

J. Lake Sci. (湖泊科学), 2006, **18**(6):565–571
 http://www.jlakes.org. E-mail: jlakes@niglas.ac.cn
 © 2006 by *Journal of Lake Sciences*

季节性缺氧水库甲基汞的产生及其对下游水体的影响*

何天容^{1,2,4}, 冯新斌¹, 李仲根^{1,2}, 仇广乐^{1,2}, 白微杨^{1,2}, LIANG Lian³, LU Julia⁴

(1: 中国科学院地球化学研究所, 环境地球化学国家重点研究实验室, 贵阳, 550002)

(2: 中国科学院研究生院, 北京, 100039)

(3: Cebam Analytical, Inc., 3927 Aurora Ave. N Seattle, WA 98103, U. S. A.)

(4: Department of Chemistry and Biology, Ryerson University, 350 Victoria St., Toronto, Canada)

摘要: 本文采用蒸馏-乙基化结合 GC-CVAFS 法对贵州红枫湖水库及其各入库和出库河流中的甲基汞时空分布和控制因素进行了研究。在春、秋、冬季节总甲基汞浓度和分布无明显时空变化, 在 0.053–0.333 ng/L 之间。春季河流是水库甲基汞一个重要的输入源。夏季水库下层甲基汞显著升高, 缺氧层最高值达 0.923 ng/L。同时发现, 缺氧层升高的甲基汞主要来自于水体自己产生或上层水体甲基汞的沉降, 而不是来自于沉积物的释放。各季节湖水和河流样品的总甲基汞和溶解氧存在显著的负相关关系, Personal 相关系数 r 为 -0.81 ($n = 78$)。在春、秋、冬季节溶解态甲基汞比例略低于颗粒态甲基汞, 但在夏季, 特别是缺氧层, 甲基汞主要以溶解态存在。夏季河流水经水库蓄水后, 到再流出时已经富含甲基汞, 出库河流中总甲基汞浓度已达到各入湖河流总甲基汞平均值的 5.5 倍, 很明显在夏季红枫湖已成为下游水体甲基汞的输入源, 必将会对下游生态系统产生一定影响。

关键词: 红枫湖; 下游水体; 甲基汞; 溶解氧; 时空分布

Buildup of methyl mercury in a seasonal anoxic reservoir and impact on downstream

HE Tianrong^{1,2,4}, FENG Xinbin¹, LI Zhonggen^{1,2}, QIU Guangle^{1,2}, BAI Weiyang^{1,2}, LIANG Lian³ & LU Julia⁴

(1: State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, P. R. China)

(2: Graduate School of the Chinese Academy Science, Beijing 100039, P. R. China)

(3: Cebam Analytical Inc., 3927 Aurora Ave. N Seattle, WA 98103, U. S. A.)

(4: Department of Chemistry and Biology, Ryerson University, 350 Victoria St., Toronto, Canada)

Abstract: In the present study, spatial and temporal distribution of methyl mercury in Hongfeng reservoir were investigated by distillation followed by aqueous phase ethylation, precollection on a Tenax, isothermal gas chromatography and cold vapor atomic fluorescence detection. Total methyl mercury (TMeHg) concentrations have no discernible difference (0.05 to 0.33ng/L) in spring, autumn and winter. In spring, the methyl mercury in the inflows was important source of methyl mercury in reservoir. In summer, methyl mercury concentration increased significantly, and the highest value was up to 0.923ng/L in the hypolimnion. The spatial distribution in summer suggested methylation in the water column and sedimentation of particle were responsible for the evaluated methyl mercury other than the release of sediment. There was a discernible negative relationship between methyl mercury and dissolved oxygen ($r = -0.81$, $n = 78$). In spring, autumn and winter, the proportion of dissolved methyl mercury (DMeHg) was lower than that of particulate methyl mercury, but most of methyl mercury was dissolved in hypolimnion in summer. The outflow of reservoir was rich in methyl mercury in summer, and the value was 5.5 times higher than that in the inflows. MeHg-enriched water from anoxic hypolimnia in reservoir also was discharged and potentially transported downstream where it could affect the ecosystem below the reservoir.

* 国家自然科学基金面上项目(40273009)和中国科学院海外杰出人才计划项共同资助。2005-11-28 收稿; 2006-04-18 收修改稿。何天容, 1979 年生, 女, 博士研究生。E-mail: hetianrong1979@yahoo.com.

Keywords: Hongfeng Reservoir; downstream; methyl mercury; dissolved oxygen; spatial and temporal distribution

二十世纪八十年代以来,科学家们在北美和北欧发现了一种新的汞污染模式,即在许多新建的水库里,鱼体中甲基汞含量高得惊人^[1,2],而且还发现在一些远离汞污染源的偏远湖泊中,某些鱼汞含量远远超过了世界卫生组织建议的食用水产品汞含量标准(0.5 mg/kg)^[3].对于一般人群而言,食鱼是人体汞暴露的主要途径.因此,这一现象引起了人们对汞在水环境系统中的生物地球化学循环的关注,特别是汞的甲基化途径和机制问题.在国内,徐小清等人也预测了长江三峡鱼体汞存在着升高的可能性^[4,5],但由于国内一般采用的水体甲基汞测定技术难于测定自然水体中低含量的甲基汞,所以对于甲基汞在水库生态系统的具体迁移转化规律鲜有报道.

很多研究表明,由于水体分层产生的缺氧还原环境对各种污染物包括重金属的物理化学行为有着很大的影响.同样,人们发现在季节性缺氧水体的下层滞水带存在着甲基汞升高的现象,也对其机制进行了大量的研究,但对于这些升高的甲基汞是来自水体自己产生,还是来自沉积物的释放,或来自上层水体颗粒物的沉降并没得出一致的结论.对影响甲基化率的各种控制因素的认识也存在很多分歧.这表明,尽管人们进行了大量的调查研究,但对水体甲基汞的源、汇、转换和分布机制并没有真正地了解.此外,过去对于这方面的研究主要集中在湖泊方面,而水库的研究多集中在单一生物富集上,却没注意到水库中甲基汞的源、汇、时空分布差异及其控制因素、以及水库对整个流域的甲基汞浓度和分布的影响.而水库是一个不同于湖泊的特殊生态系统,它的下泄口位于下层滞水带,在缺氧期间下层滞水带产生的甲基汞就会随着下泄水进入水库下面的河流,影响整个流域生态系统.

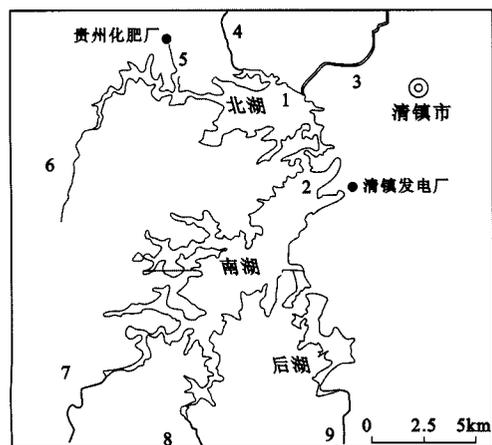


图1 江枫湖地图及采样点分布

Fig.1 the map of Hongfeng reservoir and sampling sites

红枫湖是一个集发电,调洪,饮用,工农业用水,旅游,养殖以及纳污等多功能为一体的水库.水库正常水位1233.2 m,库容 $6.01 \times 10^8 \text{ m}^3$,最大水深45 m,平均水深10.51 m,湖水平均寄宿时间为0.325a.红枫湖由于长期纳入大量工业废水和城镇生活废水使湖水受到严重污染,并逐渐过渡为一个季节性缺氧的富营养化湖泊.虽然并没有确定的特别高的汞污染源进入红枫湖,但由于各种进入红枫湖的工农业和生活废水都含有相对天然水较高的汞负荷,而且贵州处于全球汞矿化带,高汞煤也是贵州主要的生产和生活能源,使得红枫湖汞负荷明显的高于世界其他天然水体.贵阳是全国三大酸雨沉降地区之一,但流域内以喀斯特溶蚀侵蚀和溶蚀构造地貌为主,使贵阳成为特殊的具有酸降水水体却显碱性的区域,这弥补了国外过去大部分的水体中汞循环研究都集中在纯粹的酸性或碱性环境中的遗憾.总而言之,这些条件使得红枫湖成为一个的研究汞在水体中各中物理化学行为的天然实验室.

1 材料及方法

1.1 采样点的选择及样品的采集

湖水采样点设在北湖大坝(1号)和南湖的后五(2号),并在羊昌河(7号)、后六河(9号)、麻线河(8号)、桃花源河(6号)、麦包河(4号)、化工厂(5号)6条入湖河流及猫跳河(3号)出湖河流中各设一个采样点(图1).采样时间为2003年11月27号(秋),2004年2月15号(冬),2004年5月18号(春),2004年9月2号(夏)四个季节.湖水样从表层到底层每4 m取一个样,河流样在表层下10 cm取样.每个采样点取过滤和未过滤两种水样分别用于测定总甲基汞和溶解态甲基汞,过滤水样用0.45 μm的微孔滤膜(millipore)

现场过滤.水样用 0.5% 盐酸酸化存于经过超净技术处理过的硼硅玻璃瓶中,然后放在冰箱中冷藏避光保存.

1.2 样品的分析

样品总甲基汞和溶解态甲基汞的测定采用蒸馏-乙基化结合 GC-CVAFS 法^[6].水样中的甲基汞首先在 145℃ 下蒸馏以去掉有机质等干扰物质,然后和四乙基硼化钠反应生成挥发性甲基乙基汞,经氮气吹扫捕集于 Tenax 富集管,并将富集于 Tenax 管各种汞形态在 80-120℃ 下解析出来,在恒温气相色谱中,把甲基乙基汞从其它挥发性汞形态中分离出来经 900℃ 石英沙管分解成 Hg⁰ 进入到冷原子荧光汞检测仪中检测.该方法的加标回收率为 88.2% - 108.2%,最低检测限为 0.009 ng/L.

水样的温度、溶解氧、电导率等水质参数都在采样时现场测定(plONner 65 便携式多参数仪).溶解有机碳(DOC)用高温燃烧法进行测定.

2 结果与讨论

2.1 采样点主要水质参数季节变化

图 2 显示了后五湖水剖面的温度、pH、溶解氧及季节变化.从图中可看出,秋、冬季节湖水温度、pH、溶解氧表底层相差不大,湖水处于混匀状态,没有分层.而在 5 月,温度、pH、溶解氧表底差异变大,开始出现分层现象,而且由于红枫湖是富营养湖泊,表层各种藻类物质大量滋生,致使 5 月份表层的溶解氧和 pH 都达到最大值,溶解氧处于过饱和状态.到 9 月份,由于藻类开始死亡分解消耗大量的氧气,故水中溶解氧大幅降低,特别是到底层,溶解氧降到 1.36 mg/L,使底层因严重缺氧而呈还原状态,并且从溶解氧的剖面图可看出,湖水存在明显的分层,在 8-12 m 之间有一个大的跳跃.

夏季各入湖和出湖的河流的溶解氧、pH 分布可看出猫跳河的溶解氧、pH 是最低的,表明各河流经水库蓄水,再流出时水质已经发生了明显的变化(表 1).

2.2 甲基汞在水库中的产生及时空分

水库中总甲基汞垂直分布及季节变化如图 3、4 所示.在秋季、冬季和春季总甲基汞分布存在着较小的时空差异,分布在 0.053-0.333 ng/L 范围内.春季的总甲基汞平均值(0.187 ng/L)稍大于冬季(0.180 ng/L)和秋季(0.13 ng/L).在秋季和冬季,两个采样点从表层到底层都有微弱的升高趋势,这表明在底层存在着较大的甲基汞源,可能来自沉积物的释放,也可能在底层存在着甲基汞产生的有利于条件,如相对低的溶解氧和 pH.而在春季,两个采样点从表层到底层都有明显的先降低再升高的趋势,从图中还可看出春季表层总甲基汞明显高于其它季节,这表明在春季,表层甲基汞源明显增加.

夏季总甲基汞平均为 0.423 ng/L,大于春季的 0.183 ng/L,最大值为 0.923 ng/L,是其余季节最大值的 2.5 倍.从垂直分可看出,该季节的总甲基汞表底差异明显,从表层的 0.083 ng/L 增加到底层的 0.923 ng/L,还存在着明显的分层现象,特别是在后五,在 8-12 m 之间存在一个很大的跳跃,和该点的溶解氧分布存在极大的一致性.这表明:在夏季红枫湖下层缺氧带存在明显升高的甲基汞.

水体中甲基汞的浓度与很多物理、化学和生物因素有关,如水中总汞浓度、活性汞浓度、氧化还原条件、pH、温度、有机物含量、硫化物含量、铁锰循环等因素,起主导作用的因素也是根据环境条件而改变的.环境汞的甲基化过程主要以生物甲基化为主,在生物甲基化过程中起主导作用的是一种厌氧的硫酸盐还原细菌.在水库分层后,下层水体的低溶解氧含量为甲基化提供了有利条件.很多研究表明,除了在还原环境外,低的 pH 和盐度,有机物的出现,低的硫化物浓度都有利于甲基化率的提高.在本研究中,总甲基汞和溶解氧之间存在着极显著的负相关关系,Personal 相关系数 r 为 -0.81 ($n=78$),用所有季节的湖水和河流样品

表 1 夏季红枫湖各进出口河流水质参数

Tab.1 water quality parameters in the inflows and outflow of Hongfeng Reservoir in summer

河流	DO (mg/L)	pH
猫跳河(出)	1.75	7.4
麻线河(入)	5.40	8.0
羊昌河(入)	6.68	7.9
桃花园(入)	7.20	8.2
后六河(入)	5.27	7.6
麦包河(入)	7.95	7.7
化工厂(入)	5.30	7.5

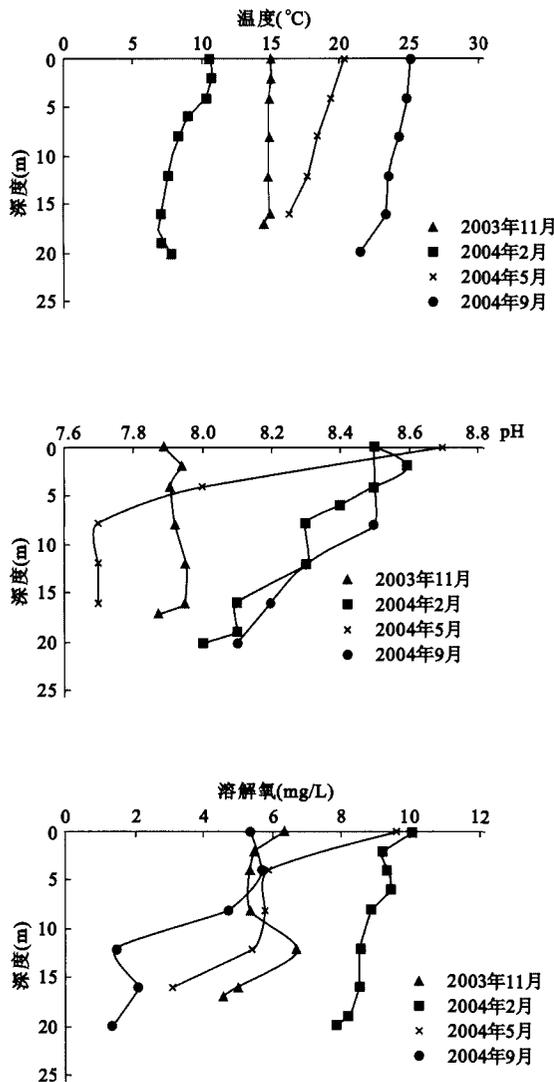


图2 后五温度, pH, 溶解氧季节变化

Fig. 2 The temperature, pH & dissolved oxygen in Howwu

冬季大坝总甲基汞却高于后五.造成总甲基汞这种时空分布差异的原因可能主要是由于红枫湖外部和内部存在着许多不同的污染源.在后五由于电厂排出温度相对较高的水,历年都成为红枫湖主要的水产养殖区,是红枫湖主要的内污染源.这些污染物使后五的富营养化更为严重,藻类大量滋生,使水质进一步恶化.水质参数表明后五的水体底部的溶解氧都比大坝低,DOC也略高于大坝.这些变化都为汞的甲基化提供了更有利的条件.而大坝的各种污染源包括汞污染源主要来自于离其较近的化工厂,但由于雨季河水的稀释作用以及大坝在雨季由于大量泄水而产生的水动力条件,使得这个污染源对大坝的影响相对后五来说是不突出的.但在冬季,河水的稀释以及自身的水动力条件都不存在,同时在冬季后五网箱养鱼活动减少,导致化工厂的影响比较突出.肖化云在《季节性缺氧湖泊氮的生物地球化学循环》中也指出,该化工厂对大坝剖面的影响主要表现在冬季^[11].在冬季活性汞数据也表明大坝污染比后五更为明显,大坝活性汞是后五的一

的总甲基汞和溶解氧作回归方程, R^2 为 0.66,也就是说红枫湖流域总甲基汞的 66% 可以用溶解氧来解释,而其它 33% 由其他的因素控制.由于湖水 pH, DOC 都在一个很小的范围内变化,故两者和甲基汞之间都不存在相关性,也就是说红枫湖的甲基汞受它们的影响并不大.

水体缺氧层升高的甲基汞除了来自自己甲基化率的提高,还可能来自沉积物释放或是上层水体颗粒物的沉降.很多研究表明,水柱中升高的甲基汞主要来自于水体自己升高的甲基化率,或降低的去甲基化率,而不来自于沉积物的释放^[7,8].但也有些研究表明,升高的甲基汞主要来自于沉积物的释放,特别是在一些有高汞污染沉积物的水体里^[9].还有一些研究认为缺氧层升高的甲基汞可能来自上层水体颗粒物的沉降,特别是铁锰氧化物从变温层的沉降并在均温层的溶解导致了甲基汞的富集^[10].从后五甲基汞和溶解态甲基汞的分布看出,最高的甲基汞峰值并没有出现在最底层即沉积物和水界面处,而在 12 m 和 20 m 处,这表明水体中甲基汞并不来源于沉积物释放.而来自于自身甲基化率的提高或上层水体甲基汞的沉降.但在大坝,甲基汞随深度呈梯度变化,但这并不能说明该点水体中的甲基汞一定来自于沉积物释放,因为该采样点处于水库的下泄口,而下泄口位于水库的底层,颗粒物很容易随下泄水下沉,也就是说在该采样点,应该是颗粒物的沉降溶解过程控制了甲基汞的浓度和分布.表层沉积物孔隙水中的甲基汞季节变化也表明在夏季沉积物甲基汞的释放并不是水体甲基汞的主要源.春季孔隙水甲基汞是夏季的 2.4 倍(春季 2.79 ng/L, 夏季 1.17 ng/L),春季表层沉积物孔隙水甲基汞是上层水体溶解态甲基汞的 23 倍,但夏季仅为 2 倍.

四季里,除冬季外,后五总甲基汞平均值都高于大坝.后五总甲基汞平均值分别为:春季 0.218 ng/L, 夏季 0.507 ng/L, 秋季 0.150 ng/L; 大坝为春季 0.156 ng/L, 夏季 0.332 ng/L, 秋季 0.120 ng/L.而在

倍(大坝 0.716 ng/L,后五 0.363 ng/L),而人们普遍认为甲基汞是由活性汞转化而来.此外,冬季甲基汞大坝高于后五的另一个原因也可能是由于大坝有较低的溶解氧(后五 6.7 mg/L,大坝 4.9 mg/L).

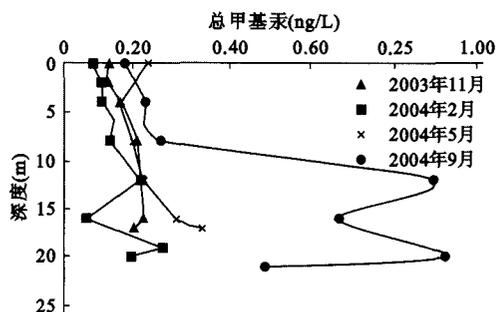


图3 后五总甲基汞的季节变化

Fig. 3 Seasonal distribution of TMeHg in Houwu

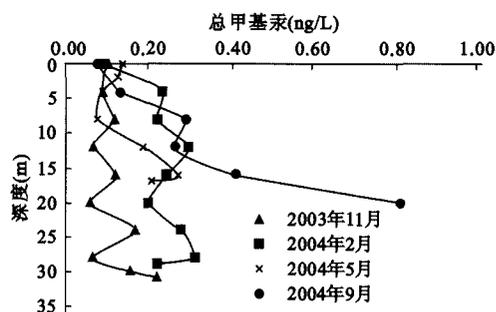


图4 大坝总甲基汞季节变化

Fig. 4 Seasonal distribution of TMeHg in Daba

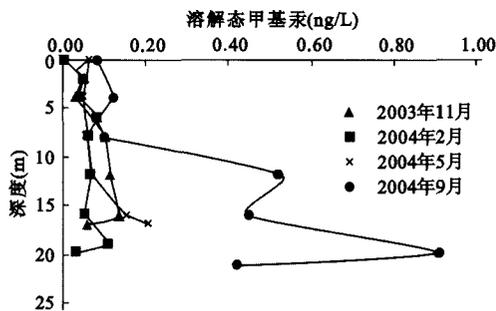


图5 后五溶解甲基汞季节变化

Fig. 5 Seasonal distribution of DMeHg in Houwu

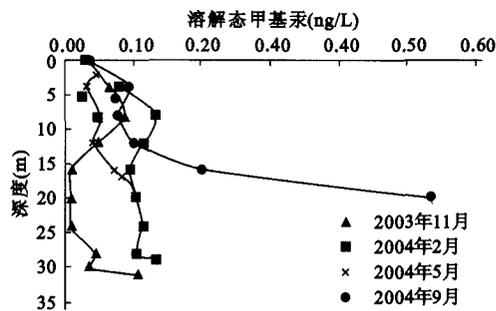


图6 大坝溶解甲基汞季节变化

Fig. 6 Seasonal distribution of DMeHg in Daba

在秋季、冬季、春季两个采样点溶解态甲基汞占总甲基汞的比例都没有明显的变化趋势,约为43%,都略低于颗粒态甲基汞所占的比例.而在夏季,溶解态甲基汞所占比例相对更高,尤其在后五,溶解态甲基汞比例平均值达65%,在后五20m处,差不多所有的甲基汞都是溶解态甲基汞(图5,6).在出库河流猫跳河中溶解态甲基汞所占比例也达到73%.C. S. Eckley 和 Willy Baeyens 在研究中也发现^[12,13],季节性缺氧的水体中,在夏季水体处于分层时,溶解态甲基汞比例在水体下层滞水带中大幅度提高. Hurley 发现无机汞更易结合在矿物颗粒及一些岩石碎屑上,而甲基汞更易和一些有机颗粒结合^[14].在湖泊下层还原环境中,由于铁锰氧化物的还原溶解以及有机颗粒的厌氧不完全降解,造成溶解态和胶体形态有机物质增多. Choe KY 在利用超过滤技术对结合在胶体相的甲基汞的研究中发现,甲基汞在胶体和溶解相之间的分配系数远高于在颗粒态和溶解态之间的分配系数^[15],也就是说甲基汞更易和胶体物质结合.而本实验采用的是0.45 μm的滤膜,胶体物质都在溶解相里.用所有湖水样品的溶解态及颗粒态甲基汞和总甲基汞做回归方程, R^2 分别为0.87和0.37,而在夏季, R^2 分别为0.95和0.1.总的说来,溶解态甲基汞控制了夏季红枫湖水体中的总甲基汞的分布.

2.3 各进出河流的甲基汞分布及水库对流域甲基汞浓度和分布的影响

从表二各入湖河流的总甲基汞季节分布可看出,除化工厂、麦包河两条主要受工业生活污水影响的小河外,其它受农业灌溉影响的几条红枫湖的主要补给水源河的总甲基汞在5月丰水期时都比在枯水期和平水期高,这表明在丰水期,河流由于雨水带进大量的农田和土壤颗粒,而成为湖水甲基汞的一个重要输入源.前文中提到的春季湖水表层升高的甲基汞可能就源于河流输入源的增加.

表2 红枫湖各进出口河流总甲基汞浓度季节变化(ng/L)

Tab.2 Seasonal distribution of methylmercury in the inflows and outflow of Hongfeng Reservoir(ng/l)

河流	秋季	冬季	春季	夏季
猫跳河(出库)	0.138	—	0.164	1.022
麻线河(入库)	0.180	0.102	0.186	0.121
羊昌河(入库)	0.155	0.143	0.207	0.178
桃花园(入库)	0.096	0.091	—	0.077
后六河(入库)	0.111	0.156	0.244	0.159
麦包河(入库)	—	0.134	0.103	0.140
化工厂(入库)	0.212	0.235	0.062	0.110

从各入湖和出湖河流的总甲基汞季节分布可看出,在春、秋、冬季节各入湖河流和出湖河流总甲基汞浓度无明显差异,都在0.2 ng/L左右,而在夏季出库河流猫跳河的甲基汞浓度为1.022 ng/L,是各入湖河流甲基汞平均值的5.5倍,很明显,由于水库的下泄口位于底层,水库缺氧层的甲基汞已随下泄水进入到出库河流中。C. M. Canavana在The Elephant Butte and Caballo水库流域的甲基汞分布的调查中发现,在夏季和秋季,不但在水库的缺氧层及下泄口发现高浓度的甲基汞,而且在距水库22 km出库河流中,已发现升高的甲基汞^[16]。甲基汞具有很强的生物积累和生物放大效应, Schetagne发现在加拿大一些水库的下游水体存在着鱼体甲基汞升高的现象^[17]。虽然鱼体甲基汞的富集除了受水体甲基汞浓度影响外还和水质环境如pH值,腐殖质含量,生产力,以及鱼本身的年龄和饮食习惯有关,但这种季节性缺氧水库的甲基汞在下层滞水带异常升高的现象以及对生态环境和流域的影响作用肯定是不可忽视的。尤其是如果水库人为污染得不到控制,富营养化日趋严重,水库缺氧的时间将会更长,程度会更严重,那甲基化率可能也会随之而升高。

3 结论

本文对红枫湖以及其各入湖和出湖河流甲基汞种类的时空分布及其控制因素进行了调查研究。主要得出以下结论:

1) 在秋、冬、春季节总甲基汞浓度和分布无明显时空差异,分布在0.053 - 0.333 ng/L之间。夏季甲基汞显著升高,总甲基汞平均为0.423 ng/L,在下层缺氧带最大值为0.923 ng/L。

2) 从后五夏季下层缺氧带甲基汞的分布可看出,缺氧层升高的甲基汞主要来自于水体自己产生或上层水体甲基汞的沉降,而不是来自于沉积物的释放。

3) 各季节湖水和河流样品的总甲基汞和溶解氧存在显著相关性, personal 相关系数 r 为 -0.81 ($n = 78$)。这表明红枫湖甲基汞的浓度和分布主要受溶解氧含量的影响。

4) 在秋、冬、春季节溶解态甲基汞比例略低于颗粒态甲基汞,但在夏季,特别是缺氧层,总甲基汞主要受溶解态甲基汞控制。

5) 在秋、冬、春季节各入湖河流和出湖河流甲基汞浓度及水质参数没有明显差异,但在夏季,各河流经水库蓄水,再流出时水质已经恶化,甲基汞浓度已达到各入湖河流甲基汞平均值的5.5倍,很明显水库已经成为下游水体甲基汞的一个输入源,对下游水体生态系统造成潜在的影响。

4 参考文献

- [1] Porvari U P. Development of fish mercury concentrations in Finnish reservoirs from 1979 to 1994. *The Science of the Total Environment*, 1998, **213**: 279 - 290.
- [2] Schetagne R, Verdon R, Langlois C and Doyon J F. Mercury evolution (1978 - 1995) in fishes of the La Grande hydroelectric complex, Québec, Canada. Manuscript, Poster presented in Fourth International Conference on Mercury as a global pollutant. Hamburg, Germany, 1995.

- [3] Driscoll C T, Yan C, Scofield C L, Munson R and Holsapple J. The mercury cycle and fish in Adiron-dack lakes. *Environ Sci Technol*, 1994, **28**: 136A - 143A.
- [4] 徐小清, 丘昌强, 邓冠强等. 三峡库区汞污染的化学生态效应. *水生生物学报*, 1999, **23**(3): 197 - 203.
- [5] 徐小清, 张晓华, 靳立军等. 三峡水库汞活化效应对鱼汞含量影响的预测. *长江流域资源与环境*, 1999, **8**(2): 198 - 204.
- [6] 蒋红梅, 冯新斌, 梁琰等. 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*, 2004, **24**(5): 568 - 571.
- [7] Olof Regnell and Goran Ewald. Factors controlling temporal variation in methyl mercury levels in sediment and water in a seasonally stratified lake. *Limnol Oceanogr*, 1997, **42**(8): 1784 - 1795.
- [8] Verta M AND T Matilainen. Methylmercury distribution and partitioning in stratified Finnish forest lakes. *Water Air Soil Pollution*, 1995, **80**: 585 - 588.
- [9] Furutani A AND JW Rudd. Measurement of mercury methylation in lake water and sediment samples. *Appl Environ. Microbiol*, 1980, **40**: 770 - 776.
- [10] Meili M. mercury in lakes and rivers. *Metal Ions Biol Syst*, 1997, **34**: 21 - 25
- [11] 肖化云. 季节性缺氧湖泊氮的生物地球化学循环. 中国科学院博士学位研究生学位论文.
- [12] Eckley C S, Watras C J and Hintelmann H. Mercury methylation in the hypolimnetic waters of lakes with and without connection to wetlands in northern Wisconsin. *Can J Fish Aquat Sci*, 2005, **62**: 400 - 411.
- [13] Willy Baeyens and Carine Meuleman. Behaviour and speciation of mercury in the Scheldt estuary (water, sediments and benthic organisms). Trace Metals in the Westerschelde Estuary. *Hydrobiologia*, 1998, **336**: 63 - 79.
- [14] Hurley J P, Watras C J and Bloom N S. Distribution and flux of particulate mercury in four stratified seepage lakes. In: *Mercury Pollution-Integration and Synthesis*, 1994: 69 - 82.
- [15] Choe K Y and Gill G A. Distribution of particulate, colloidal, and dissolved mercury in San Francisco Bay estuary. 2. Monomethyl mercury. *Limnol Oceanogr*, 2003, **48**(4): 1547 - 1556.
- [16] Canavan C M, Caldwell C A and Bloom N S. Discharge of methylmercury-enriched hypolimnetic water from a stratified reservoir. *The Science of the Total Environment*, 2000, **260**: 159 - 170.
- [17] Schetagne R, Doyon J and Fournier J. Export of methylmercury downstream of reservoirs. *Book of Abstracts of Fifth International Conference on Mercury as a Global Pollutant*, 1999: 233.