

ОРИГИНАЛЬНАЯ СТАТЬЯ

**ПРЯМОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ РТУТИ В КРОВИ  
НА УРОВНЕ ТОКСИЧЕСКОЙ КОНЦЕНТРАЦИИ  
МЕТОДОМ АТОМНО-АБСОРБЦИОННОЙ СПЕКТРОМЕТРИИ  
С ЭЛЕКТРОТЕРМИЧЕСКОЙ АТОМИЗАЦИЕЙ**

**DIRECT DETERMINATION OF TOXIC LEVEL BLOOD MERCURY  
BY GRAPHITE FURNACE ATOMIC ABSORPTION SPECTROMETRY**

**Н.Д. Соловьев<sup>1,2\*</sup>, А.А. Иваненко<sup>1</sup>, Г.В. Рутковский<sup>1</sup>,  
Н.Б. Иваненко<sup>1,2</sup>, Е.Б. Носова<sup>2</sup>  
N.D. Solovyev<sup>1,2\*</sup>, A.A. Ivanenko<sup>1</sup>, G.V. Rutkovskiy<sup>1</sup>,  
N.B. Ivanenko<sup>1,2</sup>, E.B. Nosova<sup>2</sup>**

<sup>1</sup> Федеральное государственное учреждение науки «Институт токсикологии» Федерального медико-биологического агентства России, Санкт-Петербург

<sup>2</sup> Федеральное государственное учреждение высшего профессионального образования «Санкт-Петербургский государственный университет», Санкт-Петербург

<sup>1</sup> Federal state institution of science «Institute of toxicology» of Federal Medico-biological agency of Russia, St.Petersburg, Russia

<sup>2</sup> Federal state institution of high professional education «Saint Petersburg state university», St.Petersburg, Russia

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ртуть, определение микроэлементов в крови, атомно-абсорбционная спектрометрия, анализ без разложения проб

**KEY WORDS:** mercury, trace elements determination in blood, atomic absorption spectrometry, analysis without digestion

**РЕЗЮМЕ:** Ртуть является высокотоксичным микроэлементом. Контакт с ртутью имеет место как в научных и производственных условиях, так и в быту. Поэтому необходимы надежные, простые и доступные методы контроля концентрации ртути в различных природных и биологических объектах, в том числе и крови. Определение ртути в крови необходимо как для клинической диагностики, так и для экологического мониторинга загрязнения ртутью. В данной работе предложена методика определения ртути в крови на основе атомно-абсорбционной спектрометрии с графитовым атомизатором. Методика не требует предварительного разложения пробы, т.е. элементное определение возможно провести в течение нескольких минут после отбора пробы. Диапазон определяемых содержаний от 10 до 430 мкг/л, т.е. отвечает токсическому уровню ртути в крови при воспроизводимости 5–10% с.к.о. Правильность оценена методом стандартных добавок и сравнением результатов с другим методом. Разработанная методика была аттестована Уральским НИИ Метрологии в 2009 году.

**ABSTRACT:** Mercury is known to be highly toxic trace element. Contact with mercury can occur not only in industrial or scientific conditions but also just at home. Thus, uncomplicated and reliable methods of mercury determination in different environmental and biological objects, including blood, are needed. Blood mercury determination is important both to clinical diagnostics and environmental studies of mercury pollution. In current article new technique of blood mercury determination by graphite furnace atomic absorption spectrometry is suggested. This technique does not require sample digestion i.e. one analysis takes only few minutes since sampling. Dynamic range is 10–430 µg/L with precision 5–10% RSD. Accuracy was estimated by spiked blood samples analysis and comparison the results to other method. Technique was certified by Ural institute of Metrology in 2009.

**ВВЕДЕНИЕ**

Ртуть относится к высокотоксичным тяжелым металлам. Концентрация ртути нормируется в таких биологических объектах, как кровь, моча и плаз-

\* Адрес для переписки: Соловьев Николай Дмитриевич; E-mail: nicksolovev@gmail.com

ма крови, поэтому необходимы методики контроля ее содержания в этих объектах.

При поступлении в организм человека ртуть распределяется по всем органам и тканям. Наибольшее количество ее находят в почках, наименьшее — в печени. Из организма ртуть в основном выводится с мочой, частично кишечником, слюной и потом.

При помощи радиоактивной ртути установлено, что задерживается она главным образом в почках. Выделение ртути осуществляется достаточно медленно, через 2 недели после введения ртутного препарата остается еще 1/3 дозы (Коломийцева, Габович, 1970).

Задача определения ртути в крови, в силу малых концентраций, решается чувствительными физико-химическими методами анализа. Методики определения ртути в биообъектах достаточно разнообразны, однако самым распространенным является метод атомной абсорбции холодных паров ртути (Cold Vapour Atomic Absorption Spectrometry) (Dominski, Shrader, 1985; Lopez-Colon et al., 2001), хотя используются и другие методы, такие, как масс-спектрометрический анализ с использованием индукционно связанной плазмы в качестве источника ионов (ICP-MS) (Иванов и др., 2003; Подунова и др., 2003; Gouille et al., 2005) и радиоактивационный анализ (Horvat et al., 1988; Versieck et al., 1990).

Цельная кровь относится к объектам со сложным матричным составом, поэтому аналитические определения микроэлементов, к которым относится и ртуть, как правило, осложнены предварительной пробоподготовкой, что понижает экспрессность анализа, которая может являться жизненно важной в медицинско-диагностической практике. Таким образом, создание методики прямого определения ртути в крови является актуальной задачей.

В данной работе разработан способ прямого определения ртути в цельной крови методом атомно-абсорбционной спектрометрии с электротермической атомизацией (ААС-ЭТА).

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

### Средства измерений

Спектрометр атомно-абсорбционный МГА-915. Колбы мерные 2 — 50 — 2, 2 — 100 — 2.

Пипетки градуированные, второго класса точности, вместимостью 1, 2, 5 и 10 см<sup>3</sup>.

Одноканальные пипетки переменного объема 5—50 мм<sup>3</sup> (дозаторы). Погрешность измерения — не более 5%.

Одноканальная пипетка переменного объема 1—5 см<sup>3</sup> (дозатор). Погрешность измерения не более 5%.

Вспомогательные устройства.

Деионизатор Аквилон Д-301.

### Стандартные образцы и реактивы

Государственный стандартный образец ионов Hg(II), массовой концентрации 1 г/дм<sup>3</sup>, ГСО 8004-

93-: -8006-93, ГДВИ.410408.009ПС, изготовитель ГУП «Центр контроля воды».

Вода деионизированная, сопротивление 18,2 МОм · см.

Модификатор — вольфрамат натрия, ГОСТ 18289-78.

Модификатор — нитрат палладия, массовой концентрации  $10 \pm 0,2$  г/дм<sup>3</sup> фирмы Merck.

Модификатор — гексагидрат платинохлороводородной кислоты, фирмы Merck.

Кислота азотная концентрированная ос.ч. по ГОСТ 11125-84, ОАО «Реактив».

Бихромат калия, ГОСТ 4220.

Аргон газообразный высокой чистоты ТУ 6-21-12-94, ЗАО «Лентехгаз».

Все реактивы были предварительно проверены на содержание ртути.

### Подготовка посуды

Посуда предварительно отмывается водопроводной водой, затем несколько раз оmyвается серной кислотой. После промывания посуды дистиллированной водой (не менее 5 раз) ее окончательно ополаскивают деионизированной водой (2—3 раза).

### Приготовление вспомогательных растворов

Раствор азотной кислоты, объемная доля 2%: в мерную колбу вместимостью 500 см<sup>3</sup> помещали 10 см<sup>3</sup> концентрированной азотной кислоты, раствор доводили до метки деионизированной водой и перемешивали.

Раствор модификатора (Pd(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>), концентрация 1 г/дм<sup>3</sup>: в мерную колбу вместимостью 50 см<sup>3</sup> помещали 5 см<sup>3</sup> раствора модификатора концентрации 10 г/дм<sup>3</sup>, раствор доводили до метки деионизированной водой и перемешивали.

### Приготовление рабочих стандартных растворов

Раствор ионов ртути (II), концентрация 1 мг/дм<sup>3</sup>: в мерную колбу вместимостью 100 см<sup>3</sup> помещали при помощи дозатора 0,1 см<sup>3</sup> раствора ионов ртути (концентрация 1 г/дм<sup>3</sup>), 1 г бихромата калия для поддержания постоянства окислительного потенциала, доводили до метки раствором азотной кислоты (объемная доля 2%) и перемешивали.

Раствор ионов ртути (II), концентрация 2 мг/дм<sup>3</sup>: в мерную колбу вместимостью 100 см<sup>3</sup> помещали при помощи дозатора 0,2 см<sup>3</sup> раствора ионов ртути (концентрация 1 г/дм<sup>3</sup>), 1 г бихромата калия для поддержания постоянства окислительного потенциала, доводили до метки раствором азотной кислоты (объемная доля 2%) и перемешивали.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

### Выбор модификатора поверхности графитовой печи

Первоначальный подбор оптимальных условий определения ртути проводился на водных стандартных растворах ртути, приготовленных из ГСО ртути.

Было установлено: при определении ртути методом ААС-ЭТА с графитовым атомизатором без использования модификаторов поверхности печи аналит не дает заметного сигнала. Для повыше-

ния температуры атомизации были использованы перманентные модификаторы — вольфрамат натрия ( $\text{Na}_2\text{WO}_4$ ) и гексахлоплатиновая кислота ( $\text{H}_2\text{PtCl}_6$ ). Для модификации поверхности графитовую печь погружали в раствор соответствующего модификатора и использовали высокотемпературный отжиг. Процедуру повторяли шесть раз. В процессе отжига  $\text{Na}_2\text{WO}_4$ , взаимодействуя с углеродом, восстанавливается до карбида вольфрама (WC), который помимо прочего способствует защите графитовой поверхности от агрессивных воздействий компонентов пробы.  $\text{H}_2\text{PtCl}_6$  образует на поверхности печи тонкий слой элементарной платины. Режимы вольфрамирания и платинирования представлены в таблице 1.

Затем вводили в модифицированную печь пробы стандартного раствора ионов ртути концентрацией  $200 \text{ мкг/дм}^3$  объемом  $10 \text{ мм}^3$  и измеряли аналитический сигнал абсорбции ртути. Результаты представлены в таблице 2.

Анализ данных показывает, что применение послойной модификации, т.е. сначала вольфрамирания, а затем платинирования, приводит к значительному увеличению аналитического сигнала. Сходимость результатов при этом наилучшая. Все дальнейшие исследования проводили с использованием именно такой модификации поверхности печи.

#### Выбор температуры пиролиза и атомизации

Правильно выбранная температурно-временная программа нагрева печи должна обеспечивать оптимальное проведение каждого этапа анализа.

#### Выбор температуры пиролиза

Стадия пиролиза позволяет перевести анализируемый элемент в удобную для атомизации форму. На этом этапе проходят различные термохимические реакции с участием как компонентов пробы, так и вводимых в пробу веществ, в частности модификаторов. В результате происходит частичное разложение составляющих матрицы и удаление летучих продуктов с током аргона. Температу-

ра пиролиза выбирается достаточно высокой, чтобы максимально полно разложить матрицу, но при этом исключить потери аналита. При правильно выбранных параметрах пиролиза обеспечивается правильность проведенного анализа.

Для выбора температуры пиролиза регистрировали аналитический сигнал абсорбции ртути, вводя в атомизатор  $10 \text{ мм}^3$  раствора с концентрацией ионов ртути  $200 \text{ мкг/дм}^3$ . Температуру пиролиза изменяли от  $250$  до  $550 \text{ }^\circ\text{C}$  при прочих равных условиях. Результаты представлены на рис. 1.

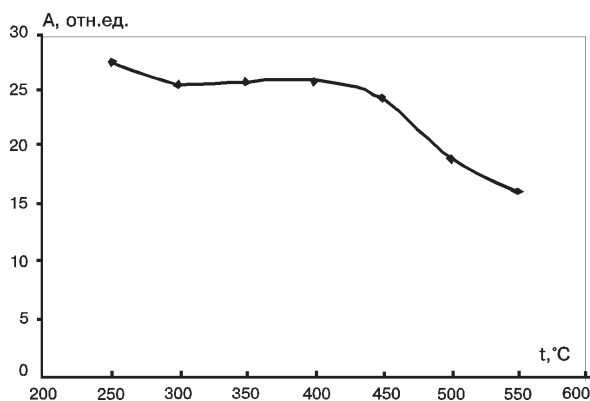


Рис. 1. Зависимость аналитического сигнала абсорбции ртути от температуры пиролиза

График зависимости аналитического сигнала от температуры пиролиза представляет собой плато от  $250$  до  $400 \text{ }^\circ\text{C}$ , при дальнейшем повышении температуры пиролиза происходит уменьшение аналитического сигнала. Таким образом, при определении ртути целесообразно использовать температуру  $350 \text{ }^\circ\text{C}$  — центральную область плато.

#### Выбор температуры атомизации

На этом этапе регистрируют аналитический сигнал абсорбции. При атомизации пробы происходит образование облака свободных атомов анализируемого элемента в ограниченном объеме

Таблица 1. Температурно-временные условия модификации поверхности графитового атомизатора

Модификатор	Сушка		Пиролиз 1		Пиролиз 2		Атомизация		Очистка	
	t, с	T, °C	t, с	T, °C	t, с	T, °C	t, с	T, °C	t, с	T, °C
$\text{Na}_2\text{WO}_4$	60	100	20	500	2	1600	2	2350	2	2400
$\text{H}_2\text{PtCl}_6$	60	100	20	500	2	1400	2	2350	2	2350

Таблица 2. Выбор модификатора поверхности графитовой печи

Модификатор поверхности печи	Средний аналитический сигнал (n = 5)	Относительное с.к.о., %
Немодифицированная печь	1,8	19,2
$\text{Na}_2\text{WO}_4$	24,4	10,1
$\text{Na}_2\text{WO}_4$ и $\text{H}_2\text{PtCl}_6$	27,6	3,5

атомизатора. Чувствительность анализа определяется плотностью атомного облака. Для формирования наибольшей плотности необходимо максимально быстрое поднятие температуры. Температура этой стадии должна быть оптимальной для полной атомизации пробы. Оптимальной считается наименьшая температура при максимальном аналитическом сигнале. Исходя из этого критерия, была выбрана температура атомизации 1250 °С.

В таблице 3 приведены условия атомно-абсорбционного определения ртути.

#### Построение градуировочного графика и оценка предела обнаружения

Построение градуировочного графика проводили с использованием водных стандартных растворов ионов  $Hg^{2+}$ . В графитовую печь атомно-абсорбционного спектрометра дозатором вводили 10 мм<sup>3</sup> раствора с концентрацией ртути 20, 40, 50, 100, 200, 400, 1000 мкг/л, что соответствует 200, 400, 500, 1000, 2000, 4000 и 10 000 пг. Измеряли аналитический сигнал ртути в выбранных условиях. Каждое измерение повторяли пять раз и рассчитывали среднее арифметическое значение интегрального аналитического сигнала.

Оказалось, что в области от 0 до 6000 пг наблюдается линейная зависимость аналитического сигнала от содержания ртути. Таким образом, данная область может быть использована для аналитических определений.

Контроль стабильности градуировочной зависимости состоял в проведении однократного анализа аликвоты раствора, содержание ртути в которой отвечало середине линейного участка градуировочной зависимости. Градуировка признавалась стабильной, если расхождение между заданным и измеренным значением концентрации не превышало 15%. При несоответствии полученного ре-

зультата указанному нормативу процесс градуировки повторялся.

После построения градуировочного графика по  $3\sigma$ -критерию был оценен предел обнаружения ( $n = 8$ ), он оказался равным 6 пг.

#### Определение ртути в крови

Сложный органический состав крови приводит к большим значениям неселективного поглощения — для неразбавленной крови оно, как правило, превышает 95%. К тому же вязкую неразбавленную кровь плохо дозировать. Следовательно, необходимо производить разбавление крови. Для выбора фактора разбавления измеряли аналитический сигнал ртути в крови человека, разбавленной в 2, 3, 4, 6, 8 и 10 раз. Оказалось, что десятикратное разбавление крови решает проблему дозирования.

Отбор и хранение проб осуществляли соответственно рекомендациям «Лабораторных методов исследования в клинике» (Меньшиков, 1987).

#### Влияние хлорид-иона

Основным анионным компонентом крови является хлорид-ион, его концентрация составляет 0,9 массовых %. После десятикратного разбавления концентрация уменьшится до примерно 0,1 массового %. Известно, что хлориды ртути  $HgCl_2$  и  $Hg_2Cl_2$  обладают значительной летучестью при достаточно низких температурах (температура кипения  $HgCl_2$  составляет 301,8 °С,  $Hg_2Cl_2$  — 383,7 °С); кроме того, ртуть обладает достаточной склонностью к образованию этих соединений (они относятся к малодиссоциированным незаряженным комплексам). Влияние хлорид-иона оценивалось по модельным растворам, содержащим ионы  $Hg^{2+}$  и  $Cl^-$ .

Проводили сравнение аналитических сигналов для растворов с одинаковой концентрацией ионов ртути в присутствии хлорид-иона и без него. Результаты представлены в таблице 4.

Таблица 3. Температурно-временная программа нагрева графитового атомизатора при определении ртути

Сушка		Пиролиз		Атомизация		Очистка		Модификаторы
t, с	T, °С	t, с	T, °С	t, с	T, °С	t, с	T, °С	
60	80	20	350	2	1210	2	1600	$Na_2WO_4$ ; $H_2PtCl_6$

Таблица 4. Влияние хлорид-иона при определении ртути,  $t_{10; 0,95}^{табл.} = 2,23$

Концентрация $Cl^-$ , масс. %	Концентрация $Hg^{2+}$ , мкг/дм <sup>3</sup>	Средний аналитический сигнал ( $n = 6$ )	С.к.о.	Отн. с.к.о., %	$t_{вычисл.}$
0,0	50	6,8	0,40	5,9	2,07
0,1	50	6,2	0,46	7,4	
0,0	100	14,4	0,73	5,1	2,13
0,1	100	11,1	1,08	9,7	
0,0	200	22,6	1,86	8,2	1,95
0,1	200	20,8	1,52	7,3	

Из данных таблицы 4 следует, что аналитические сигналы для указанных растворов несколько отличаются. Для проверки значимости расхождения вычисленный коэффициент Стьюдента сравнивали с табличным значением для заданного числа степеней свободы  $F$  и доверительной вероятности  $\alpha = 0,95$ . Оказалось, что  $t_{\text{вычисл.}} < t_{10; 0,95}^{\text{табл.}}$ . Следовательно, отличия в аналитических сигналах незначимы. Таким образом, хлорид-ион не оказывает влияния на определение ртути в выбранных условиях.

**Выбор модификатора окисления**

Для уменьшения матричных эффектов при анализе крови и улучшения соотношения сигнал/шум были использованы следующие приемы — десятикратное разбавление, модификация поверхности графитового атомизатора, пиролиз. Однако оказалось, что при анализе крови этого недостаточно, поэтому был использован модификатор окисления — раствор нитрата палладия ( $\text{Pd}(\text{NO}_3)_2$ ), который на стадии пиролиза способствует окислительному разложению органической матрицы крови. Аликвотную порцию раствора модификатора (концентрация 1 г/дм<sup>3</sup>) вводили в атомизатор непосредственно после ввода пробы крови.

В таблице 5 приведены результаты определения ртути в крови (объем пробы 10 мм<sup>3</sup>) с использованием модификатора-окислителя.

Из данных таблицы 5 следует, что без модификатора аналитический сигнал ртути отсутствует, а при использовании модификатора сигнал существенно возрастает. Таким образом, предложены

следующие условия определения ртути в крови методом ААС-ЭТА:

1. Модификация поверхности графитовой печи  $\text{Na}_2\text{WO}_4$ , а затем  $\text{H}_2\text{PtCl}_6$ .
2. Пиролиз в течение 20 с при температуре 350 °С.
3. Десятикратное разбавление образца крови деионизированной водой.
4. Использование раствора  $\text{Pd}(\text{NO}_3)_2$  в качестве модификатора-окислителя.

С использованием разработанной методики был проведен анализ реальных объектов — крови крыс, отравленных соединениями ртути. Параллельно анализ данных образцов проводили другим методом — методом атомной абсорбции холодных паров на приборе РА-915+ с пироприставкой «ПИРО-915+». Техника работы для данной методики изложена в статье С. Шолупова и др. (Sholupov et al., 2003).

В таблице 6 приведены результаты, полученные предложенным нами способом (ААС-ЭТА) и способом холодных паров.

Из данных таблицы 6 следует, что разница в результатах, полученных разными способами в разных лабораториях, обусловлена статистическим разбросом: рассчитанные значения *t*-критерия Стьюдента не превышают табличного значения  $t_{\alpha=0,95; F=8}$ . Следовательно, результаты статистически не различаются. Таким образом, анализ, проведенный на приборе РА-915+ с пироприставкой ПИРО-915+, подтверждает правильность предложенного способа определения ртути в крови методом ААС-ЭТА.

Таблица 5. Результаты определения ртути в крови

Объем добавки модификатора, мм <sup>3</sup>	Средний аналитический сигнал (n = 5)	Концентрация ртути, мкг/л
0	0	0
5	0,22	1,6
7,5	0,024	1,7

Таблица 6. Результаты  $\bar{C}$  определения ртути в крови крыс, полученных разными методами,  $t_{\alpha=0,95; F=8}^{\text{табл.}} = 2,31$

Номер образца	ААС-ЭТА		Холодные пары		Рассчитанный t-критерий
	$\bar{C}$ , мкг/дм <sup>3</sup>	$\pm \Delta_{6; 0,95}$	$\bar{C}$ , мкг/дм <sup>3</sup>	$\pm \Delta_{6; 0,95}$	
1	210	24,0	240	12,1	1,39
2	194	16,6	206	9,8	0,79
3	120	12,9	99	9,2	1,97
4	41	3,7	45	2,7	1,14
5	29	2,6	28	1,1	0,22
6	62	4,8	59	2,9	0,68

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В предложенной работе нам удалось разработать способ прямого определения ртути в крови методом атомно-абсорбционной спектроскопии с электротермической атомизацией, оценив влияние основного мешающего фактора — хлорид-иона. Предложенный способ позволяет определять верхнюю норму содержания ртути в крови 10 мкг/л. Приближение концентрации ртути в крови к этому значению говорит о возможном контакте пациента с металлической ртутью или ее соединениями, а превышение этого нормативного значения непосредственно указывает, что подобный контакт имел место. В этом случае необходима быстрая и своевременная диагностика, чтобы вовремя назначить правильное лечение интоксикации.

Предложенный способ анализа крови на содержание ртути позволяет быстро (вместе с пробоотбором анализ занимает около 10 мин) определить, имеет ли место превышение содержания ртути в крови. К сожалению, нам не удалось добиться чувствительности, позволяющей определять ртуть в крови здоровых, не контактировавших с ртутью людей.

### ЛИТЕРАТУРА

Иванов С.И., Подунова Л.Г., Скачков В.Б., Тутельян В.А., Скальный А.В., Демидов В.А., Скальная М.Г., Серебрянский Е.П., Грабеклис А.Р., Кузнецов В.В. Определение химических элементов в биологических средах и препаратах методами атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно связанной плазмой и масс-спектрометрией: Методические указания (МУК 4.1.1482-03, МУК 4.1.1483-03). М.: ФЦГСЭН МЗ РФ, 2003. 56 с.

Коломийцева М.Г., Габович Р.Д. Микроэлементы в медицине. М.: Медицина, 1970. 224 с.

Меньшиков В.В. Лабораторные методы исследования в клинике. М.: Медицина, 1987. 175 с.

Подунова Л.Г., Скачков В.Б., Скальный А.В., Демидов В.А., Скальная М.Г., Серебрянский Е.П., Грабеклис А.Р., Кузнецов В.В., Тимофеев П.В. Методика определения микроэлементов в диагностируемых биосубстратах методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой. Методические рекомендации. М.: ФЦГСЭН МЗ РФ, 2003. 24 с.

Dominski P., Shrader D. Atomated cold vapor determination of mercury: EPA stannous chloride methodology // Atomic Absorption. 1985, N AA-51.

Goullé J.-P., Mahieu L., Castermant J., Neveu N., Bonneau L., Lainé G., Bouige D., Lacroix C. Metal and metalloid multi-elementary ICP-MS validation in whole blood, plasma, urine and hair: reference values // Forensic Science International. 2005, 153:39—44.

Horvat M., May K., Stoepler M., Byrne A.R. Comparative studies of methylmercury determination in biological and environmental samples // Applied Organometallic Chemistry. 1988, 2:515.

Lopez-Colon J.L., Veiga D., Montela A., Manuel De Pradena J., Lozano R. Determination of mercury in blood by cold vapor atomic spectrometry // At Spectrom. 2001, 22(2):284.

Sholupov S., Pogarev S., Ryzhov V., Mashyanov N., Stroganov A. Zeeman atomic absorption spectrometer RA-915+ for direct determination of mercury in air and complex matrix samples // Fuel Processing Technology. 2003, 85:473—485.

Versieck J., Vanballenberghe L., Wittoek A., Vermeir G., Vandecasteele C. Determination of mercury in human serum and packed blood cells by neutron activation analysis // Biol Trace Elem Res. 1990, 26—27:683.