

乌江流域东风水库水体中 不同形态汞的时空分布特征

潘鲁生^{1,2}, 商立海², 冯新斌², 孟 博^{2,3}, 姚 珩^{2,3}, 尹润生^{2,3}, 陈瑜鹏^{2,4}

1. 贵州大学 资源与环境工程学院, 贵阳 550003; 2. 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; 3. 中国科学院研究生院, 北京 100049; 4. 西南大学 资源环境学院, 重庆 400716

摘 要: 为弄清东风水库水体中不同形态汞的时空分布特征, 在春季和夏季对东风水库进行采样, 分别利用两次金汞齐-冷原子荧光法(CVAFS)和蒸馏-乙基化结合气相色谱冷原子荧光法(GC-CVAFS)测定总汞(THg)和甲基汞(MeHg)浓度。结果表明, 东风水库 THg(0.63~3.06 ng/L)和 MeHg 浓度(0.023~0.081 ng/L)与未受污染的天然湖泊水平相当, 水库未受到明显的汞污染。夏季总汞(THg)、颗粒态汞(PHg)以及颗粒态甲基汞(PMeHg)浓度均值分别是春季的 1.8、2.9 和 1.7 倍, 但春季总甲基汞(TM eHg)和溶解态甲基汞(DMeHg)高于夏季。季节性降雨强度的差异可能是导致东风水库水体不同形态汞浓度季节性变化的主要原因。此外, 东风水库上游水体 THg 和 PHg 显著高于中下游水体, 表明东风水库的修建对 THg 具有一定的拦截作用。

关 键 词: 东风水库; 汞; 甲基汞; 季节性

中图分类号: P592 文献标识码: A 文章编号: 1007-2802(2010)03-0256-08

Spatial and Temporal Distribution of the Different Forms of Mercury in the Water of Dongfeng Reservoir, Guizhou Province

PAN Lu-sheng^{1,2}, SHANG Li-hai², FENG Xin-bin², MENG Bo^{2,3},
YAO Heng^{2,3}, YIN Run-sheng^{2,3}, CHEN Yu-peng^{2,4}

1. College of Resources & Environment Engineering, Guizhou University, Guiyang 550003, China; 2. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China; 3. Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 10003, China; 4. College of Resources & Environment, Southwest University, Chongqing 400716, China

Abstract: In order to find out the spatial and temporal distribution of the different species of mercury (Hg) in the waterbody of Dongfeng Reservoir (DR). Mercury (Hg) and methyl mercury (MeHg) concentrations in the water of DR were analyzed by cold vapor atomic fluorescence spectrometry (CVAFS) and GC-CVAFS detection. The results showed that total Hg (THg) and MeHg were at the same level of uncontaminated reservoirs worldwide. It also showed that both of THg, particle mercury (PHg) and particle methyl mercury (PMeHg) in Summer were much higher than that in spring. However, dissolved methyl mercury (DMeHg) and Total methyl mercury (TM eHg) concentrations in summer were lower than those in spring. There were no significantly difference between dissolved mercury (DHg) concentrations in summer and those in spring. It indicated that seasonal rainfall intensity was an important factor which influenced the seasonal variation of mercury and methyl mercury. In addition, concentrations of THg and PHg in the upstream were higher than that in the middle and the downstreams, indicating that reservoir was in favor of desposition of mercury and interception of total mercury of river.

Key words: Dongfeng reservoir; mercury; methylmercury; seasonality

收稿日期: 2010-01-07 收到; 02-01 改回

基金项目: 国家自然科学基金重点资助项目(40532014, 40873085)

第一作者简介: 潘鲁生(1984—), 男, 硕士研究生, 专业方向: 环境污染控制技术. E-mail: plsh840501@163.com.

通讯作者: 冯新斌(1968—), 男, 博导. E-mail: fengxinbin@vip.skleg.cn.

汞是生物非必需的重金属元素,其单质和化合物均有极强的毒性。自 20 世纪 50 年代日本水俣病到 80 年代发现北美和北欧偏远地区湖泊中鱼汞含量超标以来,水体中汞及其化合物的研究愈来愈受到重视^[1-4]。水体中的汞很容易受水环境特征的变化而发生形态转化。研究证实筑坝拦截河流形成的水库环境有利于汞的活化和甲基化。水库是典型的汞敏感生态系统^[5-9]。因此,水库水体中汞形态的研究是汞环境地球化学行为研究的热点之一。

我国是水库大国,截至 2005 年,仅长江流域已建成水库 4.8 万座,其中大型水库 137 座^[10]。乌江是长江上游南岸最大的支流,按照“西电东送”计划,乌江干流将建成 11 个梯级水电站,至 2009 年底,已有普定、东风、引子渡、乌江渡、索风营、构皮滩和思林等水库建成蓄水。蒋红梅^[11]对乌江干流不同形态汞的沿程变化分析表明,水库显著改变了河流原有的汞的生物地球化学过程,可能使河流输送汞在通量、形态组成及空间分布上发生了变化。乌江流域主要水库的出入库河流 Hg 分析结果显示,梯级水库的修建使多个河段的甲基汞浓度升高^[4,12]。以上研究表明乌江流域梯级水库的修建对流域 Hg 形

态的时空分布产生了一定影响。此外,乌江流域水库水体汞浓度还有季节性变化特征^[4,11-14],不同研究结果有所差别。为进一步弄清水库中 Hg 形态的分布及转化机制,本文研究了东风水库中汞的时空分布特征,以为水库的汞污染治理提供理论依据。

1 材料与方法

1.1 采样点的布设与样品的采集

东风水库位于乌江干流鸭池河河段,在贵州省黔西县、织金县和清镇市交界处,距贵阳市约 80 km。始建于 1994 年,总库容 10.25 亿 m³,年径流量 108.8 亿 m³,正常蓄水 4.91 亿 m³,正常蓄水位时水库面积 19.25 km²,属于季节性调节水库。

3 个采样点分别位于水库上游(DSY)、中游(DZY)和下游(大坝 DDB)(图 1):DSY 采样点位于引子渡水库大坝之后,为引子渡水库下泄河流;DZY 采样点位于引子渡和洪家渡水库下泄水(支流)的交汇处;DDB 采样点距东风水库大坝约 300 m。分别为 2009 年 2 月和 6 月的两次采样所得。

用 5 L Niskin 采水器(型号 1010,美国)在不同采样点分层采集水样,每个采样点分 6 层采集,所采水样按溶解态汞(DHg)、总汞(THg)、溶解态甲基汞(DMeHg)和总甲基汞(TMeHg)分别装入 100 mL 硼硅玻璃采样瓶中,并加入 4% (体积比)盐酸进行酸化固定。溶解态汞和溶解态甲基汞用 0.45 μm (Millipore)滤膜现场过滤。带回实验室后保存于 4℃ 以下,并在 28 d 内测定完毕。

1.2 样品分析

溶解态汞和总汞采用两次金汞齐冷原子荧光光谱法(CVAFS)^[15]测定,颗粒态汞(PHg)为总汞和溶解态汞的差值。所用仪器为加拿大生产的测汞仪(Tekran model 2500),最低检出限 0.01 ng/L。

溶解态甲基汞和总甲基汞(TMeHg)采用蒸馏-乙基化结合 GC-CVAFS 法^[16]测定,颗粒态甲基汞(PMeHg)为 TMeHg 和 DMeHg 的差值。所用仪器同上,最低检出限为 0.009 ng/L。

采用便携式多功能水质参数仪(上海, PB-5010)现场测定水样 pH、水温(*t*)等参数。溶解性有机碳(DOC)采用高温燃烧法测定,所用仪器为德国生产的总有机碳分析仪(Elementar, High TOC II),检测限为 0.2 mg/L。

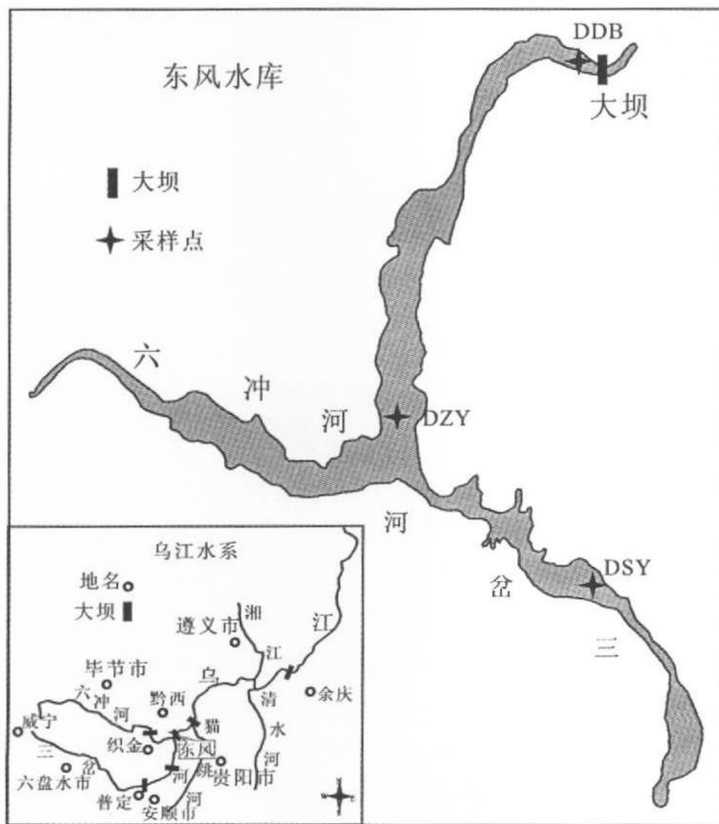


图 1 东风水库采样点分布图

Fig. 1 Location of the sampling sites in Dongfeng Reservoir

2 结果与讨论

2.1 水库水质特征的时空变化

图 2 显示了水库水体主要水质参数的时空变化特征(温度、pH、悬浮颗粒物以及溶解有机碳)。从图 2 可知,春季水温为 11.4~ 14.9℃,变化幅度小,

没有明显的温跃层。3 个采样点水体温度从表层到底层均有先降后升的趋势,且水温最低值分别出现在水深 40、50 和 30 m 处(上、中、下游的最大水深分别为 53、83 和 87 m)。这种水温的分布特征可能会导致水库中下层的水体交换。

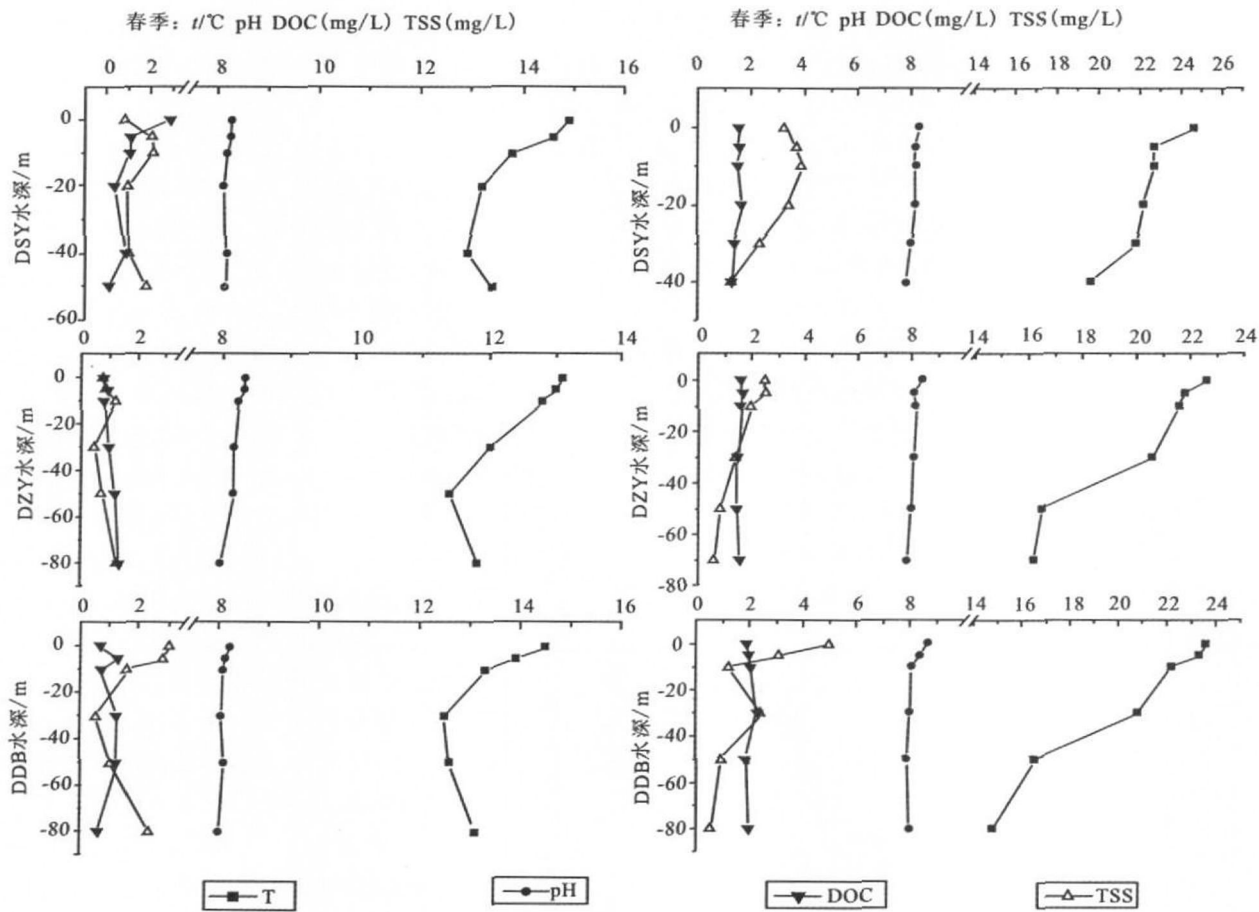


图 2 东风水库上、中、下(大坝)游水体温度、pH、悬浮颗粒物以及溶解性有机碳的时空变化

Fig. 2 Spatial and temporal distribution of temperature, pH, suspended matter and dissolved organic carbon in Dongfeng Reservoir

夏季水温为 14.8~ 24.6℃。水温均随水深的增加而降低。中游和大坝水层温差较大,在水深 30~ 50 m 处出现温跃层。上游水体水温变化幅度较小,温跃层出现在水深 30~ 40 m 处,这种温跃层的不同是由于上游水深较浅所致(上、中、下游的最大水深分别为 47 m、76 m、82 m)。

东风水库水体略偏碱性,pH 值为 7.82~ 8.65,无明显季节性变化;随水深增加,水体 pH 值在两个季节有微弱的变小趋势,且变化幅度夏季略大于春季。

整个水库水体 DOC 含量较低,变化范围为 0.5

~ 2.9 mg/L,除春季上游表水 DOC 含量为 2.9 mg/L 突然降至 5 m 水深处的 1.1 mg/L 外,DOC 随水体的深度无明显变化,但是夏季水库水体 DOC 含量高于春季,有明显季节性变化。

东风水库夏季水体总悬浮颗粒物(TSS)含量明显高于春季(平均含量是春季的 1.6 倍),上游水体 TSS 明显高于中、下游水体。夏季水库水体 TSS 含量在 3 个采样点都表现出从表层到底层的明显下降趋势。春季上游和中游采样点 TSS 随水深增加呈先增后降趋势,但在水库底部又随水深增加而增高;下游采样点与上、中游略有不同,表层水 TSS 含量

较高, 不具随水深的增加而降低的趋势。

2.2 水体中不同形态汞的分布

2.2.1 DHg、PHg 和 THg 的分布 东风水库 DHg、PHg 以及 THg 的时空分布特征见图 3。东风水库 DHg 的浓度为 0.18~0.89 ng/L。春季 DHg 浓度平均值(±SD)为 0.57 ± 0.22 ng/L, 夏季为 0.60 ± 0.13 ng/L; 表明 DHg 浓度没有明显的季节性差异($P > 0.05$)。在垂直方向的变化: 春季 DHg 在上游和下游采样点的表层和底层出现峰值, 表层峰值的出现是由于汞的外源性输入所致; 底层峰值的出现与该季节水库底部逆温(温度随深度的增加而升高)现象有关, 逆温导致水库底部水体上下交换, 水体上下交换带动沉积物向水体释放汞(底泥释放)^[17, 18], 使沉积物成为二次污染源^[18], 因而造成

底部 DHg 含量增高; 但中游采样点 DHg 却不符合这一规律, 除了在表层出现峰值外, 在 30 m 和 50 m 深度处浓度较高, 这可能与所处的流域位置有关, 因为该采样点处于干流三岔河(引子渡下泄水)和支流六冲河(洪家渡下泄水)的交汇处, 受到六冲河的影响。夏季 DHg 在垂直方向上没有明显规律性, 但同春季一样, 从表面到底层有浓度下降的趋势, 说明 DHg 主要受外源性汞污染源的影响。在流域上, 春季时 3 个采样点的 DHg 平均浓度(±SD)分别为 0.51 ± 0.22 ng/L、 0.66 ± 0.21 ng/L 和 0.53 ± 0.23 ng/L, 夏季分别为 0.55 ± 0.02 ng/L、 0.64 ± 0.10 ng/L 和 0.62 ± 0.21 ng/L, 春夏两季 DHg 在流域上均无明显变化($P > 0.05$)。

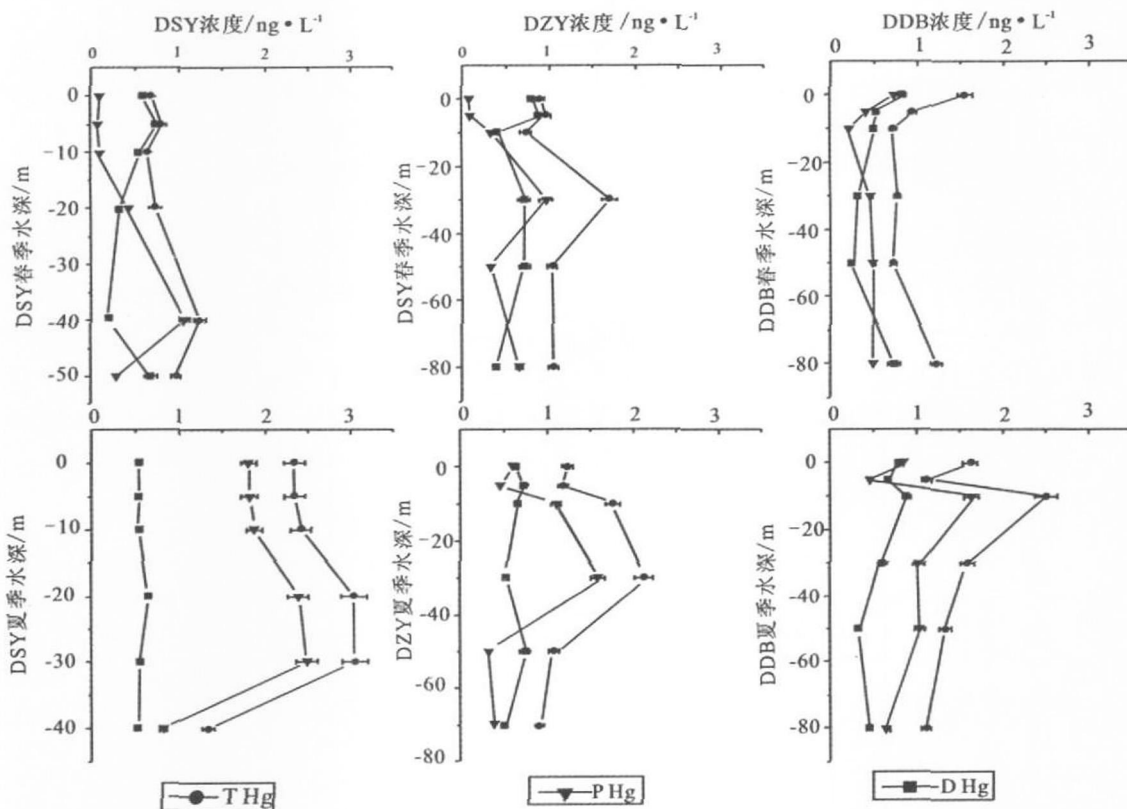


图3 东风水库水体汞(DHg、PHg、THg)的时空变化

Fig. 3 Partial and temporal distribution of mercury (dissolved mercury, particle mercury, total mercury) in Dongfeng reservoirs

东风水库 PHg 浓度为 0.06~2.50 ng/L。春季 PHg 平均浓度(±SD)为 0.41 ± 0.30 ng/L, 夏季为 1.19 ± 0.70 ng/L; 表明 PHg 有明显的季节性变化, 夏季浓度均值显著高于春季($P < 0.001$), 是春季的 2.9 倍。这主要是由于夏季降雨量、降雨强度增强了地表径流的冲刷作用, 乌江流域 80% 以上的

年降水量集中在 4~10 月^[14, 15], 大量的汞伴随颗粒物进入水库。因为夏季水体 TSS 也显著高于春季($P < 0.05$)。在垂直方向上, 春季上游和中游的 PHg 浓度随水深的增加而增高。这正是水库底部水体上下交换带动沉积物再悬浮所致^[17, 18]。因为悬浮颗粒物在水库底部也出现明显的增加趋势(图

2)。夏季 PHg 在 3 个采样点呈现随水深的增先增后降的规律, PHg 集中分布在 10~ 30 m 水层中, 且分别在 3 个采样点的 30 m、30 m 和 10 m 处出现峰值。这可能是由于汞吸附在生物活动层的藻类生物颗粒所致^[19]。流域上, 春季时 3 个采样点的 PHg 浓度平均值(±SD) 分别为 0.33±0.39 ng/L、0.42±0.35 ng/L 和 0.47±0.17 ng/L, 夏季分别为 1.88±0.61 ng/L、0.75±0.50 ng/L 和 0.93±0.41 ng/L。春季 PHg 从上游到下游无显著性差异($P>0.05$); 夏季 PHg 浓度显著高于中游和下游水体($P<0.05$)。这是由于夏季大量的含汞颗粒物随入库河流进入水库后, 水体流速变慢发生沉积作用之故。

东风水库 THg 浓度为 0.63~ 3.06 ng/L。春季 THg 浓度平均值(±SD) 为 0.98±0.31 ng/L (溶解态占 58.8%, 颗粒态占 41.2%), 夏季 THg 浓度平均值(±SD) 为 1.79±0.69 ng/L (溶解态占 33.5%, 颗粒态占 66.5%); 显示春季 THg 主要以溶解态形式存在, 夏季则以颗粒态为主。相关性分析表明, 春季 DHg 与 PHg($R=-0.348, n=18$) 和 THg($R=0.365, n=18$) 均无明显相关性, PHg 与 THg 具极显著正相关关系($R=0.746, n=18, P<0.01$); 夏季 DHg 与 PHg($R=0.067, n=18$) 和 THg($R=0.389, n=18$) 亦均无明显相关性, PHg 与 THg 具极显著正相关关系($R=0.945, n=18, P<0.01$)。以上分析表明, THg 的整体变化趋势取决于 PHg 的变化趋势, 但 DHg 也一定程度上影响了 THg 的变化, DHg 的这种影响作用在春季大于

夏季。

东风水库 THg 的时空变化特征与 PHg 的相似。主要表现为: 夏季浓度显著高于春季($P<0.001$), 是春季的 1.8 倍。在垂直方向上春季 THg 浓度变化不大, 没有明显的分布规律; 夏季 THg 相对集中在水深 10~ 30 m 处。在流域上, 春季 THg 变化不明显(上游平均浓度 ±SD 为 0.84±0.23 ng/L, 中游为 1.08±0.33 ng/L, 下游为 1.00±0.34 ng/L), 上、中、下游 THg 浓度没有显著性差异($P>0.05$); 夏季, 东风水库上、中、下游 THg 浓度平均值(±SD) 为 2.43±0.63 ng/L、1.39±0.46 ng/L、1.55±0.52 ng/L; 上游显著高于中游和大坝($P<0.05$)。说明水库的修建有利于流域汞的沉降, 水库对总汞有一定的拦截汇聚作用, 且主要表现在夏季。

乌江流域梯级水库出入库河流汞的时空分布研究表明, 出库河流 THg 低于入库河流 THg^[12], 水库表现为 THg 的汇。本次研究不仅证实了东风水库对 THg 有拦截汇聚作用, 也表明了 THg 的汇聚作用主要表现为水库中、上游 PHg 的沉降作用。研究还发现 THg 浓度的季节性变化表现为: 夏季>春季; 结果与文献[13] 和[14] 的结果一致。

将东风水库水体中不同形态 Hg 浓度与世界上其他天然湖泊相比较(表 1), 发现 THg、PHg 及 DHg 的浓度与其他未受污染的天然湖泊相差不大, 表明东风水库水体没有出现明显的汞污染。

表 1 东风水库水体中不同形态汞浓度与其它天然水体的比较

Table 1 Comparison of mercury and methyl mercury concentrations in the waters of Dongfeng Reservoir with other natural aquatic systems reported in recent literatures ng·L⁻¹

地点	THg	DHg	PHg	TMeHg	DMeHg	PMeHg	文献
Wisconsin lake	0.43~ 4.79		0.06~ 1.27	0.04~ 2.2	0.02~ 1.95	0.02~ 0.19	文献[20]
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	文献[21]
English Channel	0.15~ 0.87			0.015~ 0.065			文献[22]
Caniapiscaw Reservoir	1.19~ 1.69	0.97~ 1.43	< 0.44	0.06~ 0.09	0.05~ 0.07	0.02~ 0.04	文献[24]
贵州阿哈湖	2.08~ 19.14	2.08~ 8.36	0.28~ 14.80	< 0.43	0.03~ 0.39	< 0.27	文献[19]
东风水库	0.63~ 3.06	0.18~ 0.89	0.06~ 2.50	0.023~ 0.081	0.013~ 0.068	0.007~ 0.043	本文

2.2.2 DHg、PHg、THg 图 4 显示了东风水库水体 DMeHg、PMeHg 以及 TMeHg 的时空分布特征。DMeHg 浓度为 0.013~ 0.058 ng/L。春季 DMeHg 平均浓度(±SD) 为 0.043±0.009 ng/L, 夏季为 0.017±0.003 ng/L; 表明 DMeHg 在不同季节有明显的差异, 春季 DMeHg 浓度均值显著高于夏季($P<0.001$), 是夏季的 2.5 倍。这主要是由

于季节性降雨量和降雨强度的变化所致。一方面, 夏季处于丰水期(乌江流域 80% 以上的年降水量集中在 4~ 10 月^[13, 14]), 大量的雨水稀释了 DMeHg, 东风水库同期雨水 DMeHg 检测发现, 雨水甲基汞含量极低, 雨水对 DMeHg 有稀释作用。另一方面, 东风水库以发电为主要目的, 水量充沛的夏季为发电使水库频繁蓄水和泄水, 使水体交换频繁、水力停

留时间短,不利于形成水体汞甲基化环境,使水库甲基化率变低,因为水力停留时间是影响水体 Hg 甲基化的重要因素^[23]。垂向上,除春季大坝处 DMeHg 浓度随水深的增加而增高外,无明显规律性,这种变化趋势是由于大坝处水体的溶氧、pH 随水深的增加而变低所致(研究表明低 pH、厌氧条件有利于汞的甲基化^[24,25])。春季水库上、中、下游 DMeHg

浓度平均值(±SD)分别为 0.049 ± 0.006 ng/L、 0.041 ± 0.005 ng/L 和 0.039 ± 0.013 ng/L,表明 DMeHg 浓度无显著性差异($P > 0.05$);夏季水库上、中、下游 DMeHg 浓度平均值(±SD)分别为 0.020 ± 0.002 ng/L、 0.016 ± 0.003 ng/L 和 0.017 ± 0.002 ng/L,与春季一样,也无显著差异($P > 0.05$)。

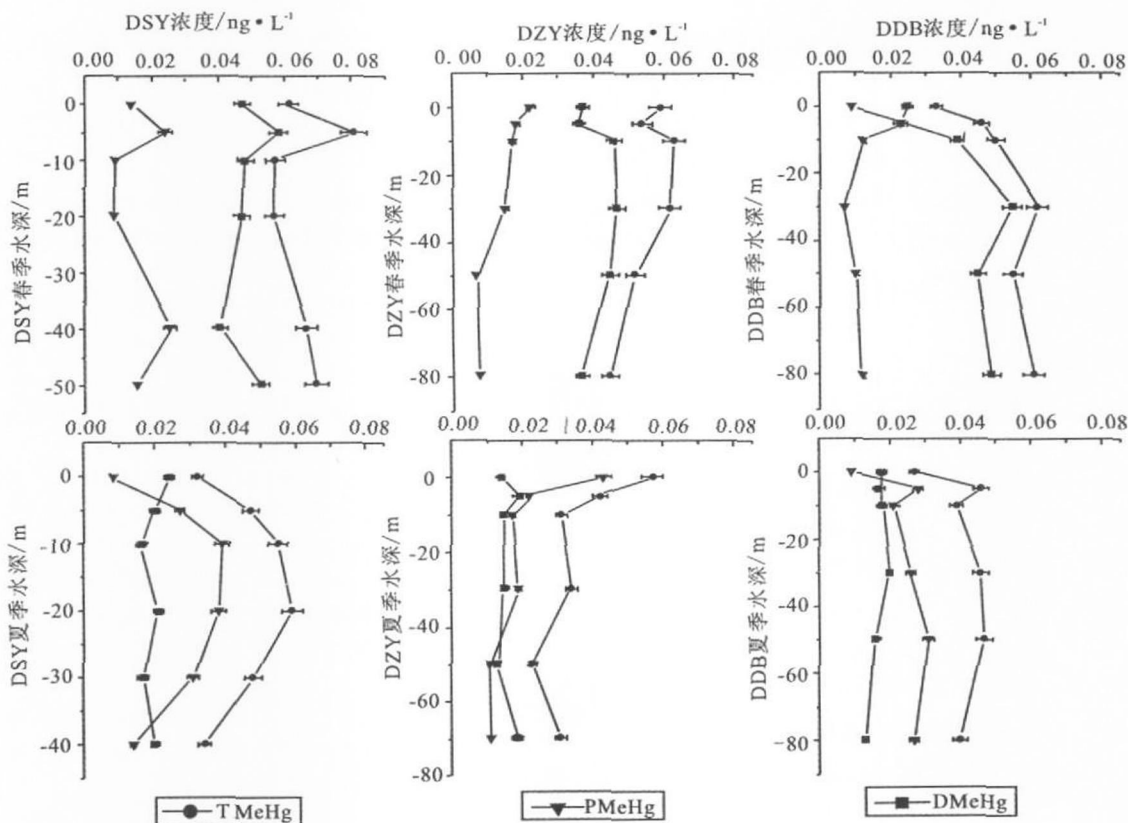


图4 东风水库水体甲基汞(DMeHg、PMeHg、TMeHg)的时空变化

Fig.4 Spatial and temporal distribution of methylmercury (dissolved methylmercury, particle methylmercury, total methylmercury) in Dongfeng Reservoirs

东风水库 PMeHg 浓度为 $0.007 \sim 0.043$ ng/L。春季 PMeHg 浓度平均值(±SD)为 0.014 ± 0.006 ng/L,夏季为 0.024 ± 0.011 ng/L;表明 PMeHg 具明显的季节性变化,夏季浓度均值显著高于春季($P < 0.05$),是春季的 1.7 倍。这主要是由于夏季降雨量和降雨强度比春季大,造成 TSS 浓度显著高于春季($P < 0.05$),PMeHg 浓度升高。垂直方向上,春季上游 PMeHg 随水深无明显变化;夏季上游 PMeHg 随水深的增加先剧增后缓降,在 10 m 处达到最大值。中游两个季节都表现出 PMeHg 随水体深度的增加而有变小的趋势,且在表水处出现最大值。这种现象可能与该采样点为两条河流交汇处有关,

水体混合均匀,加之人类活动对水体造成一定的影响,使 PMeHg 从表水往底部存在一定的浓度梯度。下游采样点春季 PMeHg 随水深的增加而降低,并在 30 m 处达到最低值 0.007 ng/L,之后又呈增加趋势,这也是由于春季水库底部逆温的沉积物再悬浮所致。春夏两季水库上、中、下游 PMeHg 浓度平均值与 DMeHg 一样无显著性差异($P > 0.05$)。

东风水库 TMeHg 浓度为 $0.023 \sim 0.081$ ng/L。春季 TMeHg 平均浓度(±SD)为 0.057 ± 0.011 ng/L(溶解态占 75.4%,颗粒态占 24.6%),夏季水库平均浓度(±SD)为 0.041 ± 0.011 ng/L(溶解态占 41.5%,颗粒态占 58.5%);显示春季

TM eHg 浓度均值显著高于夏季 ($P < 0.001$)。其原因是春季为枯水期, 水库处于蓄水状态, 水力停留时间长, 有利于水库水体的甲基化作用, 从而产生一部分内源性甲基汞, 使得水库水体 TMeHg 浓度相对较高^[24]; 由于雨水中甲基汞含量极低, 夏季雨量增强了雨水对水库甲基汞的稀释作用。春季甲基汞以溶解态为主, 夏季以颗粒态为主。相关性分析表明, 春季 DM eHg 与 TM eHg 具极显著正相关关系 ($R = 0.815, n = 18, P < 0.01$), DM eHg 与 PM eHg ($R = -0.131, n = 18$)、PM eHg 与 TM eHg ($R = 0.466, n = 18$) 均无明显相关性; 夏季 PM eHg 与 TM eHg 具极显著相关关系 ($R = 0.949, n = 18, P < 0.01$), DM eHg 与 PM eHg ($R = -0.188, n = 18$)、TM eHg ($R = 0.126, n = 18$) 也均无明显相关性。这说明春季 TM eHg 的变化趋势取决于 DM eHg 的变化, 夏季则取决于 PM eHg 的变化。

东风水库夏季 THg 浓度高于春季, 而 TMeHg 浓度却低于春季, 都是由于季节性降雨量和降雨强度的变化所致, 两者并不矛盾。该水库是贵州典型的高山峡谷水库, 夏季降雨量、降雨强度增加, 河流和地表径流的冲刷作用增强, 使水体颗粒物含量增加。夏季 THg 浓度升高主要是受 PHg 浓度升高的影响。数据统计分析发现, 总悬浮颗粒物 THg 平均浓度为 $0.55 \pm 0.50 \text{ mg/kg}$, 其中 TMeHg 仅占 THg 的 2.6%, 而水体 TMeHg 占水体 THg 的 4.5%。可见夏季颗粒物的增加对水体 THg 的贡献大于对 TMeHg 的贡献。对东风水库夏季同期雨水 THg 和 TMeHg 检测发现, 雨水 THg 浓度高达 17 ng/g , 远高于水库水体 THg 含量, 且雨水中 TMeHg 浓度极低而未检出。因此, 季节性降雨量、降雨强度的变化导致水库夏季水体 THg 浓度升高的同时, 对水体 TMeHg 有一定的稀释作用。

由表 1 可见, 东风水库水体中 MeHg 浓度略低于其他天然湖泊。这与贵州省所处的地质背景有关: 喀斯特地质环境使东风水库水体呈碱性 (pH 均值为 8.13); 而湖水 pH 降低会明显使净甲基化产率提高^[26, 27], 碱性湖水可能抑制了 MeHg 的形成。

3 结 论

东风水库水体 THg 浓度为 $0.63 \sim 3.06 \text{ ng/L}$, MeHg 浓度为 $0.023 \sim 0.081 \text{ ng/L}$ 。THg 浓度和 MeHg 浓度与世界其他未受污染的天然湖泊差异不大, 表明东风水库水体没有明显的汞污染。

东风水库水体中 Hg 和 MeHg 浓度均表现出明显的季节性变化, 主要是由于季节性降雨量、降雨

强度的变化所致。夏季的降雨强度、降雨量使地表径流的冲刷作用增强, 增加了水库汞的外源性输入, 导致 THg、PHg 浓度升高, 夏季雨水量的增加还使水库频繁蓄水和泄水, 水体库留时间短, 不利于汞的甲基化, 并使 MeHg 浓度被稀释而降低。

东风水库夏季 THg 和 PHg 还表现出明显的空间分布规律。夏季 THg 主要集中分布在水深 $10 \sim 30 \text{ m}$ 处; 上游水体 THg 浓度明显高于中游和下游水体。说明东风水库对 THg 具拦截汇聚作用, 有利于乌江流域汞的净化。

参考文献 (References):

[1] Hecky R E, Ramsey D J, Bodsly R A, Strange N E. Increased methylmercury contamination in fish in newly formed freshwater reservoirs [A]. Suzuki T. Advances in mercury toxicology [M]. New York: Plenum Press, 1991.

[2] Heyes A, Moore T R, Rudd J W M, Dugoua J J. Methylmercury in pristine and impounded boreal peatlands, experimental lakes area, Qntario [J]. Canada Journal of Fish Aquatic Science, 2000, 57(11): 2211- 2222.

[3] 张磊, 王超起, 邵志国. 第二松花江下游居民发汞水平及影响因素分析[J]. 环境科学研究, 2005, 18(6): 113- 115. Zhang Lei, Wang Qichao, Shao Zhiguo. Human hair mercury levels in the residents living along the second Songhuajiang River and the influencing factors[J]. Research of Environmental Sciences, 2005, 18(6): 113- 115. (in Chinese with English abstract)

[4] 郭艳娜, 冯新斌, 闫海鱼, 何天容, 孟博, 张军方, 姚玢, 钱晓莉. 梯级水库修建对乌江甲基汞分布的影响[J]. 环境科学研究, 2008, 21(2): 29- 34. Guo Yanna, Feng Xinbin, Yan Haiyu, He Tianrong, Meng Bo, Zhang Junfang, Yao Heng, Qian Xiaoli. Effect of construction of cascade reservoirs on the distribution of methylmercury in Wujiang River[J]. Research of Environmental Sciences, 2008, 21(2): 29- 34. (in Chinese with English abstract)

[5] Kelly C A, Rudd J W M, Bodaly R A, Roulet N P, Stlouis V L, Heyes A, Moore T R, Schiff S, Aravena R, Scott K J, Dyck B, Harris R, Warner B, Edwards G. Increases in fluxes of greenhouse gases and methylmercury following flooding of an experimental reservoir[J]. Environ Sci Technol, 1997, 31: 1334- 1344.

[6] Tremblay A, Lucotte M, Schetagne R. Total mercury and methylmercury accumulation in zooplankton of hydroelectric reservoirs in northern Quebec(Canada) [J]. Sci Total Environ., 1998, 213: 307- 315.

[7] Tremblay A, Cloutier L, Lucotte M. Total mercury and methylmercury fluxes via emerging insects in recently flooded hydroelectric reservoirs and a natural lake [J]. Sci Total Environ., 1998, 219: 209- 221.

[8] Tremblay A, Lucotte M. Accumulation of total mercury and methylmercury in insect larvae of hydroelectric reservoirs [J].

- Canada Journal of Fish Aquatic Science, 1997, 54: 832– 841.
- [9] Yingcharoen D, Bodaly R A. Elevated mercury levels in fish resulting from reservoir flooding in Thailand [J]. Asian Fisheries Science, 1993, (6): 73– 80.
- [10] 杨桂山. 长江保护与发展: 成就、问题与对策 [J]. 中国科学院院刊, 2007, 22(5): 381– 385.
Yang Guishan. Protection and development of the changjiang river: Achievements, problems and countermeasures [J]. Journal of the Chinese Academy of Sciences, 1993, (6): 73– 80. (in Chinese with English abstract)
- [11] 蒋红梅. 水库对乌江河流汞生物地球化学循环的影响 [D]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 2005.
Jiang Hongmei. Effects of hydroelectric reservoir on the biogeochemical cycle of mercury in the Wujiang River [D]. Guiyang: Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, 2005. (in Chinese with English abstract)
- [12] 郭艳娜, 冯新斌, 闫海鱼, 钱晓莉, 孟博, 姚珩. 乌江流域梯级水库入出库河流中总汞和甲基汞的时空分布 [J]. 长江流域资源与环境, 2009, 18(4): 356– 360.
Guo Yanna, Feng Xinbin, Yan Haiyu, Qian Xiaoli, Meng Bo, Yao Heng. Temporal and spatial distribution of total and Methylmercury in inflows and outflows of cascade reservoirs in Wujiang River [J]. Resources and Environment in the Yangtze Basin, 2009, 18(4): 356– 360. (in Chinese with English abstract)
- [13] 张军方. 乌江流域普定、东风水库汞的分布与质量平衡研究 [D]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 2009.
Zhang Junfang. Mercury distribution and mass balance study on Puding and Dongfeng reservoirs in Wujiang Watershed [D]. Guiyang: Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, 2009. (in Chinese with English abstract)
- [14] 刘凯. 贵州东风水库中不同形态汞迁移转化规律的初步探讨 [D]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 2009.
Liu Kai. The primary study on distributions and transformations of mercury in Dongfeng Reservoir, Guizhou, China [D]. Guiyang: Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, 2009. (in Chinese with English abstract)
- [15] 闫海鱼, 冯新斌, 商立海, 汤顺林, 仇广乐. 天然水体中痕量汞的形态分析方法研究 [J]. 分析测试学, 2003, 22(5): 10– 13.
Yan Haiyu, Feng Xinbin, Shang Lihai, Tang Shunlin, Qiu Guangle. Speciation analysis of ultra trace levels of mercury in natural waters [J]. Journal of Instrumental Analysis, 2003, 22(5): 10– 13. (in Chinese with English abstract)
- [16] 蒋红梅, 冯新斌, 梁琰, 商立海, 闫海鱼, 仇广乐. 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, 2004, 24(5): 568– 571.
Jiang Hongmei, Feng Xinbin, Liang Lian, Shang Lihai, Yan Haiyu, Qiu Guangle. Determination of methyl mercury in waters by distillation GC-CVAFS technique [J]. China Environmental Science, 2004, 24(5): 568– 571. (in Chinese with English abstract)
- [17] 徐毓荣, 徐钟际, 向申, 胡其乐, 封珩. 季节性缺氧水库铁、锰垂直分布规律及优化分层取水研究 [J]. 环境科学学报, 1999, 19(2): 147– 152.
Xu Yurong, Xu Zhongji, Xiang Shen, Hu Qile, Feng Heng. Vertical distribution of Fe and Mn and optimal pumping depth in a seasonal oxygen shortage reservoir [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 1999, 19(2): 147– 152. (in Chinese with English abstract)
- [18] 刘凯, 杨芳, 冯新斌, 付学吾, 李平, 孟博, 李仲根. 贵州省普定水库水体及沉积物孔隙水中汞的含量和形态分布初步研究 [J]. 矿物岩石地球化学通报, 2009, 28(3): 239– 247.
Liu Kai, Yang Fang, Feng Xinbin, Fu Xuewu, Li Ping, Meng Bo, Li Zhonggen. Concentrations and species distributions of mercury in water and sediment porewater of Puding Reservoir, Guizhou Province [J]. Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry, 2009, 28(3): 239– 247. (in Chinese with English abstract)
- [19] 白薇扬, 冯新斌, 孙力, 何天容, 付学武, 蒋红梅. 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 [J]. 环境科学学报, 2006, 26(1): 91– 98.
Bai Weiyang, Feng Xinbin, Sun Li, He Tianrong, Fu Xuewu, Jiang Hongmei. The concentration and distribution of different mercury species in the water columns and sediment porewater of Aha Lake [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2006, 26(1): 91– 98. (in Chinese with English abstract)
- [20] Watras C J, Morrison K A, Host J S, Bloom N S. Concentration of mercury species in relationship to other site specific factors in the surface waters of Northern Wisconsin Lakes [J]. Limnol Oceanogr, 1995, 40: 556– 650.
- [21] Nguyen H L. Mercury distribution and speciation in lake Balaton [J]. Hungary Science of the Total Environment, 2004, 35: 421– 454.
- [22] Leermakers M, Galletti S, De Galan S, Brion N, Baeyens W. Mercury in the Southern North Sea and Scheldt Estuary [J]. Mar. Chem., 2001, 75: 22– 48.
- [23] Feng X B, Jiang H M, Qiu G L, Yan H Y, Li G H, Li Z G. Mercury mass balance study in Wujiangdu and Dongfeng Reservoirs, Guizhou, China [J]. Environmental Pollution, 2009, 157: 2594– 2603.
- [24] Roger S E. Export of mercury downstream from reservoirs [J]. The Science of the Total Environment, 2000, 260: 135– 145.
- [25] Canavan C M, Caidwell C A, Bloom N S. Discharge of methylmercury-enriched hypolimnetic water from a stratified reservoir [J]. The Science of the Total Environment, 2000, 260: 159– 170.
- [26] Duarte A C, Pereira M E, Oliveira J P, Hall A. Mercury desorption from contaminated sediments [J]. Water, Air and Soil Pollution, 1991, 56: 77– 82.
- [27] Miskimmin B M, Rudd J W M, Kelly C A. Influence of dissolved organic carbon, pH, and microbial respiration rates on mercury methylation and demethylation in lake water [J]. Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences, 1992, 49: 17– 22.