 \geq \dots \geq \lambda_k^2$, 其相应的特征向量为 a_1, a_2, \dots, a_k 与 b_1, b_2, \dots, b_k , 典型变量对 u_1, u_2, \dots, u_m 和 v_1, v_2, \dots, v_m 中的若干有代表性的

u_i 和 v_i 称为第 i 对典范变量,而 $\rho = \lambda_i$ 称为第 i 对典范相关系数。

检验典型相关系数的显著性可采用 Bartlett 检验,取统计量

$$Q_j = -[n - j - \frac{1}{2}(m_1 + m_2 + 1)] \ln \Lambda_j$$

其中

$$\Lambda_j = \prod_{i=j}^{m_1} (1 - \lambda_i), j = 1, 2, \dots, m_1$$

Q_j 服从自由度为 $f = (m_1 - j + 1)(m_2 - j + 1)$ 的 X^2 分布 $\chi^2(f)$, 在检验水平 α (α 常取 0.05 或 0.01) 下, Q_j 的临界值为 $\chi^2 \alpha(f)$, 如果 $Q_j > \chi^2 \alpha(f)$ 则认为第 j 对典型相关系数在水平 α 下显著,即认为第 j 对典型变量相关显著,否则认为不显著。

2 结果与讨论

2.1 地表径流和降雨中汞形态的含量及其占总汞含量的百分数分布

地表径流和降雨中各形态汞的含量及其占总汞含量的百分数分布见表 1 和表 2。地表径流中 Hg^{2+} 和 Hg^{re} 平均含量及占总汞含量的平均百分比都大于 Hg^0 , 达到显著性检验 ($P = 0.01$), 表明地表径流中以 Hg^{2+} 和易溶解性汞络合物为主,对汞的移动起着重要作用。降雨中 Hg^0 和 Hg^{2+} 平均含量均低于 Hg^{re} , 达显著性检验 ($P = 0.05$), 表明降雨中汞易转化为较稳定的非活性汞存在,但百分比未有明显差别。

2.2 地表径流各形态汞含量及降雨中汞含量之间的关系

地表径流中汞的形态和降雨中汞的形态进行典型相关分析,三个典型相关系数均未达到显著性检验,第一典型相关系数 $\lambda_1 = 0.68$ ($P = 0.78$)。表明地表径流中汞主要不是来源于降雨。表 3 是地表径流和降雨中汞含量之间的相关系数,地表径流中各形态汞与降雨中各形态汞之间均不相关,两者中汞不是同一来源,并且各形态汞之间转化不是主要过程。雨水降落到地表后将与土壤发生反应,地表径流通过沉淀-溶解、吸附-解吸及络合等各种物理化学过程,将土壤中 Hg^{2+} 和部分汞的络合物溶出,增加了径流中总汞的含量,增加了汞的输出,表 1 中径流中汞的含量远大于降雨,即为这些过程的结果。

地面径流中各形态汞之间不相关,降雨中各形态汞之间只有 Hg^0 与 Hg^{2+} 相关,表明溶解在降水中的 Hg^0 易氧化为 Hg^{2+} 而冲刷到地面。降水和地表径流中

表 1 地表径流和降雨中各形态汞的含量 (ng · mL⁻¹)

Table 1 Contents of mercury in different states in runoff and precipitation water (ng · mL⁻¹)

采样 时间	径 流				降 雨			
	Hg ⁰	Hg ²⁺	Hg ^{re}	Hg ^T	Hg ⁰	Hg ²⁺	Hg ^{re}	Hg ^T
1998-06-29	0.010 0	0.045 0	0.015 0	0.070 0	0.002 5	0.000 0	0.000 0	0.002 5
1998-06-30	0.007 5	0.045 0	0.000 0	0.052 5	0.000 0	0.020 0	0.010 0	0.030 0
1998-07-14	0.000 0	0.012 5	0.030 0	0.042 5	0.007 5	0.000 0	0.005 0	0.012 5
1998-07-16	0.017 5	0.095 0	0.000 0	0.112 5	0.000 0	0.000 0	0.000 0	0.000 0
1998-07-17	0.002 5	0.040 0	0.315 0	0.357 5	0.000 0	0.000 0	0.000 0	0.000 0
1998-07-18	0.010 0	0.032 5	0.065 0	0.107 5	0.002 5	0.017 5	0.030 0	0.050 0
1998-08-03	0.002 5	0.022 5	0.005 0	0.030 0	0.000 0	0.017 5	0.025 0	0.042 5
1998-08-06	0.020 0	0.067 5	0.055 0	0.142 5	0.000 0	0.012 5	0.200 0	0.212 5
1998-08-14	0.000 0	0.075 0	0.072 0	0.147 0	0.000 0	0.002 5	0.095 0	0.097 5
1998-08-17	0.000 0	0.065 0	0.050 0	0.115 0	0.000 0	0.010 0	0.000 0	0.010 0
1999-06-17	0.000 0	0.020 0	0.010 0	0.030 0	0.107 5	0.082 5	0.015 0	0.205 0
1999-06-19	0.000 0	0.010 0	0.045 0	0.055 0	0.035 0	0.045 0	0.000 0	0.080 0
1999-06-20	0.072 5	0.027 5	0.035 0	0.135 0	0.040 0	0.005 0	0.000 0	0.045 0
均值	0.011 0	0.042 9	0.053 6	0.107 5	0.015 0	0.016 3	0.029 2	0.060 6
标准方差	0.019 7	0.026 1	0.082 3	0.086 4	0.031 0	0.023 6	0.057 6	0.072 4

表 2 地表径流和降雨中各形态汞占总汞含量的百分数

Table 2 Percentage of mercury in various states in runoff and precipitation water

采样 时间	径流			降雨		
	Hg ⁰ %	Hg ²⁺ %	Hg ^{re} %	Hg ⁰ %	Hg ²⁺ %	Hg ^{re} %
1998-06-29	14.29	64.29	21.43	100.00	0.00	0.00
1998-06-30	14.29	85.71	0.00	0.00	66.67	33.33
1998-07-14	0.00	29.41	70.59	60.00	0.00	40.00
1998-07-16	15.56	84.44	0.00	—	—	—
1998-07-17	0.70	11.19	88.11	—	—	—
1998-07-18	9.30	30.23	60.47	5.00	35.00	60.00
1998-08-03	8.33	75.00	16.67	0.00	41.18	58.82
1998-08-06	14.04	47.37	38.60	0.00	5.88	94.12
1998-08-14	0.00	51.02	48.98	0.00	2.56	97.44
1998-08-17	0.00	56.52	43.48	0.00	100.00	0.00
1999-06-17	0.00	66.67	33.33	52.44	40.24	7.32
1999-06-19	0.00	18.18	81.82	43.75	56.25	0.00
1999-06-20	53.70	20.37	25.93	88.89	11.11	0.00
均值	10.02	49.26	40.72	31.83	32.63	35.55
标准方差	14.67	25.53	28.63	38.79	32.56	37.78

表 3 地表径流和降雨中各形态汞含量之间的相关系数 (n = 13)

Table 3 Correlation of mercury in various states between
in runoff and precipitation (n = 13)

项目	径流				降水			
	Hg ⁰	Hg ²⁺	Hg ^{re}	Hg ^T	Hg ⁰	Hg ²⁺	Hg ^{re}	Hg ^T
径流 Hg ⁰	1.00							
Hg ²⁺	0.03	1.00						
Hg ^{re}	-0.12	0.00	1.00					
Hg ^T	0.12	0.31	0.92**	1.00				
降水 Hg ⁰	0.11	-0.46	-0.20	-0.30	1.00			
Hg ²⁺	-0.24	-0.45	-0.25	-0.43	0.86**	1.00		
Hg ^{re}	0.02	0.37	0.00	0.11	-0.19	-0.07	1.00	
Hg ^T	-0.02	-0.05	-0.17	-0.18	0.56	0.64	0.69*	1.00

注: * 达到 0.05 显著水平; ** 达到 0.01 显著水平。

的非活性态 Hg^{re} 都与总汞相关, 表明 Hg^{re} 是两者中汞的主要存在形态, 表 2 中 Hg^{re} 的百分含量也直观地表明了 Hg^{re} 是总汞的主要形态。

2.3 地表径流和降雨的理化性质之间的关系

表 4 是采集水样的理化性质, 地表径流与雨水比较, pH、电导率和无机碳增加 (P < 0.05), 氧化还原电位降低, 这是因为雨水与土壤接触后形成的地表径流溶解更多的碳酸盐和可溶性盐分, 使碱性增加, 而降水样品中含有更多氧的结果。

表 5 是地表径流和降雨雨水理化性质之间的相关系数 (n = 13), 地表径流和降雨的理化性质之间的相关系数均未达到显著水平, 表明两者之间存在差

表4 地表径流和降雨的理化性质

Table 4 Physical and chemical properties of runoff and precipitation

采样时间	径流						降水					
	pH	EC / $\mu\text{O} \cdot \text{cm}^{-1}$	Eh /mv	TOC / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	TIC / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	TC / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	pH	EC / $\mu\text{O} \cdot \text{cm}^{-1}$	Eh /mv	TOC / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	TIC / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$	TC / $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$
1998-06-29	8.12	215	160	85.5	25.5	110.8	7.35	179	150	92.1	19	111.1
1998-06-30	8.3	305	145	38.1	26.6	64.7	8	147	625	27	13.7	40.7
1998-07-14	8.46	368	167	29.2	33.2	62.4	7.43	183	350	34.7	13.3	48
1998-07-16	8.02	230	166	86.7	33.4	120.1	7.37	182	91	131.5	6.7	138.2
1998-07-17	8.24	402	148	42.7	27.2	69.9	7.23	208	105	92.1	22	114.1
1998-07-18	8.15	230	179	22.9	14.1	37	7.01	198	480	83.6	0	83.6
1998-08-14	7.97	510	166	39.2	17.6	56.8	8.15	179	92	44.6	30	74.6
1998-08-17	8.31	410	158	55.5	28.6	84.1	7.02	207	40.5	141.5	24.3	166.2
1998-08-03	8.52	293	148	46.6	28.7	75.3	7.42	187	120	44.3	8.4	52.7
1998-08-06	8.07	188	166	30.7	10.8	41.5	7.13	205	57	65	16.7	81.7
1999-06-17	10.65	365	255	44	17.4	61.4	7.11	215	77.8	46	16.1	62.1
均值	8.4	319.6	168.9	47.4	23.9	71.3	7.4	190.0	198.9	72.9	15.5	88.5
标准方差	0.8	100.4	30.3	21.1	7.7	25.7	0.4	19.3	195.9	38.7	8.5	39.8

注:表4中1999年的二个样品没有测定理化性质。

表5 地表径流和降雨的理化性质之间的相关系数($n=13$)Table 5 Correlation of physical and chemical properties of runoff and precipitation ($n=13$)

性质	径流						降水						
	pH	Eh	EC	TOC	TIC	TC	pH	Eh	EC	TOC	TIC	TC	
径流	pH	1.00											
	Eh	0.88**	1.00										
	EC	0.17	0.07	1.00									
	TOC	-0.11	-0.10	-0.25	1.00								
	TIC	-0.16	-0.41	0.14	0.49	1.00							
	TC	-0.14	-0.20	-0.16	0.97**	0.70*	1.00						
降水	pH	-0.27	-0.32	0.40	-0.03	0.13	0.01	1.00					
	Eh	0.41	0.49	0.08	-0.14	-0.35	-0.22	-0.79**	1.00				
	EC	-0.14	-0.19	-0.19	-0.41	0.04	-0.32	0.30	-0.63*	1.00			
	TOC	-0.30	-0.16	-0.17	0.59	0.24	0.56	-0.53	0.37	-0.43	1.00		
	TIC	-0.03	-0.07	0.69	0.07	-0.05	0.04	0.34	0.10	-0.48	0.01	1.00	
	TC	-0.29	-0.17	-0.01	0.59	0.22	0.55	-0.44	0.38	-0.52	0.98**	0.23	1.00

注:*达到0.05显著水平; **达到0.01显著水平。

别,雨水降到地面形成地表径流后性质发生了变化。

2.4 地表径流中不同形态汞含量与性质之间的关系

表6是地表径流中汞含量与理化性质之间的典型相关分析结果,只有第一典型相关系数($R=0.962$)达到显著相关($P=0.062$),表明汞形态受地表径流显著的影响。第一典型变量构成为:

$$u_1 = -0.540\text{Hg}^0 - 0.077\text{Hg}^{2+} + 0.900\text{Hg}^{\text{re}}$$

表6 地表径流中汞含量与理化性质之间的典型相关分析结果

Table 6 Typical evaluation of correlation between contents and properties of mercury in runoff water

第一组	第二组	相关系数	自由度	χ^2 统计量	显著水平
地表径流	性质性状	$\lambda_1 = 0.962$	18	28.0	0.062
(3个变量)	(6个变量)	$\lambda_2 = 0.876$	10	12.4	0.257
		$\lambda_3 = 0.678$	4	3.69	0.449

$$v_1 = -0.132\text{pH} - 0.101\text{EC} + 0.155\text{Eh} - 0.260\text{TOC} - 0.031\text{TIC} - 0.248\text{TC}$$

由典型变量构成可知,地表径流中可挥发性汞(Hg^0)和非活性态汞(Hg^{re})系数绝对值较大,表明易受地表径流性质的影响。地表径流性质中无机碳系数绝对值小,其作用不大,而其它性质,特别是有机碳和总碳的系数绝对值相对较大,对地表径流中汞的形态影响很大。地表径流中有机碳含量高,其可溶解部分络合土壤中的汞形成非活性汞,表明地表径流的性质影响着汞的形态和分布,使实验地块土壤中的汞被溶出,增加汞向附近水体中输入。

2.5 地表径流中汞输出的估算

表7是地面径流量、降水量及输出汞量。从表中可看出,以此法收集的地表径流量重复性较好,地表

表 7 地面径流量、降水量及输出汞量

Table 7 Contents of runoff, precipitation water and outlet mercury

采样时间	池 1 水深/cm	池 2 水深/cm	平均水深/cm	降水量/mm	Hg ^T /ng · mL ⁻¹	输出汞量/μg · m ⁻²
1998-06-30	2.9	2.6	2.75	10	0.07	0.053
1998-07-01	3.5	4.0	3.75	13	0.052 5	0.054
1998-07-14	62.6	67.6	65.1	55.6	0.042 5	0.763
1998-07-16	20.2	23.8	22	32.2	0.112 5	0.682
1998-07-17	19.2	19	19.1	18.6	0.357 5	1.882
1998-07-18	10.5	11.2	10.85	10.9	0.107 5	0.321
1998-08-03	12.3	14.2	13.25	14.4	0.03	0.110
1998-08-06	10.2	10.6	10.4	12.5	0.142 5	0.408
1998-08-14	56.8	54.2	55.5	40.9	0.147	2.248
1998-08-17	11.2	11.8	11.5	13.6	0.115	0.364
总量			214.2	221.7		6.886
均值			21.42	22.17	0.117 7	0.689
标准方差			18.217	13.679	0.093 7	0.769

注: 1999 年没有测量地面径流量。

径流量和降水量存在良好的相关性 ($R = 0.96$), 达到显著性检验 ($P < 0.01$), 而地表径流中汞含量与地表径流量 ($R = -0.012$) 和降水量 ($R = 0.085$) 均不相

关, 表明地面径流中汞的浓度不受降水量和地面径流量的影响, 仅与其性质有关。地表径流输出汞量计算公式如下:

$$\text{输出汞量}(\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}) = \frac{\text{地表径流汞浓度}(\text{Hg}^{\text{T}}) \times 0.53 \times 0.52 \times \text{池中水深}/100 \times 1000}{10}$$

北京市降水主要集中在夏天雨季, 从表 7 中看出, 降水 10 mm 时即可产生地表径流, 1998 年实际测量可产生地表径流的降水量为 587.3 mm, 由此可估算出年地表径流进入水体的输出汞率为 18.24 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$, 因降水的不均匀性, 这种方法得到的值可能偏大。

3 小结

地表径流中的汞含量大于降水中的汞的含量, 降水产生的地表径流可溶解土壤中汞向水体中输送或渗入地下。统计结果表明, 地表径流中的汞含量不完全是降水中的汞, 而是与土壤接触可溶解土壤中的汞。地表径流的性质影响汞的溶解和汞的形态, 地表径流年汞输出率约为 18.24 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$ 。

参考文献:

[1] Edward B Swain, Daniel R Engstrom, Mark E Brigham, Thomas A Henning and Patrick L Brezonik. *Science*, 1992, **257**(7): 784 - 787.
 [2] James P Hurley, et al. Influences of Watershed Characteristics on Mercury Levels in Wisconsin Rivers[J]. *Environmental Science & Technology*, 1995, **29**(7): 1 867 - 1 875.

[3] Keeler, et al. Particulate Mercury in the Atmosphere: Its Significance, Transport, Transformation and Sources[J]. *Water Air and Soil Pollution*, 1995, 80: 159 - 168.
 [4] Lindberg S E, et al. Application of Throughfall Methods to Estimate Dry Deposition of Mercury[A]. In: Carl J Watras and John W Huckabee. Mercury Pollution Integration and Synthesis[C]. Lewis Publishers, 1994.
 [5] Mae Sexauer, et al. Atmospheric Mercury Concentrations Associated with Geologically and Anthropogenically Enriched Sites in Central Western Nevada[J]. *Environmental Science & Technology*, 1996, **30**(8): 2 572 - 2 579.
 [6] Molnar A, Meszaros E, Polyak K, Borbel - kiss I, Koltay E and Szabo Gy. Atmospheric budget of different elements in aerosol particles over Hungary[J]. *Atmospheric Environment*, 1995, **29** (15): 1 821 - 1 828.
 [7] N Pirrone, et al. Ambient Levels and Deposition Fluxes of mercury to Lakes Huron, Erie and St Clair[J]. *Water Air and Soil Pollution*, 1995, 80: 179 - 188.
 [8] Nicola Pirrone, et al. Regional Differences in Worldwide Emissions of Mercury to the Atmosphere[J]. *Atmospheric Environment*, 1996, **30** (17): 2 981 - 2 987.
 [9] R Ferrara, et al. Could the Geothermal Power Plant at Mt Amiata (Italy) be a Source of Mercury Contamination[A]? In: Carl J Watras and John W Huckabee. Mercury Pollution Integration and Synthesis[C]. Lewis Publishers, 1994.