

乌江流域不同营养水平水库水体中汞的含量和形态分布^{*}

孟博^{1,2} 冯新斌^{1*,*} 陈春宵³ 仇广乐¹ 郭艳娜^{1,2} 刘凯^{1,2} 姚珩^{1,2} 张军方^{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)

摘要 为了弄清不同营养状态水库水体的汞含量、形态分布、季节变化及甲基化特征, 选取乌江流域富营养状态的乌江渡水库和贫一中营养状态的引子渡水库为研究对象, 分别于2007年的1月(冬季)、5月(春季)、8月(夏季)和11月(秋季)采集水库水体分层水样及界面水(仅乌江渡水库), 分析样品中活性汞(RHG)、总汞(THG)、溶解态汞(DHG)、颗粒态汞(PHG)、总甲基汞(TMCHg)、溶解态甲基汞(DMCHg)和颗粒态甲基汞(PMCHg)。结果显示: 乌江渡水库 THg、DHg、PHg、RHg 浓度和引子渡水体中的含量相当, 而 TMCHg、DMCHg、PMCHg 的浓度则显著高于引子渡水库; 相对于上覆水体, 乌江渡水库底层水体/界面水甲基汞含量明显升高, 表明乌江渡水库全年均有甲基化现象发生, 而引子渡水库没有发现甲基化现象。以上研究表明, 初级生产力水平是水库汞甲基化的重要影响因素。

关键词 水库; 不同营养水平; 汞; 甲基化

中图分类号 S963 **文献标识码** A **文章编号** 1000-4890(2011)5-0951-10

Distribution of total mercury and methylmercury in two hydroelectric reservoirs of Guizhou Province, China. MENG Bo^{1,2}, FENG Xin-bin^{1*,*}, CHEN Chun-xiao³, QIU Guang-le¹, GUO Yan-na², LIU Kai^{1,2}, YAO Heng², ZHANG Jun-fang² (¹State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China; ²Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; ³College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400716, China). Chinese Journal of Ecology 2011, 30(5): 951-960.

Abstract To investigate the distribution of mercury (Hg) and characteristics of its methylation in Wujiangdu (WJD), a reservoir with a high level of primary productivity and in Yinzidu reservoir (YZD) with a low level of primary productivity, a fully adequate set of Hg species in water samples from a depth profile near of the dam in both reservoirs and from interface water in WJD were analyzed during winter (January 2007), spring (May 2007), summer (August 2007), and autumn (November 2007). The results showed that no significant difference was found between the levels of total mercury (THg), dissolved mercury (DHg), particulate mercury (PHg), reactive mercury (RHg) in WJD and YZD. Elevated MeHg concentrations in water samples from the bottom and water/sediment interface demonstrated an active net Hg methylation near the dam of WJD during all the sampling periods. There was no discernible Hg methylation occurring in the YZD during our sampling seasons. Results indicate that the primary productivity is an important indicator of Hg methylation in reservoirs.

Key words reservoir; different nutrient level; mercury; methylation

汞 (Hg) 是一种有毒、人体非必须元素, 而甲基

汞是毒性最强的一种汞形态, 可引起中枢神经系统的永久性损伤和胎儿水俣病 (ATSDR 1997)。研究表明, 筑坝拦截形成的水库环境有利于汞的活化、甲基化和生物累积 (Lucotte et al., 1999), 因此蓄水河

* 国家自然科学基金项目 (40873085 和 40973083) 资助。

** 通讯作者 E-mail: fengxinbin@vip.skl.ec.cn

收稿日期: 2010-10-28; 接受日期: 2011-02-25

流生态系统成为典型的“汞敏感生态系统”(Wiener et al., 2003)。20 世纪 70 年代,人们注意到了北美地区水库鱼体中甲基汞含量普遍偏高的现象(Smith et al., 1974; Abemathy et al., 1977; Cox et al., 1979)。后来人们陆续在北美其他地区、南美和北欧发现了类似的汞污染现象(Meister et al., 1979; Johnston et al., 1991; Louchouart et al., 1993; Anderson et al., 1995),这引起了人们对水库生态系统中汞生物地球化学循环的极大关注。目前在世界河流广泛地受到筑坝拦截影响的背景下,水库对河流汞生物地球化学循环影响的研究,受到了国际上的普遍重视(Kelly et al., 1997; Heyes et al., 2000)。

我国是水库利用最广泛的国家之一,仅长江流域已建成了 48000 座水库,其中大型水库 137 座,随着西部开发水电建设的深入,乌江流域干流已进行了 13 级开发规划。迄今,我国对水体中汞的迁移转化机制,已进行了很多相关研究(白薇扬等, 2006; 何天容等, 2006; 钱晓莉等, 2008; Feng et al., 2010a; 2010b),但针对不同营养状况水库中汞甲基化的过程及控制因素的研究基本未见报道。

本研究选取乌江流域处于富营养状态的乌江渡水库和处于贫—中营养状态的引子渡水库作为研究对象,按不同水文季节采集分层水和界面水,分析了样品中不同形态汞的含量和形态分布,探讨了不同营养状况水库中汞的甲基化过程及主要的影响因素,对深入了解不同营养状况水库水体中汞的生物地球化学行为及环境效应具有重要的指导意义。

1 研究地区与研究方法

1.1 研究区概况

乌江为长江上游南岸最大的支流,发源于贵州威宁县乌蒙山东麓,总长 1037 km,流域面积 87920 km²。乌江流域属亚热带季风湿润气候区,年平均降水量 900~1400 mm。乌江渡水库是乌江干流 11 个梯级电站的第 6 级,上游 74.9 km 处接索风营水电站,下游 137 km 处连构皮滩水电站,于 1979 年 11 月下闸蓄水,为演化高级阶段水库。乌江渡水库坝址控制流域面积 27790 km²,约为整个乌江流域面积的 1/3,坝址多年平均流量 483 m³·s⁻¹。乌江渡水库正常蓄水位 760 m,总库容 23 亿 m³,属季调节水库,水库淹没耕地 964 hm²,其中水田 374 hm²。引子渡水电站是乌江 11 个梯级电站的第 2 级,于 2001 年 10 月截流蓄水,为演化初级阶段水

库。引子渡水库上游 51 km 处为普定水电站,下游 43 km 处为东风水电站。引子渡水库坝址控制流域面积 6422 km²,总库容 5.27 亿 m³,多年平均流量 140 m³·s⁻¹,平均径流量 44.15 亿 m³,坝址以上流域多年平均降雨量 1212.4 mm,正常蓄水位 1086 m。引子渡水库属不完全年调节水库,库区淹没耕地 573 hm²。

研究发现,在本研究采样期间(2006 年 4 月—2007 年 1 月),乌江渡水库水体 NO₃⁻和 TN(总氮)均高于引子渡水库,且乌江渡水库水体 PO₄³⁻和 TP(总磷)的浓度是引子渡水库水体的 10~100 倍(喻元秀, 2008; Wang et al., 2008; Wang et al., 2009)。Wang 等(2008)和喻元秀(2008)研究发现,乌江渡水库表层水体中叶绿素 a 的浓度远高于引子渡水库。以上研究表明,在本研究采样期间乌江渡水库水体处于富营养状态,而引子渡水库水体则处于贫—中营养状态(Kimmel & Groeger, 1984)。

1.2 样品采集

研究选择乌江流域演化高级阶段的乌江渡水库(富营养状态)和演化初级阶段的引子渡水库(贫—中营养状态)为研究对象,分别于 2007 年的 1 月(冬季)、5 月(春季)、8 月(夏季)和 11 月(秋季),在距水库大坝约 500 m 处采集分层水和界面水(引子渡水库为新建水库,无法采集到界面水),分别采集分层水样乌江渡 29 个,引子渡 28 个,界面水样乌江渡 4 个。

水样均用硼硅玻璃采样瓶盛装,采样瓶使用之前经过严格的超净技术处理:先用 10% 稀盐酸浸泡至少 24 h 然后用自来水冲洗干净,再用超纯水(Milli-Q18.2M)冲洗后经马弗炉 500 °C 高温灼烧 2~3 h 待冷却后用聚乙烯封装袋双层包装放置木箱中待用。已经处理好的采样瓶在采样之前需随机抽取 5% 进行空白测试,空白达到要求方可带出野外进行采样,采样瓶采样前需用水样润洗至少 3 次。

根据水体深度分 6~7 层对分层水样进行采集。分层水样采集未过滤水样和过滤水样,未过滤水样用于分析活性汞(RHg)、总汞(THg)、总甲基汞(TMTHg)和总悬浮物(TSS)。过滤水样用 0.45 μm 滤膜(Millipore)现场过滤后采集,用来分析溶解态汞(DHg)和溶解态甲基汞(DMTHg)。采用 SWB-1 型便携式无扰动沉积物采样器采集界面水。为避免人为污染,所有操作过程均使用一次性聚乙烯手套。水样在采集完成后,按 0.5% (V/V)的比例立即加

入经亚沸蒸馏的 $12 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 盐酸, 避光保存。

水样 pH 溶解氧 (DO)、水温 (T) 等水质参数, 用便携式多参数水质仪 (PH和 T PD-501, 上海三信仪表厂, 上海, 中国; DO HI 7042 S Hanna Instruments Inc, Padova Italy) 现场测定, TSS 用重量法测定。

1.3 样品分析

样品中 RHg、THg 和 DHg 的含量, 采用两次金汞齐冷原子荧光光谱法 (CVAFS Tekran 2500) 测定 (USEPA 2002), 该方法最低检测限为 $0.02 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 颗粒态汞 (PHg) 为 THg 和 DHg 的差值。样品中 TMCHg 和 DMCHg 的含量, 用蒸馏乙基化结合冷原子荧光光谱 (GC-CVAFS Brooks Rand Model III) 法测定 (Liang et al., 1994; USEPA 2001), 该方法最低检出限为 $0.01 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 颗粒态甲基汞 (PMCHg) 为 TMCHg 和 DMCHg 的差值。

1.4 数据质量控制

为确保实验结果的可靠性, 数据质量控制如下: 实验室用水为超纯水 (MilliQ18.2M), 野外空白: THg 为 $0.14 \pm 0.04 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, TMCHg 为 $0.012 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 样品加标回收率 THg 为 $91\% \sim 108\%$ 、MCHg 为 $87\% \sim 113\%$, 对同一样品进行多次重复测定, 其相对标准偏差均不高于 8% 。

1.5 数据处理

实验数据利用 SPSS 11.5 进行统计分析, 进行单因素方差分析和多重比较, 显著性水平为 $\alpha = 0.01$ 。利用 Origin 7.0 做图。

2 结果与讨论

2.1 水体水质参数季节变化规律

乌江渡水库和引子渡水库 TSS 季节变化上均表现为: 冬、春季大于夏、秋季, 即枯水期大于丰水期, 主要原因为丰水期对 TSS 的稀释作用。TSS 全年平均值引子渡水库 ($1.64 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 稍高于乌江渡水库 ($1.38 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 其原因为乌江渡水库处于流域下游, 而引子渡水库处于流域上游, 上游水库对颗粒物的拦截沉积作用更明显。

由图 1 可以看出, 两水库冬季水体垂直剖面上 pH、T、DO 均无明显差异, 整体呈混匀状态。然而乌江渡水库底层水体 DO 仍然偏低, 其原因可能为, 冬季乌江渡水库大坝沉积物表层有机质含量高达 10.7% (Meng et al., 2010), 虽然冬季水体表层富含氧的水下沉到底部, 但沉积物表层高含量的有机质

起到的一个缓冲作用, 致使底层水体 DO 相对于上浮水体偏低。而这种沉积物表层有机质对 DO 的缓冲现象在贫营养状态的引子渡水库并未发现。

春季由于气温回升, 乌江渡水库水体开始分层, 表层水体温度明显高于底层。表层水体由于藻类的光合作用 (吸收 CO_2 放出 O_2) 加上大气富氧使得表层水体 DO 和 pH 较次表层明显偏高。而随着水体深度的增加藻类减少, 光照减弱, 藻类的光合作用减弱直至停止。另外, 水库自身内源有机质分解消耗并产生 CO_2 , 水温的阶梯分布使得上下水体 DO 不能正常交换, 水体底层游离的 CO_2 不能向上层扩散, 导致 DO 和 pH 随着水体深度的增加逐渐降低 (DO 为 $6.16 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$, pH 为 7.71)。对贫中营养状态的引子渡水库, 水体同样也出现了分层, 水温呈现出阶梯分布, 但引子渡水库水体 DO 和 pH 在垂直剖面上差别不大。

夏季水库分层现象更加明显, 两水库水体表层、底层温差达到最大值 (乌江渡 8.4°C , 引子渡 12.0°C)。此时乌江渡水库水体底部 DO 出现了全年最低值 ($1.58 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$), 较春季有大幅下降 ($6.16 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$)。乌江渡水库初级生产力水平较高, 春季繁盛的藻类等浮游生物死亡下沉到水体底层并逐渐降解, 使底层水体严重缺氧形成了厌氧还原环境 (王雨春等, 2005)。水体缺氧、较高的温度以及丰富的营养物质使得厌氧细菌活性大大提高, 有机质分解所产生的 CO_2 无法顺利扩散, 使得 pH 值随着水深的增加逐渐下降, 至底层略偏酸性 (pH = 6.88)。引子渡水库初级生产力较低 (贫中营养状态), 内源有机质可忽略, 外源有机质非常有限, 且加上沿途沉积降解, 沉积到大坝附近的以难降解的有机质为主, 因此虽然引子渡坝前水体底部 DO ($6.5 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 和 pH (7.26) 相对于上浮水体有所降低, 但降低的幅度并没有乌江渡水库明显。

秋季乌江渡水库上下水体开始出现对流, 上部温度低但 DO 和 pH 较高的水到达底部使得底部水体 DO ($4.2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 和 pH (7.68) 较夏季有所回升, 水体逐渐呈现混匀状态。同样引子渡水库底层水体 pH (7.56) 较夏季有所回升, 但 DO ($4.6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 有所降低。

总的来说, 乌江渡水库和引子渡水库大坝附近水体在各个季节物理化学参数, 主要受水库初级生产力水平控制, 初级生产力水平高的乌江渡水库, 其化学分层比初级生产力低的引子渡水库更加明显。

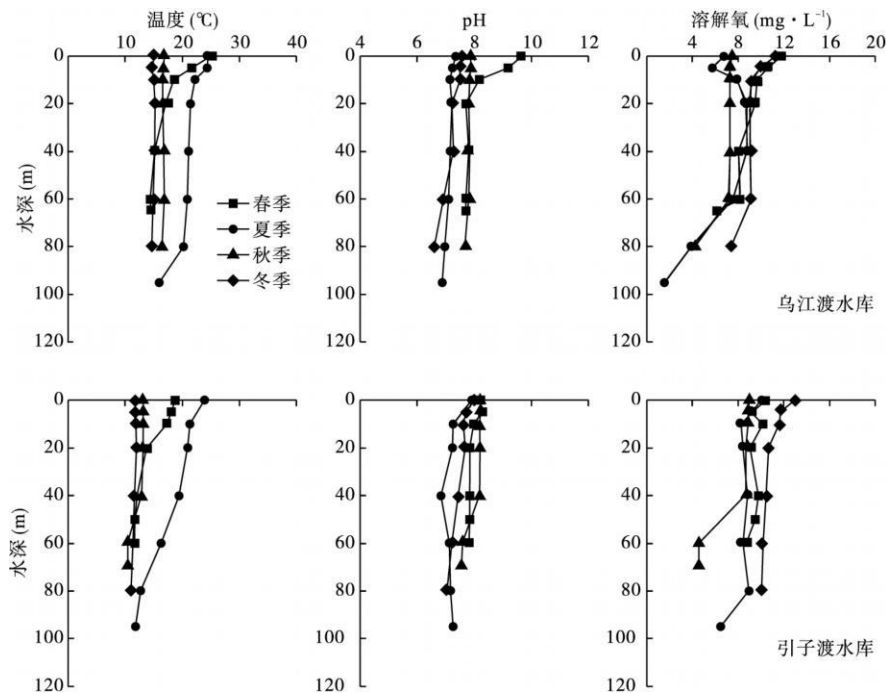


图 1 乌江渡水库、引子渡水库水体温度、pH、溶解氧季节性剖面变化趋势

Fig. 1 Water column profiles of the temperature, pH and DO determined in WJD and YZD

2.2 乌江渡水库、引子渡水库水体 THg、DHg、HHg、RHg 分布

2.2.1 水库 THg 分布规律 如图 2 所示, 乌江渡水库水体 THg 浓度的年均值为 $1.31 \pm 0.65 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.44 \sim 3.13 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 引子渡水库水体 THg 浓度的年均值为 $0.86 \pm 0.23 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.40 \sim 1.37 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。乌江渡水库、引子渡水库水体中 THg 浓度远低于目前我国环境质量标准 (GB3838—2002) 规定的一类地表水汞含量标准限值 ($50 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)。方差分析与多重比较结果显示, 乌江渡水库大坝水体 THg 枯水期明显高于丰水期 ($n=19$, $P=0.003$), 而引子渡水库水体 THg 浓度在各个季节无明显差别 ($n=28$, $P=0.838$), 而且在垂直剖面基本趋于一致。

引起乌江渡水库水体 THg 春、冬季明显高于夏、秋季的主要原因为: 一方面夏、秋季丰水期充裕雨水对 THg 的起到了稀释作用 (采样点最大水深: 春季 70 m; 夏季 100 m; 秋季 90 m; 冬季 85 m)。另一方面冬、春季民用燃煤所导致的大气汞沉降 (Feng et al., 1999; Feng et al., 2000; Feng et al., 2002), 使得水库中汞浓度相对于夏、秋偏高。郭艳娜等 (2008b) 研究发现, 冬季乌江流域雨水中的总汞浓度是夏季的 4 倍。对富营养状态 (党安志, 2008

Wang et al., 2008; 喻元秀, 2008; Wang et al., 2009) 的乌江渡水库来说, THg 最高值出现在春季的表层 5 m 处, 其主要原因可能与乌江渡为旅游景点, 春季人为活动的增加导致汞输入负荷增加; 同时春季藻类等浮游植物大量繁盛 (朱俊等, 2006), 而导致对汞有高度吸附作用 (Hurley et al., 1991)。由于引子渡水库初级生产力水平低, 且旅游业处于开发初级阶段, 人为影响极小, 另外引子渡水库冬季大气降水中 THg 明显低于乌江渡水库 (郭艳娜等, 2008b), 这些因素使得引子渡水库水体 THg 浓度在各个季节差别不大, 且在垂直剖面上也几乎相当。

2.2.2 水库 DHg 分布规律 如图 2 所示, 乌江渡水库水体 DHg 浓度年均值为 $0.90 \pm 0.43 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.42 \sim 2.01 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 引子渡水库水体 DHg 浓度的年均值为 $0.49 \pm 0.16 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.25 \sim 0.85 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。方差分析结果显示, 乌江渡水库 ($n=28$, $P=0.058$) 和引子渡水库 ($n=28$, $P=0.079$) 各季节 DHg 浓度均无明显差别。

乌江渡水库 DHg 浓度峰值出现在春季表层水体中, 20 m 以下 DHg 浓度和其他季节相当, 出现这种现象的原因仍然归因于春季人为活动的增加导致表层水体汞输入负荷增加。另外, 由于春季水体在垂直剖面上的分层现象, 使得表层高 DHg 浓度的水

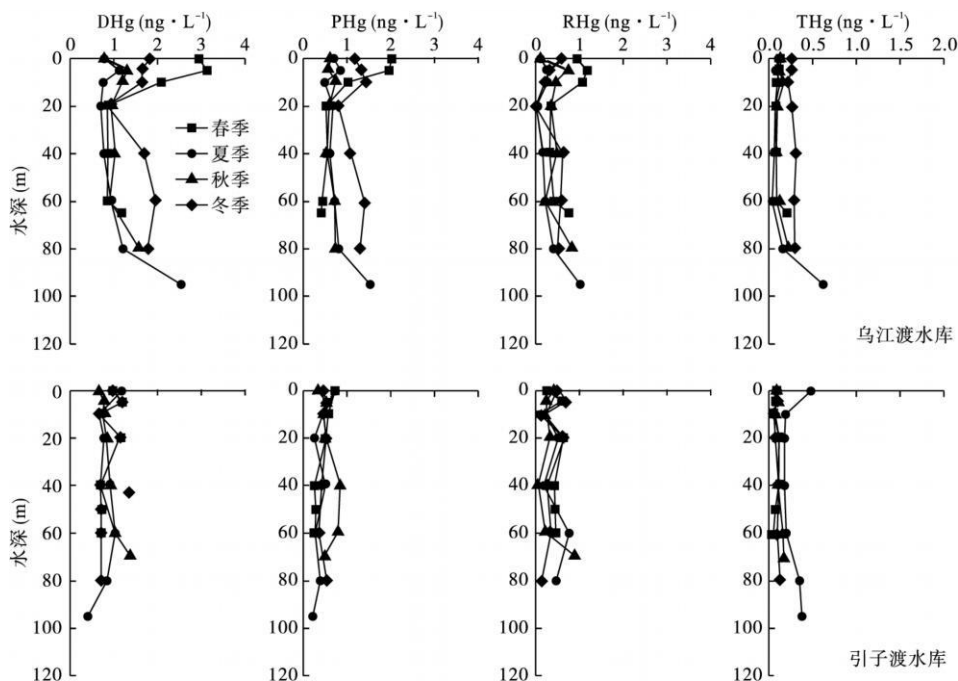


图 2 乌江渡水库和引子渡水库水体总汞、溶解态汞、颗粒态汞和活性汞的季节性剖面变化趋势

Fig. 2 Water column profiles of the THg, DHg, and RHg and PHg concentrations determined in WJD and YZD

无法与深层水体交换使得表层水体 DHg 峰值更加明显。引子渡水库水体 DHg 在各个季节和垂直剖面上的变化均不明显。乌江渡水库 DHg/THg 为 $69\% \pm 16\%$, 变化范围为 $36\% \sim 98\%$, DHg 与 THg 达到极显著水平 ($r=0.90$, $P<0.0001$, $n=27$)。引子渡水库 DHg/THg 为 $57\% \pm 18\%$, 变化范围为 $26\% \sim 93\%$, DHg 与 THg 相关性不如乌江渡水库明显 ($r=0.38$, $P=0.048$, $n=27$), 说明乌江渡水库水体 DHg 是主要的汞形态, 而引子渡水库主要的汞形态受其他因素控制。

2.2.3 水库 PHg 分布规律 如图 2 所示, 乌江渡水库水体 PHg 浓度年均值为 $0.44 \pm 0.30 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.01 \sim 1.17 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 引子渡水库水体 PHg 浓度年均值为 $0.38 \pm 0.21 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.06 \sim 0.89 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 乌江渡水库 PHg 浓度与引子渡水库无明显差别 ($n=26$, $P=0.420$), 此结果与乌江渡水库水体平均 TSS 含量 ($1.38 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 与引子渡水库平均 TSS 含量 ($1.64 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$) 差别不大相吻合。

2 个水库 PHg 浓度在季节和垂直剖面分布上差别不大, 其原因可能为两个水库的采样点均位于大坝附近, 丰水期雨水侵蚀所带入水库的颗粒物在到达大坝之前大部分已经沉积, 而到达大坝的只是很少一部分, 所以外源输入的颗粒物对 PHg 的影响较

小。例如 PHg 峰值 ($1.17 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) 出现在春季乌江渡水库水体 5 m 处, 其主要原因为春季乌江渡水库大量繁盛的藻类等生物颗粒对汞的吸附作用 (Hurley et al., 1991), 与 TSS 的在春季乌江渡水库水体表层处偏高相对应 ($3.0 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$)。乌江渡水库 PHg/THg 为 $31\% \pm 16\%$, 变化范围为 $2\% \sim 64\%$, PHg 与 THg 相关性达到极显著水平 ($n=27$, $r=0.79$, $P<0.0001$)。引子渡水库 PHg/THg 为 $43\% \pm 18\%$, 变化范围为 $7\% \sim 74\%$, PHg 与 THg 相关性达到极显著水平 ($n=26$, $r=0.70$, $P<0.0001$)。

2.2.4 水库 RHg 分布规律 如图 2 所示, 乌江渡水库水体 RHg 浓度年均值为 $0.17 \pm 0.12 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.04 \sim 0.62 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。引子渡水库水体 RHg 浓度年均值为 $0.14 \pm 0.10 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 变化范围为 $0.04 \sim 0.48 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。方差分析结果显示, 乌江渡水库 RHg 浓度与引子渡无明显差别 ($n=28$, $P=0.434$)。

冬季由于水体呈混匀状态, 所以乌江渡水库 RHg 浓度在剖面上变化不明显, 但总体浓度 (除夏季底层外) 高于其他季节, 其主要原因为: 冬季光照强度最弱, 太阳辐射对 Hg^{2+} 光致还原作用最弱 (蒋红梅等, 2006) 使得 RHg 浓度相对于其他季节偏高; 另一方面因为冬季民用燃煤增多, 通过大气干湿沉降进入到水体的 RHg 增加 (Feng et al., 1999; Feng

et al., 2002)。乌江渡水库春、夏和秋季 RH_{Hg} 浓度在水体底层出现极高值, 且以夏季最为突出, 可能是由于沉积物孔隙水对上覆水体的扩散所致, 另外由于夏季水库分层最强烈, 上下水体无法交换, 使得夏季水体底部 RH_{Hg} 出现了峰值。该现象亦出现在夏季引子渡水库水体底部, 但由于引子渡水库建库时间较短, 底部沉积物较少, 所以并不十分明显。引子渡水库 RH_{Hg} 浓度在垂直剖面上差别很小, 其峰值出现在夏季的表层水体, 可能是人为活动所导致的。乌江渡水库 RH_{Hg} 和 TH_{Hg} 相关性系数 $r=0.26$ ($n=28$ $P=0.19$), 引子渡 $r=0.03$ ($n=28$ $P=0.87$), 暗示两个水库 TH_{Hg} 和 RH_{Hg} 有着不同的来源。

2.3 乌江渡水库、引子渡水库水体 TM_{eHg} 、 DM_{eHg} 、 PM_{eHg} 分布

乌江渡水库水体 TM_{eHg} 浓度年均值为 0.26 ± 0.43 $ng \cdot L^{-1}$, 变化范围为 $0.06 \sim 2.42$ $ng \cdot L^{-1}$, DM_{eHg} 年均值为 0.12 ± 0.09 $ng \cdot L^{-1}$, 变化范围为 $0.03 \sim 1.44$ $ng \cdot L^{-1}$, DM_{eHg}/TM_{eHg} 为 $66\% \pm 20\%$, PM_{eHg} 均值为 0.09 ± 0.16 $ng \cdot L^{-1}$, 变化范围为 $0.01 \sim 0.98$ $ng \cdot L^{-1}$, PM_{eHg}/TM_{eHg} 为 $34\% \pm 20\%$ 。引子渡水库水体 TM_{eHg} 年均值为 0.14 ± 0.10 $ng \cdot L^{-1}$, 变化范围为 $0.04 \sim 0.44$ $ng \cdot L^{-1}$, DM_{eHg} 年均值为 0.08 ± 0.05 $ng \cdot L^{-1}$, 变化范围为 $0.03 \sim 0.22$ $ng \cdot L^{-1}$, DM_{eHg}/TM_{eHg} 为 $67\% \pm$

19% 。 PM_{eHg} 均值为 0.06 ± 0.07 $ng \cdot L^{-1}$, 变化范围为 $0.01 \sim 0.32$ $ng \cdot L^{-1}$, PM_{eHg}/TM_{eHg} 为 $33\% \pm 19\%$ 。乌江渡水库和引子渡水库均以 DM_{eHg} 为主要的甲基汞形态, 且 DM_{eHg} 与 TM_{eHg} 呈极显著相关关系: 乌江渡水库相关系数 $r=0.89$ ($n=28$ $P < 0.0001$), 引子渡水库 $r=0.79$ ($n=28$ $P < 0.0001$)。乌江渡水库 DM_{eHg} 浓度显著高于引子渡水库 ($n=28$ $P=0.016$)。

如图 3 所示, 乌江渡水库水体 TM_{eHg} 、 DM_{eHg} 在各个季节均表现为随水体深度的增加而逐渐升高的趋势, 其中夏季明显高于其他季节, 且峰值均出现在水体底层。乌江渡水库水体 TM_{eHg} 峰值 (2.42 $ng \cdot L^{-1}$) 出现在夏季水体底层, 且以 DM_{eHg} 为主 (占 64%)。这个峰值正好与夏季水体底层 DO 出现极低值 (1.58 $mg \cdot L^{-1}$) 相对应 (pH 降低至 6.88), 而对应的 RH_{Hg} 则正好也出现了全年最高值 (0.62 $ng \cdot L^{-1}$)。低 DO 低 pH 高 RH_{Hg} 浓度, 为无机汞的甲基化提供了有利条件 (Susanne et al., 2001)。

通常水体甲基汞含量高低受多种因素的影响, 包括: DO、pH、 RH_{Hg} 和 TH_{Hg} 浓度、氧化还原电位、温度等 (Ulrich et al., 2001), 但实际的控制因素会因具体环境的不同而各异。有研究表明, 硫酸盐还原菌在无机汞的甲基化过程中起到了主要的作用

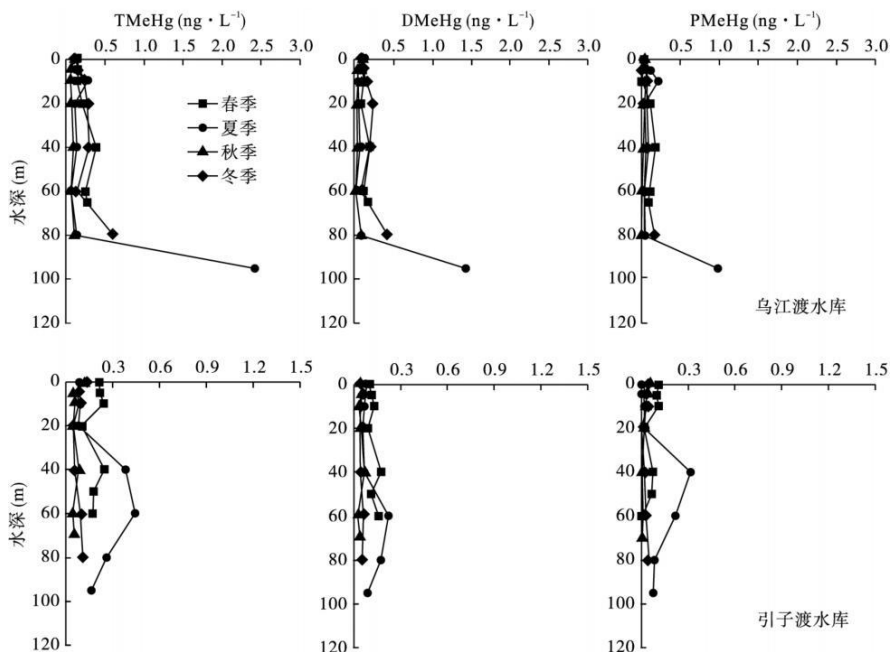


图 3 乌江渡水库和引子渡水库水体总甲基汞、溶解态甲基汞、颗粒态甲基汞的季节性剖面变化趋势

Fig. 3 Water column profiles of the TM_{eHg} , DM_{eHg} and PM_{eHg} concentrations determined in WJD and YZD

(Eckley et al., 2005; Watras et al., 2005)。Funari et al. (1980) 研究发现, 水体中甲基汞的升高来自于表层沉积物孔隙水对上覆水体的扩散, 但是也有研究 (Verta et al., 1995; Meiji 1997; Regnell et al., 1997) 表明, 水体中升高的甲基汞来自上层水体颗粒物沉降或水体本身净甲基化速率的升高。本研究中底层水体甲基汞浓度的升高, 低 DO 低 pH 高 RH 起到了积极的促进作用。

乌江渡水库 DMHg 含量在各个季节差别很少, 但是有两个比较明显的峰值, 其中一个是在夏季水体 10 m 处 ($0.22 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$), 其原因可能为 5~10 m 处藻类对甲基汞的吸附导致了该层段颗粒态甲基汞的升高, 而后又随着水体深度的增加而降低。另外一个明显的峰值出现在水体底部 95 m ($1.44 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$), 归因于水库底部沉积物的再悬浮。很多研究都证实了此现象的存在 (Mason et al., 1998; Mason et al., 1999; Lawson et al., 2001)。引子渡水库水体 TMHg、DMHg 和 PMHg 在各个季节浓度差别不大, 且垂直剖面上变化不明显, TMHg 仅在夏季水体 40 和 60 m 处出现微弱升高现象, 且升高的甲基汞主要以颗粒态形式存在 (66%)。这部分升高的甲基汞不可能来自大气降水, 因为夏季大气降水中甲基汞含量相对较低 (郭艳娜等, 2008 b), 同时也不可能来自水体本身无机汞的甲基化产生的甲基汞, 因为在这个层位 DO 和 pH 均相对较高, 并没有甲基化的合适环境。本研究表明, 夏季水体 40 m 处升高的 TMHg 来自于上覆水体生物颗粒物的沉降或丰水期河流侵蚀和地表径流带入水库的颗粒态汞。郭艳娜等 (2008 a) 研究表明, 对于演化初级阶段的水库, 丰水期随着降雨量、降雨强度的增加, 更多的颗粒态甲基汞随地表径流进入河流然后进入水库中, 入库河流水体中的 TMHg 高于枯水期, 且入库河流 TMHg 浓度与颗粒物和 PMHg 均呈显著相关关系。

总的来说, 乌江渡水库水体中各形态甲基汞均略高于引子渡水库, 特别是在水体底层明显高于引子渡水库。乌江渡水库甲基汞在季节、垂直剖面上均有一定的差别, 而引子渡水库则差别很小。

2.4 乌江渡水库界面水、引子渡水库底层水 DHg 和 DMHg 分布

如图 4 所示, 乌江渡水库界面水 DHg 浓度均明显高于上覆水体, 且冬季 ($5.56 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) > 秋季 ($3.98 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) > 夏季 ($1.91 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) > 春季 ($1.67 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)。由于界面水和上覆水体间存在

DHg 浓度梯度, 溶解态汞将从界面水向上覆水体扩散。界面水 DMHg 浓度表现为: 冬 ($4.78 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) > 秋季 ($3.75 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) > 春季 ($1.32 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) > 夏季 ($0.74 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)。春、秋、冬季明显高于上覆水体, 而在夏季则低于上覆水体。DMHg/DHg 为 $75\% \pm 24\%$, 表明甲基汞为乌江渡水库界面水的主要汞形态。引子渡水库底层水 DHg、DMHg 浓度和上覆水体无明显差别 (图 2、图 3)。

水环境中汞的甲基化主要是在厌氧、硫酸盐还原菌存在的环境下发生的 (Gilmour et al., 1991), 其过程往往受到多种因素 (物理、化学、生物) 的影响, 如 DO 有机质含量、氧化还原条件、pH 温度等 (Ulrich et al., 2001)。有研究 (Korthaus et al., 1987) 发现, 沉积物最大的甲基化率位于氧化还原边界层下面, 这个部位正好是硫酸盐还原菌的分布主要区域。马英军等 (2000) 对泸沽湖的研究发现, 氧化还原边界层随着季节的变化而上下迁移。

很多研究 (Mason et al., 1993; Baeyens et al., 1998; Mason et al., 1999) 发现, 在厌氧的水体中也存在高浓度的甲基汞, 其主要来源包括: 1) 沉积物孔隙水向上覆水体的扩散; 2) 颗粒物在厌氧环境下的溶解; 3) 厌氧的水体中无机汞的甲基化。春、秋、冬季乌江渡水库界面水 DMHg 明显高于上覆水体, 表明界面水是上覆水体 (界面水) 重要的甲基汞源。此时氧化还原界面层处于界面水附近, 甲基化或者发生在界面处或者发生于表层沉积物, 而界面水高浓度的甲基汞有可能来源于沉积物的扩散, 也有可能来源于界面水本身升高的甲基化或者降低的去甲基化。

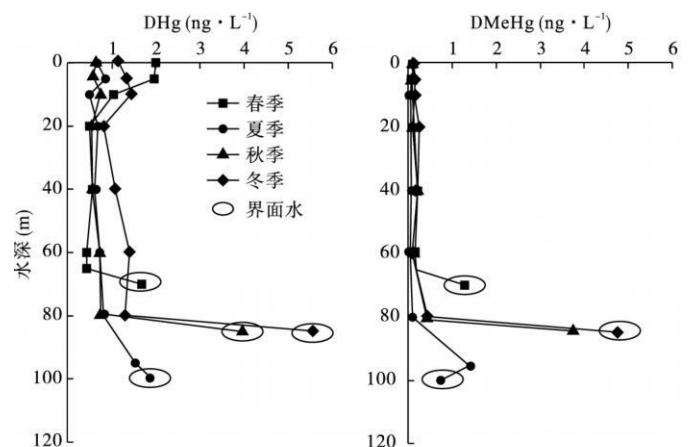


图 4 乌江渡水库水体、界面水中溶解态汞、溶解态甲基汞季节性剖面变化趋势

Fig 4 Distribution of the DHg and DMeHg determined in water column and interface water at WJJD

表 1 乌江渡水库、引子渡水库各形态汞 ($\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$) 与世界其他天然水体比较

Table 1 Comparison of levels of Speciated Hg in the Wujiangdu (WJD) and Yinzidu (YZD) reservoirs, Guizhou Province, China, with literature data

地点	THg	DHg	PHg	TMeHg	DMeHg	PMeHg	参考文献
Wisconsin Lakes	0.43~4.79	0.27~0.45	0.06~1.27	0.04~2.2	0.02~1.19	0.02~0.19	Warras et al., 1995
Lake Balaton	1.45~6.48	1.42~4.68	0.23~3.85	0.08~0.44	0.05~0.37	0.004~0.23	Nguyen et al., 2005
Creek reservoir USA	2~4.4	—	—	0.48~1.8	—	—	Gray & Hines, 2009
Dover straight	—	0.12~1.34	0.06~5.36	—	0.032~0.188	<0.038	Cossa et al., 1994
Maryland reservoir USA	0.4~6.8	—	—	0.048~0.38	—	—	Mason & Sveinsson, 2003
Cuchillo Negro Creek Mexico	0.84	—	—	0.018	—	—	Canavan et al., 2000
Canajoharie Reservoir	1.19~1.69	0.97~1.43	—	0.06~0.09	0.05~0.07	—	Scheeraghe et al., 2000
乌江渡水库	0.44~3.1	0.42~2.02	0.01~1.2	0.06~2.4	0.03~1.5	0.005~0.88	本研究
引子渡水库	0.40~1.4	0.25~0.85	0.06~0.89	0.04~0.44	0.03~0.22	0.0012~0.31	本研究

如图 4 所示, 夏季乌江渡水库界面水中 DMeHg 浓度 ($0.74 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$) 则明显低于上覆 (95 m) 水体 ($1.54 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$)。上覆水体 (95 m) 高浓度的 DMeHg 不可能来自孔隙水向上浮水体的散和颗粒物在厌氧环境下的溶解, 而只可能来自厌氧水体中无机汞的甲基化。因为底层水体 (95 m) DMeHg 浓度明显高于界面水, 这正好与此层位 DO 达到全年最低值 ($1.58 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$)、H⁺ 偏弱酸性 (6.88)、RHg 浓度也出现了峰值相对应, 而这些都是甲基化的有利条件, 所以出现这种现象的主要原因为夏季水体严重分层导致氧化还原界面已经迁移到了底层水体中, 使得水体底部 (95 m) 甲基化活跃, 但这并不能排除沉积物也有甲基化的发生。厌氧水体中发生甲基化的现象在其他研究中已有很多报道 (Mason et al., 1993; Baeyens et al., 1998; Mason et al., 1999; Canavan et al., 2000; 何天容等, 2006)。

总的来说, 乌江渡水库在全年均有甲基化现象发生, 说明乌江渡水库在全年都是甲基汞的“源”, 但是由于氧化还原界面季节性迁移使得甲基化出现的部位不同。郭艳娜等 (2008^a) 的研究也证实了乌江渡水库在各个季节出库水中总甲基汞含量在全年均高于入库水, 且在夏季表现的更为突出。

2.5 乌江渡水库、引子渡水库各形态汞含量与世界其他天然水体比较

如表 1 所示, 乌江渡水库、引子渡水库 THg、DHg、PHg 含量和世界其他未受污染天然水基本相当, 表明乌江渡水库、引子渡水库并未受到汞的污染。虽然乌江流域春、冬季民用燃煤造成高汞含量的大气干湿沉降 (Feng et al., 1999, 2000, 2002), 但并未导致整个乌江流域水体的严重污染。然而演化

高级阶段的乌江渡水库 TMeHg、DMeHg、PMeHg 均高于世界其他未受污染天然水体, 而引子渡水库 TMeHg、DMeHg、PMeHg 和世界其他未受污染天然水体无明显差别。表明, 随着水库演化阶段及初级生产力提高, 对汞的甲基化具有极大的促进作用。因此, 尽管目前引子渡水库甲基汞含量相对较低, 但不能排除随着水库演化阶段的提高甲基汞含量增高的可能。

3 结论

乌江渡水库水体 THg、DHg、PHg、RHg 浓度分别为 $0.44 \sim 3.13$ 、 $0.42 \sim 2.01$ 、 $0.01 \sim 1.17$ 、 $0.04 \sim 0.62 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 引子渡水库水体 THg、DHg、PHg、RHg 浓度分别为 $0.40 \sim 1.37$ 、 $0.25 \sim 0.85$ 、 $0.06 \sim 0.89$ 、 $0.04 \sim 0.48 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 乌江渡水库、引子渡水库水体 THg、DHg、PHg 和世界其他未受污染天然水体相当, 表明该水系并未受到明显的汞污染。

乌江渡水库水体 TMeHg、DMeHg、PMeHg 浓度分别为 $0.06 \sim 2.42$ 、 $0.03 \sim 0.44$ 、 $0.01 \sim 0.88 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 引子渡水库水体 TMeHg、DMeHg、PMeHg 浓度分别为 $0.04 \sim 0.44$ 、 $0.03 \sim 0.22$ 、 $0.01 \sim 0.32 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$; 乌江渡水库水体各形态甲基汞浓度均高于世界其他未受污染天然水体, 而引子渡水库则相当; 乌江渡水库水体 TMeHg、DMeHg 浓度随着水体深度的增加而逐渐升高, 且夏季明显高于其他季节, 引子渡水库水体 TMeHg、DMeHg 浓度季节变化和垂直剖面差别均不明显, 表明演化高级阶段、初级生产力高的水库可以促进汞的甲基化作用。

演化高级阶段的乌江渡水库在全年均表现为甲基汞的“源”, 其甲基化的部位随着氧化还原界面层

的迁移而改变: 夏季氧化还原边界层迁移至上覆水体, 使得底层水体 (95 m) 出现明显的甲基化现象; 春、秋、冬季氧化还原边界层下移至水—沉积物界面, 甲基化或者发生在界面水或者发生在表层沉积物。演化初级阶段的引子渡水库目前并没有发现甲基化现象。

参考文献

白薇扬, 冯新斌, 孙 力, 等. 2006 贵阳市阿哈湖水体和沉积物间隙水中汞的含量和形态分布初步研究. 环境科学学报, **26**(1): 91—98

党安志. 2008 乌江上游阶梯开发对浮游植物分布的影响研究(硕士学位论文). 贵阳: 贵州师范大学.

郭艳娜, 冯新斌, 闫海鱼, 等. 2008^a 梯级水库修建对乌江甲基汞分布的影响. 环境科学研究, **21**(2): 29—34

郭艳娜, 冯新斌, 何天容, 等. 2008^b 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

何天容, 冯新斌, 李仲根, 等. 2006 季节性缺氧水库甲基汞的产生及其对下游水体的影响. 湖泊科学, **18**(6): 565—571

蒋红梅, 冯新斌, 李广辉, 等. 2006 乌江流域水库水体中溶解性气态汞季节变化特征. 环境科学与技术, **29**(8): 34—35

马英军, 万国江, 刘丛强, 等. 2000 泸沽湖氧化还原边界层的季节性迁移对水质的影响. 环境科学学报, **20**(1): 27—32

钱晓莉, 冯新斌, 闭向阳, 等. 2008 贵州省草海表层水体和沉积物间隙水中汞的含量和形态分布初步研究. 湖泊科学, **20**(5): 563—570

王雨春, 朱 俊, 马 梅, 等. 2005 西南峡谷型水库的季节性分层与水质的突发性恶化. 湖泊科学, **17**(1): 54—60

喻元秀. 2008 乌江中上游梯级水电开发对河流碳循环的影响(博士学位论文). 贵阳: 中国科学院地球化学研究所.

朱 俊, 刘丛强, 王雨春, 等. 2006 乌江渡水库中溶解性硅的时空分布特征. 水科学进展, **17**(3): 330—333

Agency for Toxic Substances Disease Registry (ATSDR). Toxicological profile for mercury. ATSDR Atlanta GA 1997

Abemathy AR, Cumbie PM 1977. Mercury accumulation by largemouth bass (*Micropterus salmoides*) in recently impounded reservoirs. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology **17**: 595—602

Anderson MR, Scruton DA, Williams UP, et al 1995. Mercury in fish in the smallwood reservoir Labrador twenty one years after impoundment. Water Air & Soil Pollution **80**: 927—930

Baeys W, Meulman C, Muhava B, et al 1998. Behaviour and speciation of mercury in the Scheldt estuary (water sediments and benthic organisms). Hydrobiologia **366**: 63—79

Canavan CM, Caldwell CA, Bloom NS 2000. Discharge of methylmercury enriched hypolimnetic water from a stratified

reservoir. Science of Total Environment **260**: 159—170

Cossa D, Sayman J, Noel J 1994. Mercury transport in the waters of the Strait of Dover. Marine Pollution Bulletin **28**: 385—388

Cox JA, Camahan J, Dinuzo J, et al 1979. Source of mercury in fish in new impoundments. Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology **23**: 779—783

Eckley CS, Watras CJ, Hintemann H 2005. Mercury methylation in the hypolimnetic waters of lakes with and without connection to wetlands in northern Wisconsin. Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences **62**: 400—411

Feng XB, Hong YT, Hong B 2000. Mobility of some potentially toxic trace elements in the coal of Guizhou, China. Environmental Geology **39**: 372—377

Feng XB, Hong YT 1999. Modes of occurrence of mercury in coals from Guizhou, P. R. China. Fuel **78**: 1181—1188

Feng XB, Jiang HM, Qiu GL, et al 2009^a Mercury mass balance study in Wujianglu and Dongfeng Reservoirs, Guizhou, China. Environmental Pollution **157**: 2594—2607

Feng XB, Jiang HM, Qiu GL, et al 2009^b Geochemical processes of mercury in Wu, Jiang, Du and Dongfeng Reservoirs, Guizhou, China. Environmental Pollution **157**: 2970—2984

Feng XB, Sammar J, Lindqvist Q, et al 2002. Occurrence, emissions and deposition of mercury during coal combustion in the province Guizhou, China. Water Air & Soil Pollution **139**: 311—324

Furutani A, Rudd JW 1980. Measurement of mercury methylation in lake water and sediment samples. Applied and Environmental Microbiology **40**: 770—776

Ginnour CC, Henry EA 1991. Mercury methylation in aquatic systems affected by acid deposition. Environmental Pollution **71**: 131—169

Gray JE, Hines ME 2009. Biogeochemical mercury methylation influenced by reservoir eutrophication. Salmon Falls Creek Reservoir, Idaho, USA. Chemical Geology **258**: 157—167

Heves A, Moore TR, Rudd JWM, et al 2000. Methylmercury in pristine and impounded boreal peatlands: experimental Lakes Area, Ontario. Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences **57**: 2211—2222

Hurley JP, Watras CJ, Bloom NS 1991. Mercury cycling in a northern Wisconsin seepage lake: The role of particulate matter in vertical transport. Water Air & Soil Pollution **56**: 543—551

Johnston TA, Bodaly RA, Mathias JA 1991. Predicting fish mercury levels from physical characteristics of boreal reservoirs. Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences **48**: 1468—1475

Kelly CA, Rudd JWM, Bodaly RA, et al 1997. Increases in fluxes of greenhouse gases and methylmercury following flooding of an experimental reservoir. Environmental Science and Technology **31**: 1334—1344

Kinnel BL, Groege AW 1984. Factors controlling primary production in lakes and reservoirs. A Perspective // Lake and Reservoir Management. Washington DC, US: Environmental Protection Agency 277—281

- Korthals EJ, Winfrey MR. 1987. Seasonal and spatial variation in mercury methylation and demethylation in an Oligotrophic Lake. *Applied and Environmental Microbiology* **53**: 2397–2404.
- Lawson NM, Mason RP, Laporte M. 2001. The fate and transport of mercury, methylmercury and other trace metals in Chesapeake Bay Tributaries. *Water Research* **35**: 501–515.
- Liang L, Horvat M, Bloom NS. 1994. An improved speciation method for mercury by GC/CVAFS after aqueous phase ethylation and room temperature pre-collection. *Talanta* **41**: 371–379.
- Louchouart P, Lucotte M, Mucci A, et al. 1993. Geochemistry of mercury in a hydroelectric reservoir in Quebec, Canada. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences* **50**: 269–281.
- Lucotte M, Schetagne R, Therien N, et al. 1999. Mercury in the Biogeochemical Cycle. *Natural Environments and Hydroelectric Reservoirs of Northern Quebec (Canada)*. Berlin: Springer.
- Mason RP, Fitzgerald WF, Hurley JP, et al. 1993. Mercury biogeochemical cycling in a stratified estuary. *Limnology and Oceanography* **38**: 1227–1241.
- Mason RP, Sullivan KA. 1999. The distribution and speciation of mercury in the South and equatorial Atlantic. *Deep-Sea Research* **46**: 937–956.
- Mason RP, Sullivan KA. 1998. Mercury and methylmercury transport through an urban watershed. *Water Research* **32**: 321–330.
- Mason RP, Sveinbjottir AY. 2003. Mercury and Methylmercury Concentrations in Water and Largemouth Bass in Maryland Reservoirs [EB/OL]. [2010-10-20]. http://www.dnr.state.md.us/stream/syPub/syad03-1_HG_bass.Pdf
- Meili M. 1997. Mercury in lakes and rivers // Sigel A, Sigel H, eds. *Mercury and Its Effects on Environment and Biology*. New York: Marcel Dekker Inc.: 21–51.
- Meister JF, DNumajo J, Cox JA. 1979. Source and level of mercury in a new impoundment. *Journal of American Water Works Association* **71**: 574–576.
- Meng B, Feng XB, Chen CX, et al. 2010. The impact of levels of primary productivity on methylmercury distribution in reservoirs. *Journal of Environmental Quality* **39**: 1624–1635.
- Nguyen HL, Leemakers M, Kurunczi S, et al. 2005. Mercury distribution and speciation in Lake Balaton, Hungary. *Science of Total Environment* **340**: 231–246.
- Regnell Q, Ewald G. 1997. Factors controlling temporal variation in methylmercury levels in sediment and water in a seasonally stratified lake. *Limnology and Oceanography* **42**: 1784–1795.
- Schetagne R, Doyon JF, Fournier JJ. 2000. Export of mercury downstream from reservoirs. *Science of the Total Environment* **260**: 135–145.
- Smith FA, Shama RP, Lynn RJ, et al. 1974. Mercury and selected pesticide levels in fish and wildlife of Utah I. Levels of mercury, DDT, DDE, Dieldrin and PCB in fish. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology* **12**: 218–223.
- USEPA. 2002. Method 1631. Mercury in Water by Oxidation, Purge and Trap, and Cold Vapor Atomic Fluorescence Spectrometry. Washington DC: U.S. EPA: 1–31.
- USEPA. 2001. Method 1630. Methylmercury in water by distillation, aqueous ethylation, purge and trap, and CVAFS. Washington DC: U.S. EPA: 1–41.
- Ulrich SM, Wanton TW, Abdurshiova SA. 2001. Mercury in the aquatic environment: A review of factors affecting methylation. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* **31**: 241–293.
- Wang BL, Liu CQ, Wang FS, et al. 2008. The distribution of autumn picoplankton in relation to environmental factors in the reservoirs along the Wujang River in Guizhou Province, SW China. *Hydrobiologia* **598**: 35–45.
- Wang BL, Liu CQ, Wang FS, et al. 2009. Flow cytometric observation of picoplankton community structure in the cascade reservoirs along the Wujang River, SW China. *Journal of Limnology* **68**: 53–63.
- Wattas CJ, Morrison KA, Host JS, et al. 1995. Concentration of mercury species in relationship to other site-specific factors in the surface waters of Northern Wisconsin Lakes. *Limnology and Oceanography* **40**: 556–650.
- Wattas CJ, Morrison KA, Kent AD, et al. 2005. Sources of methylmercury to a wetland-dominated lake in northern Wisconsin. *Environmental Science and Technology* **39**: 4747–4758.
- Wiener JG, Krabbenhoft DP, Heinz GH, et al. 2003. Ecotoxicology of Mercury // Hoffman DJ, Ratne BA, Burong Jr CA, eds. *Handbook of Ecotoxicology*. Lewis: Boca Raton: 439–440.
- Vena M, Matijainen T. 1995. Methylmercury distribution and partitioning in stratified Finnish forest lakes. *Water, Air and Soil Pollution* **80**: 585–588.

作者简介 孟博,男,1982年生,博士研究生,主要从事汞的生物地球化学循环研究。E-mail: mengbo05@gmail.com
责任编辑 魏中青