

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第35卷 第11期

Vol.35 No.11

**2014**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

南京北郊夏季近地层臭氧及其前体物体积分数变化特征 ..... 邵平, 安俊琳, 杨辉, 林旭, 吉东生 (4031)

亚青会期间南京污染气体与气溶胶中水溶性离子的分布特征 ..... 邹嘉南, 安俊琳, 王红磊, 邵平, 段卿, 薛国强, 庞博 (4044)

亚青会期间南京地区气溶胶浓度变化及其与能见度的关系 ..... 袁亮, 银燕, 李琦, 肖辉, 李力 (4052)

2013年10月长株潭城市群一次持续性空气污染过程特征分析 ..... 廖志恒, 范绍佳, 黄娟, 孙家仁 (4061)

在线单颗粒气溶胶质谱 SPAMS 对细颗粒物中主要组分提取方法的研究 ..... 付怀于, 闫才青, 郑玫, 蔡靖, 李小滢, 张延君, 周振, 傅忠, 李梅, 李磊, 张远航 (4070)

PM<sub>10</sub>可替代源成分谱的建立方法及其应用 ..... 陈强, 景毅, 吴焕波, 王芳 (4078)

夏季东海和南黄海一氧化碳的浓度分布、海-气通量和微生物消耗研究 ..... 王敬, 陆小兰, 杨桂朋, 徐冠球 (4085)

三峡库区典型农田小流域水体汞的时空分布特征 ..... 王娅, 赵铮, 木志坚, 王定勇 (4095)

浑太水水体中不同粒径有机胶体荧光光谱特性 ..... 刘娜娜, 李斌, 刘瑞霞, 宋永会, 吴畏 (4103)

深圳湾流域 TN 和 TP 入海年通量变化规律研究 ..... 赵晨辰, 张世彦, 毛献忠 (4111)

滇池沉积物有机磷垂直分布特征及其生物有效性 ..... 熊强, 焦立新, 王圣瑞, 彭希琰 (4118)

金山湖闸坝型水体表层沉积物重金属分布特征及生态风险评价 ..... 周晓红, 刘龙梅, 陈曦, 陈志刚, 张金萍, 李义敏, 刘彪 (4127)

西藏普莫雍错湖芯沉积物中重金属的垂向分布特征及生态风险评估 ..... 谢婷, 罗东霞, 杨瑞强 (4135)

西安市雨水径流中重金属季节性污染特征及分析 ..... 袁宏林, 李星宇, 王晓昌 (4143)

城市不同下垫面降雨径流多环芳烃(PAHs)分布及源解析 ..... 武子澜, 杨毅, 刘敏, 陆敏, 于英鹏, 汪青, 郑鑫 (4148)

粗放型绿色屋面填料的介质组成对出水水质的影响 ..... 陈昱霖, 李田, 顾俊青 (4157)

饮用水处理中不同来源生物活性炭微生物群落多样性和结构研究 ..... 杜尔登, 郑璐, 冯欣欣, 高乃云 (4163)

压力强化混凝除藻工艺中藻毒素安全性研究 ..... 蒋新跃, 栾清, 丛海兵, 徐思涛, 刘玉娇, 朱学源 (4171)

基于膜特征参数变化的蛋白质超滤过程膜污染研究 ..... 王旭东, 张银辉, 王磊, 张慧慧, 夏四清 (4176)

臭氧氧化水溶液中对乙酰氨基酚的机制研究 ..... 曹飞, 袁守军, 张梦涛, 王伟, 胡真虎 (4185)

电辅助微生物反应器降解苯并噻唑效能的研究 ..... 刘春苗, 丁杰, 刘先树, 程旺斌 (4192)

铁镧复合氧化物纳米吸附剂的制备、表征及 As(III)吸附性能研究 ..... 张伟, 陈静, 张高生 (4198)

重金属铬胁迫下水蚯蚓的生理响应研究 ..... 楼菊青, 杨东叶, 曹永青, 孙培德, 郑平 (4205)

光质对蛋白核小球藻(*Chlorella pyrenoidosa*)生长特征及生化组成的影响研究 ..... 唐青青, 方治国, 嵇雯雯, 夏会龙 (4212)

常温低基质下碱度和溶解氧对厌氧氨氧化的影响 ..... 任玉辉, 王科, 李相昆, 马凯丽, 张杰 (4218)

Fe<sup>2+</sup>和 Fe<sup>3+</sup>对厌氧氨氧化污泥活性的影响 ..... 李祥, 黄勇, 巫川, 王孟可, 袁怡 (4224)

CSTR 中亚硝化颗粒污泥的变化过程研究 ..... 阴方芳, 刘文如, 王建芳, 吴鹏, 沈耀良 (4230)

盐度对好氧颗粒污泥硝化过程中 N<sub>2</sub>O 产生量的影响 ..... 王珊珊, 梁红, 高大文 (4237)

硫酸盐还原反应器污泥驯化过程中微生物群落变化分析 ..... 曾国驱, 贾晓珊, 郑小红, 杨丽平, 孙国萍 (4244)

利用铅同位素方法量化不同端元源对南京土壤和长江下游悬浮物铅富集的影响 ..... 王成, 夏学齐, 张义, 廖启林, 杨忠芳, 季峻峰 (4251)

北京东南郊土壤剖面氟喹诺酮类抗生素分布特征 ..... 苏思慧, 何江涛, 杨蕾, 乔肖翠, 崔亚丰 (4257)

环境因素对土壤中几种典型四环素抗性基因形成的影响 ..... 张俊, 罗方园, 熊浩徽, 焦少俊, 叶波平 (4267)

稻田土壤不同水分条件下硝化/反硝化作用及其功能微生物的变化特征 ..... 刘若萱, 贺纪正, 张丽梅 (4275)

典型岩溶土壤微生物丰度与多样性及其对碳循环的指示意义 ..... 靳振江, 汤华峰, 李敏, 黄炳富, 李强, 张家喻, 黎桂文 (4284)

变温环境对典型石灰土有机碳矿化的影响 ..... 王莲阁, 高若红, 丁长欢, 慈恩, 谢德体 (4291)

铁氧化物与电子供体基质交互作用对红壤性水稻土中 DDT 还原脱氯影响 ..... 刘翠英, 徐向华, 王壮, 姚童言 (4298)

植物套种及化学强化对重金属污染土壤的持续修复效果研究 ..... 卫泽斌, 郭晓方, 吴启堂, 龙新宪 (4305)

不同取样尺度下亚高山草甸土壤呼吸的空间变异特征 ..... 李洪建, 高玉凤, 严俊霞, 李君剑 (4313)

不同开垦年限黑土温室气体排放规律研究 ..... 李平, 郎漫, 徐向华, 李煜姗, 朱淑娟 (4321)

转 Cry1Ac 基因抗虫棉与其亲本棉花根际真菌多样性的比较 ..... 潘建刚, 焦海华, 白志辉, 齐鸿雁, 马安周, 庄国强, 张洪勋 (4329)

天津污灌区内气态汞的污染特征及在叶菜类蔬菜中的富集 ..... 郑顺安, 韩允垒, 郑向群 (4338)

1-硝基萘和 1,2-萘醌的联合细胞毒性和致 DNA 损伤 ..... 尚羽, 蒋玉婷, 张玲, 李怡 (4345)

鸡粪堆肥有机物演化对重金属生物有效性影响研究 ..... 卜贵军, 于静, 邱慧慧, 罗世家, 周大寨, 肖强 (4352)

污泥预植重金属 Cu 炭化及炭中重金属的稳定性研究 ..... 窦晓敏, 陈德珍, 戴晓虎 (4359)

上层曝气式生物反应器填埋工艺特性的研究 ..... 田颖, 王坤, 徐期勇 (4365)

硝酸盐连续回灌对生物反应器填埋场 N<sub>2</sub>O 产生的影响 ..... 卞荣星, 孙英杰, 李晶晶, 张欢欢 (4371)

中国碳强度下降和碳排放增长的行业贡献分解研究 ..... 蒋晶晶, 叶斌, 计军平, 马晓明 (4378)

泛长三角地区工业污染重心演变路径及其驱动机制研究 ..... 赵海霞, 蒋晓威, 崔建鑫 (4387)

基于污染防治技术模拟的造纸行业环境管理方法研究 ..... 张雪莹, 温宗国 (4395)

大气棕色碳的研究进展与方向 ..... 闫才青, 郑玫, 张远航 (4404)

《环境科学》征稿简则(4094) 《环境科学》征订启事(4126) 信息(4243, 4266, 4274, 4328)

# 三峡库区典型农田小流域水体汞的时空分布特征

王娅<sup>1</sup>, 赵铮<sup>1</sup>, 木志坚<sup>1,2,3</sup>, 王定勇<sup>1,2,3\*</sup>

(1. 西南大学资源环境学院, 重庆 400715; 2. 重庆市三峡库区农业面源污染控制工程技术研究中心, 重庆 400716; 3. 重庆市农业资源与环境研究重点实验室, 重庆 400716)

**摘要:** 以三峡库区典型农田小流域——重庆涪陵王家沟为对象, 分别于 2012 年 11 月~2013 年 9 月对流域内不同类型水体总汞 (THg) 和总甲基汞 (TMeHg) 含量进行为期 1 a 的监测, 探讨汞在农田流域水体中的时空分布特征。结果表明, 流域内水体 THg、TMeHg 浓度范围分别为 1.12~64.04 ng·L<sup>-1</sup>、0 (未检出)~4.24 ng·L<sup>-1</sup>, 均值分别为 (13.54 ± 10.55) ng·L<sup>-1</sup>、(0.22 ± 0.42) ng·L<sup>-1</sup>, 各类型水体 THg 均以颗粒态为主, 雨水和池塘水 TMeHg 以颗粒态为主, 井水和沟渠水则相反。在空间分布上, THg 表现为雨水最高, 池塘次之, 井水最低, W2 井相较于其他井 THg 浓度最高, 各沟渠点水体 THg 浓度差异不大; TMeHg 表现为沟渠水最高, 池塘次之, 井水最低, 井水 TMeHg 浓度下游大于上游, 各沟渠点水体 TMeHg 浓度差异大, 甲基化率为沟渠水 > 池塘水 > 井水 > 雨水。在时间变化上, 各类型水体 THg 浓度均表现为冷季高于暖季, TMeHg 浓度则因水体类型而异。综合分析发现雨水是流域内汞的重要来源; 农田流域颗粒物的迁移是汞、甲基汞迁移的主要途径, 地表径流是影响流域对水库汞负荷贡献量的重要因素。

**关键词:** 汞; 甲基汞; 地表径流; 农田流域; 三峡库区

中图分类号: X52 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2014)11-4095-08 DOI: 10.13227/j.hjxx.2014.11.008

## Spatial and Temporal Distribution of Mercury in Water of a Small Typical Agricultural Watershed in the Three Gorges Reservoir Region

WANG Ya<sup>1</sup>, ZHAO Zheng<sup>1</sup>, MU Zhi-jian<sup>1,2,3</sup>, WANG Ding-yong<sup>1,2,3</sup>

(1. College of Resource and Environment, Southwest University, Chongqing 400715, China; 2. Chongqing Engineering Research Center for Agricultural Non-point Source Pollution Control in the Three Gorges Reservoir Area, Chongqing 400716, China; 3. Chongqing Key Laboratory of Agricultural Resources and Environment, Chongqing 400716, China)

**Abstract:** The distribution of mercury (Hg) in four different water bodies (streams, pond, precipitation and wells) of a small typical agricultural watershed in the Three Gorges Reservoir region was studied during the period from November 2011 to September 2012. Total mercury (THg) and methylmercury (TMeHg) concentrations ranged from 1.12 ng·L<sup>-1</sup> to 64.04 ng·L<sup>-1</sup> and from 0 (undetected) to 4.24 ng·L<sup>-1</sup>, with an average of (13.54 ± 10.55) ng·L<sup>-1</sup> and (0.22 ± 0.42) ng·L<sup>-1</sup>, respectively. Particulate mercury (PHg) accounted for a major fraction of THg in these four water bodies, whereas for TMeHg dissolved fraction dominated in wells and streams, but not in pond and precipitation. An obvious spatial pattern of Hg distribution was observed with THg concentration in the order of precipitation > pond > streams > wells and streams > pond > precipitation > wells for TMeHg. The THg temporal distribution showed that THg concentrations in cold season were higher than that in warm season, but the temporal distribution of TMeHg varied with the water types. Comprehensive data analysis found that wet deposition was a significant source of Hg in this agricultural watershed and the particulate transport was the main way for Hg and MeHg transport in this watershed. In addition, surface runoff was an important process for Hg contribution from watershed to the Three Gorges Reservoir, but played a minor role for TMeHg load to the reservoir.

**Key words:** mercury; methylmercury; surface runoff; agricultural watershed; Three Gorges Reservoir

汞是一种具有挥发性、高毒性和生物累积性的全球性污染物, 自 20 世纪 50 年代日本发生水俣病事件以来, 环境汞污染一直是环境科学领域的研究热点问题之一。2013 年初, 历经四年谈判、旨在全球范围内控制和减少汞排放的国际公约《水俣公约》获得通过, 将在全球范围内引发新一轮对环境汞问题研究的热潮。研究表明, 陆地生态系统是大气汞的主要汇, 陆地环境中汞的迁移转化对河流、湖泊等水体汞有着直接的影响<sup>[1]</sup>。目前已有较多关于汞在陆生环境中的分布和迁移转化特征的研究,

但多集中于森林、湿地以及大面积混合型自然流域等<sup>[2-4]</sup>, 或是关注于有汞点源污染的区域<sup>[5,6]</sup>, 对农田流域中汞的循环及归趋的研究十分有限。

三峡水库是举世瞩目的特大型水库, 作为我国的战略水资源库, 其水质状况至关重要。库区流域

收稿日期: 2014-04-08; 修订日期: 2014-05-15

基金项目: 国家重点基础研究发展计划 (973) 项目 (2013CB430004); 国家自然科学基金项目 (41373113, 41173116)

作者简介: 王娅 (1990~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为水污染控制, E-mail: wangyawork@163.com

\* 通讯联系人, E-mail: dywang@swu.edu.cn

位于我国西南汞矿化带东缘、川东南高汞背景区,农田面积广,随着国家对库区点污染源控制的加强,可以预见库区流域对水库水体的影响将会增加<sup>[7]</sup>. 已有研究表明水库是典型的汞敏感生态系统<sup>[8]</sup>,而三峡水库自身特殊的水位调节方式,其水环境可能会利于汞的活化、甲基化和生物利用,因此,三峡库区的环境汞问题不容忽视. 目前对三峡库区汞问题的研究多是集中于水库本身<sup>[9~11]</sup>,对于汞在库区流域中的环境地球化学特征研究较少. 因此,本研究选取三峡库区典型农田小流域——重庆涪陵区王家沟农田小流域为对象,分析该流域中不同水体类型总汞、甲基汞的时空分布特征,通过了解农业环境下汞的时空分布以及迁移转化特征,以期为评价和预测三峡库区汞污染与健康风险提供重要的科学和理论依据,为库区汞问题治理提供基础性支撑资料.

## 1 材料与方法

### 1.1 研究流域概况

王家沟农田小流域地处于重庆市涪陵区珍溪镇东部,距涪陵城区 40 km,位居于长江北岸(29°54'N, 107°30'E),无工矿企业,是具有多土地利用格局的典型人工农业生态系统. 流域属亚热带季风气

候,年均气温 22.1℃,7 月最高(24~39℃),1 月最低(3~15℃); 年均降雨量 920 mm,且主要集中在 5 月末至 9 月初,9 月末至 12 月及 1 月阴雨天气较多,虽连续降雨,但降雨量少. 地形属典型丘陵地貌特征,海拔 153~307 m,除南部紧邻长江岸边有一水流汇出口外,其余均被山脊所包围,可认为是“封闭”的集水区. 流域总面积 72.3 hm<sup>2</sup>,其中旱地和水田分别占 66.3%、24.5%,顶部多为旱地,中部主要是石坎或土坎梯田,底部地势平坦,以水田为主. 流域内部分布有自然村落. 当地主要种植水稻、玉米和榨菜,春夏季 3~8 月种植水稻和玉米,秋冬季 9~12 月种植榨菜,还适当种植一些当地居民食用的应季蔬菜,耕作方式以人工耕作为主,微型机械耕作为辅,除人为作业扰动外无其他较大外源干扰.

### 1.2 采样点分布及样品采集

根据该流域水系分布特征,分别于 2012 年 11 月,2013 年 1、3、5、7、9 月中旬系统采集研究区不同类型水体,根据水体类型共设 25 个监测点,分别为井水(W1~W5)、池塘、沟渠水(D1~D16,C1、C2)以及雨水,具体分布见图 1. 雨水采用改进的降雨收集装置采集<sup>[12]</sup>. 预先在雨水收集瓶中加入一定量超纯盐酸,以防止汞形态转化以及吸附在器壁上.

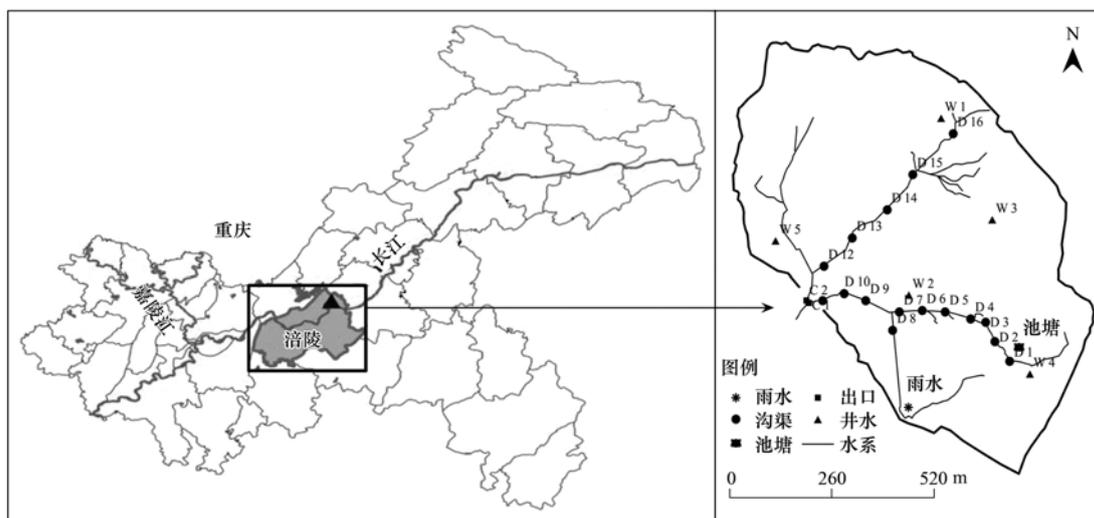


图 1 王家沟流域土地利用类型及采样点分布示意

Fig. 1 Distribution of land use types and the sampling sites in Wangjiagou watershed

水样采集后取出部分现场过滤(0.45 μm, Millipore)用于测量溶解态总汞和溶解态甲基汞,未过滤和过滤后水样均放置于经超净处理的硼硅玻璃瓶中,按 0.5% (体积比)加入超纯盐酸酸化. 避光冷藏保存,两周内测定完毕.

### 1.3 样品分析

水样的总汞(THg)、溶解态汞(DHg)、活性汞

(RHg)的测定采用两次金汞齐-冷原子荧光(CVAFS)光谱法<sup>[13]</sup>,RHg是指酸性介质中可以被氯化亚锡还原成 Hg<sup>0</sup>的汞,主要是二价离子态汞(Hg<sup>2+</sup>),THg和DHg分别是未过滤和过滤水样中的汞经氯化溴氧化成 Hg<sup>2+</sup>后被氯化亚锡还原成 Hg<sup>0</sup>的汞,颗粒态汞(PHg)=THg-DHg;总甲基汞(TMeHg)和溶解态甲基汞(DMeHg)的测定采用蒸

馏-乙基化结合 GC-CVAFS 法<sup>[14]</sup>, 颗粒态甲基汞 (PMeHg) = TMeHg - DMeHg; 溶解性有机碳 (DOC) 采用 Sievers InnovOx (GE, USA) 分析仪测定. 分析过程中的质量控制采用空白试验、平行样控制及加标回收率, 加标回收率为 80% ~ 120%, 并对 5% 的样品进行重复测定, 相对标准偏差 < 10%.

## 2 结果与分析

### 2.1 不同类型水体总汞时空分布特征

#### 2.1.1 不同类型水体总汞空间分布特征

流域内各水体不同形态汞统计结果见表 1, RHg、

THg 浓度范围分别为 0.04 ~ 4.38 ng·L<sup>-1</sup>、1.12 ~ 64.04 ng·L<sup>-1</sup>, 均值为 (0.73 ± 0.70) ng·L<sup>-1</sup>、(13.54 ± 10.55) ng·L<sup>-1</sup>. 其中 PHg/THg 范围为 16.43% ~ 95.16%, 均值为 (64.71 ± 22.15)%, 这表明颗粒态是该流域水体汞的主要存在形态. 由于水环境及外界干扰等因素差异, 各类型水体间汞浓度差异较大 (如图 2), THg 空间分布特征表现为雨水 > 池塘水 > 沟渠水 > 井水, W2 井相较于其他井 THg 浓度最高, 各沟渠点水体 THg 浓度差异不大, PHg 分布特征与 THg 基本一致, DHg 的浓度表现为雨水最高, 井水 DHg 浓度高于沟渠水.

表 1 各类型水体中不同形态汞浓度统计结果

Table 1 Statistics of concentrations of mercury species in Wangjiagou watershed

项目	样本数 (个)	RHg /ng·L <sup>-1</sup>	THg /ng·L <sup>-1</sup>	DHg /ng·L <sup>-1</sup>	PHg /ng·L <sup>-1</sup>	TMeHg /ng·L <sup>-1</sup>	DMeHg /ng·L <sup>-1</sup>	PMeHg /ng·L <sup>-1</sup>	DOC /mg·L <sup>-1</sup>	PHg/THg /%	PMeHg/TMeHg /%	TMeHg/THg /%
流域均值	112	0.73 ± 0.71	13.54 ± 10.55	3.66 ± 3.76	9.69 ± 9.14	0.22 ± 0.42	0.10 ± 0.10	0.13 ± 0.34	3.51 ± 2.38	64.71 ± 21.15	46.40 ± 19.97	1.84 ± 15.82
井水	30	0.92 ± 0.61	11.61 ± 8.43	4.69 ± 4.68	6.91 ± 5.80	0.09 ± 0.09	0.05 ± 0.06	0.04 ± 0.04	2.18 ± 2.01	59.56 ± 22.20	42.88 ± 19.39	0.85 ± 2.32
池塘水	6	1.20 ± 0.67	20.28 ± 6.56	6.86 ± 3.84	13.41 ± 4.19	0.28 ± 0.12	0.12 ± 0.10	0.16 ± 0.10	4.29 ± 0.39	66.15 ± 32.20	56.16 ± 25.87	1.37 ± 0.32
雨水	6	1.29 ± 1.99	35.54 ± 9.34	10.74 ± 6.92	25.22 ± 9.42	0.16 ± 0.06	0.07 ± 0.01	0.11 ± 0.02	2.47 ± 1.77	70.96 ± 13.52	68.91 ± 25.56	0.46 ± 0.70
沟渠水	70	0.54 ± 0.58	11.82 ± 8.59	2.4 ± 1.85	9.42 ± 8.42	0.29 ± 0.55	0.12 ± 0.12	0.17 ± 0.44	3.56 ± 1.24	68.88 ± 21.79	45.79 ± 19.20	2.22 ± 6.40

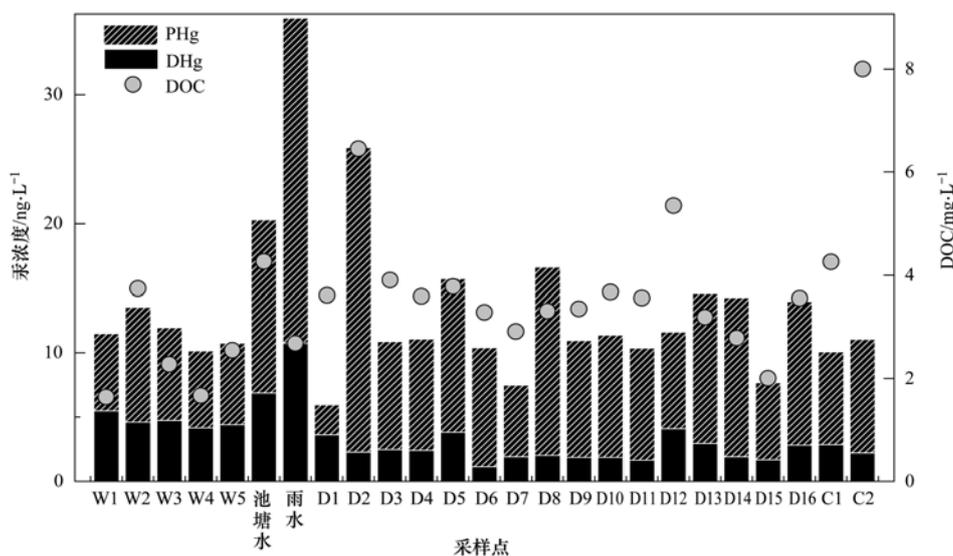


图 2 不同类型水体汞浓度空间分布特征

Fig. 2 Spatial distribution of mercury species in different water types in Wangjiagou watershed

#### 2.1.2 不同类型水体总汞时间变化特征

该流域属亚热带季风气候, 温度、降雨量变化幅度大, 流域内各类型水体各形态汞浓度存在时间上的差异 (如图 3). 流域内水体 THg 浓度变化大致趋势表现为 1 ~ 5 月逐渐降低, 然后再增高, PHg、DHg 与 THg 呈现出相似的变化趋势, 但各类型水体具体的时间变化特征并不相同. 对各类型水体各形态汞做相关性分析 (见表 2), 结果

表明 PHg 对水体汞浓度具有显著影响, 而 DHg 除对井水汞浓度变化影响较大外, 对流域内其他水体影响小; RHg 与沟渠水 DHg 表现出极显著相关关系. DOC 与流域内各类型水体 THg 均未表现出线性相关关系 ( $P > 0.05$ ); 此外, 对各类型水体间 THg 时间变化做相关性分析, 发现沟渠水与雨水汞浓度表现出显著正相关关系 ( $r = 0.82^*$ ,  $P < 0.05$ ).

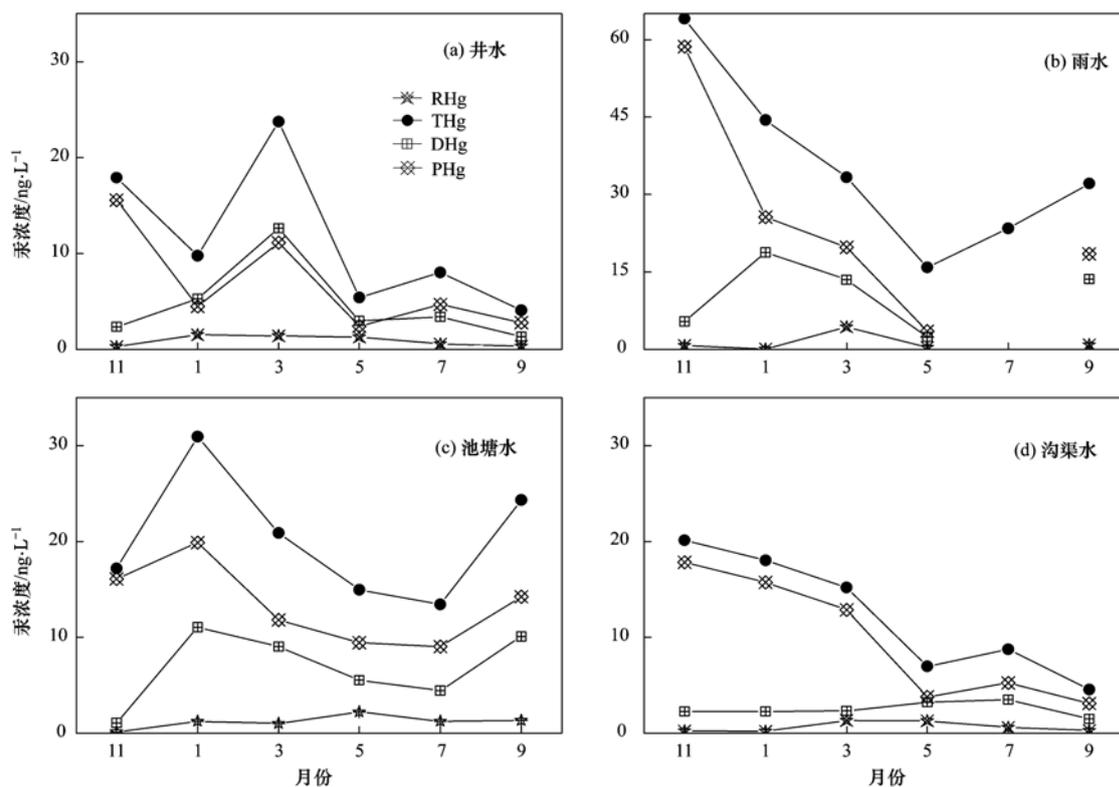


图3 不同类型水体汞浓度时间变化特征

Fig. 3 Temporal distribution of mercury species in different water types in Wangjiagou watershed

表2 研究区水体不同形态汞浓度相关关系表<sup>1)</sup>

Table 2 Relationships of mercury species in Wangjiagou watershed

项目	井水			雨水			池塘水			沟渠水		
	RHg	THg	DHg	RHg	THg	DHg	RHg	THg	DHg	RHg	THg	DHg
THg	0.17			-0.12			-0.08			-0.17		
DHg	0.32	0.78 **		0.17	0.14		0.37	0.80		0.48 **	0.19	
PHg	-0.01	0.87 **	0.37 *	-0.10	0.98 **	-0.05	-0.47	0.83 *	0.34	-0.28 *	0.98 **	-0.01

1) \* 表示  $P < 0.05$ , \*\* 表示  $P < 0.01$

## 2.2 不同类型水体甲基汞时空分布特征

### 2.2.1 不同类型水体甲基汞空间分布特征

流域水体 TMeHg、PMeHg、DMeHg 浓度范围分别为 0 (未检出) ~ 4.24、0 (未检出) ~ 1.03、0 (未检出) ~ 3.32  $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ , 均值为  $(0.22 \pm 0.42)$ 、 $(0.10 \pm 0.10)$ 、 $(0.13 \pm 0.34)$   $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ . 总体而言, 流域水体 TMeHg 浓度值高于天然水体 ( $0.01 \sim 0.10$   $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ )<sup>[15]</sup>, 且波动较大, 各类型水体甲基汞浓度分布特征如图 4, 表现为沟渠水最高, 池塘水次之, 雨水高于井水, 下游井水 TMeHg 浓度大于上游, 各沟渠点水体 TMeHg 浓度差异大. 井水和沟渠水甲基汞以溶解态为主 (57.12% 和 54.21%), 雨水和池塘水则以颗粒态为主 (68.91% 和 56.16%). 进一步分析显示, 流域内水体汞甲基化率 (TMeHg/THg) 水平表现为沟渠水 (2.22%) > 池塘水 (1.37%) > 井

水 (0.85%) > 雨水 (0.46%).

### 2.2.2 不同类型水体甲基汞时间变化特征

统计分析流域水体各形态甲基汞的时间变化特征如图 5, 发现各类型水体 TMeHg 浓度在时间上的变化不具一致性, 与 THg 时间变化特征不相似, 这可能受自身汞甲基化水平和外界干扰不同所致. 对各类型水体各形态甲基汞做相关性分析 (见表 3), 除井水和沟渠水 TMeHg 与 DMeHg、PMeHg 间存在极显著相关性外, 其他类型水体各形态甲基汞间相关性不明显; 除雨水 TMeHg 与其 THg 呈现出较大正相关关系外, 其他类型水体 THg 与 TMeHg 相关性不明显. DOC 与池塘水 DMeHg 呈现出显著正相关关系 ( $r = 0.99^*$ ,  $P < 0.05$ ), 与其他类型水体相关性不明显; 同时, 通过分析各类型水体间 TMeHg 时间变化相关性发现, 之间均未存在线性相关关系 ( $P > 0.05$ ).

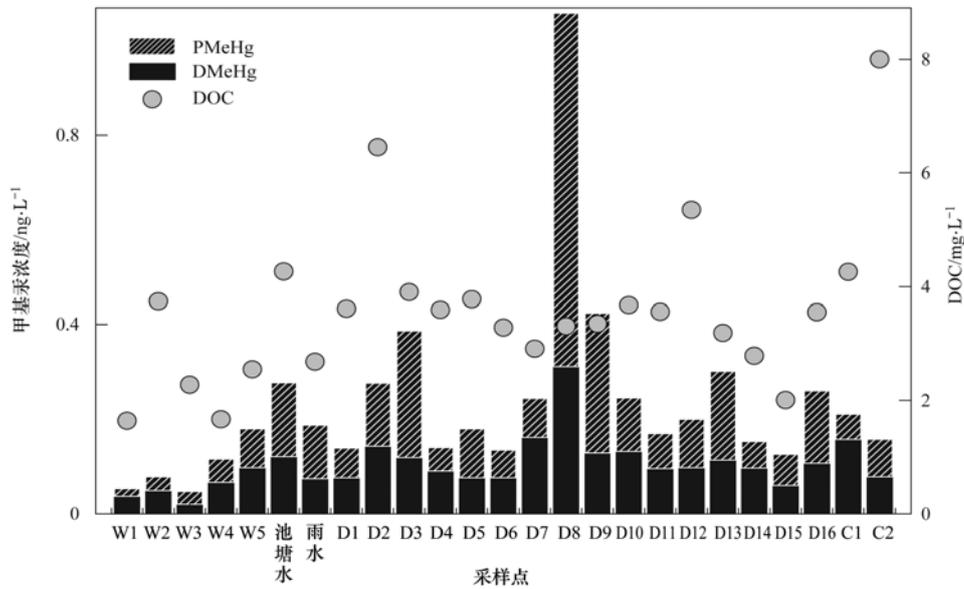


图 4 流域内各类型水体甲基汞浓度空间分布特征

Fig. 4 Spatial distribution of methylmercury species in different water types in Wangjiagou watershed

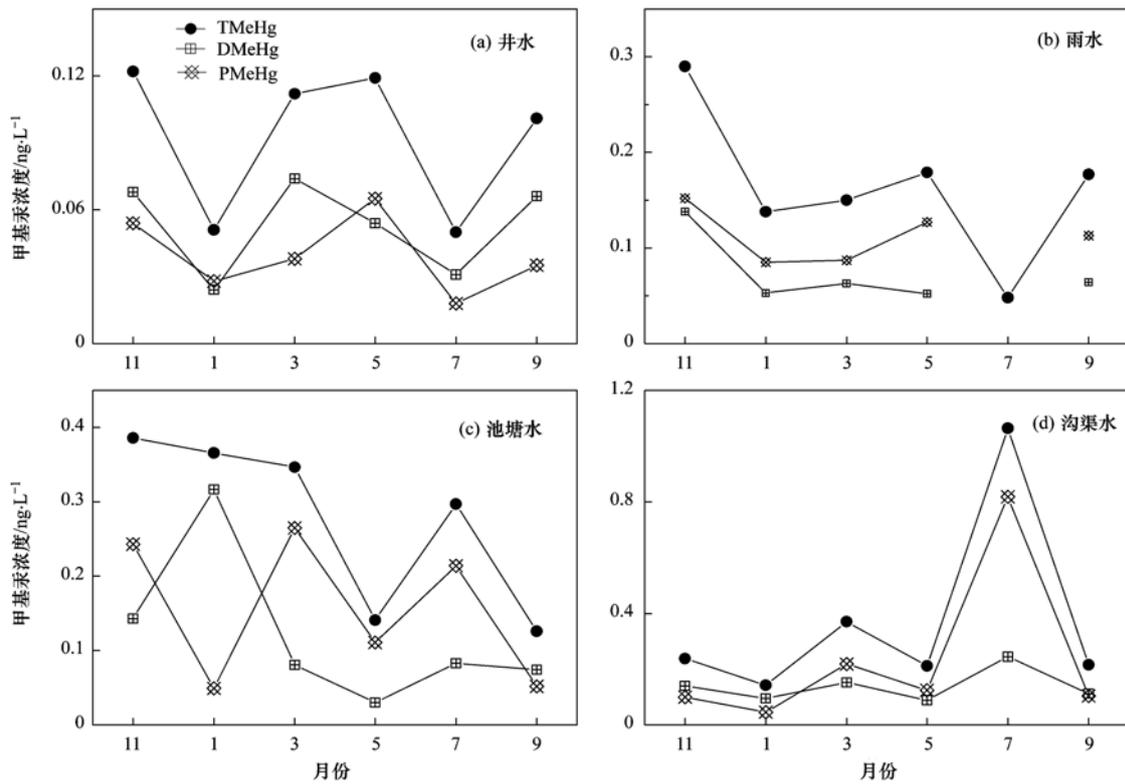


图 5 不同类型水体甲基汞浓度时间变化特征

Fig. 5 Temporal distribution of methylmercury species in different water types in Wangjiagou watershed

表 3 研究区水体不同形态汞浓度相关关系<sup>1)</sup>

Table 3 Relationships of species of methylmercury in Wangjiagou watershed

项目	井水			雨水			池塘水			沟渠水		
	THg	TMeHg	DMeHg	THg	TMeHg	DMeHg	THg	TMeHg	DMeHg	THg	TMeHg	DMeHg
TMeHg	0.07			0.67			0.17			-0.13		
DMeHg	0.10	0.92 **		0.73	0.57		0.77	0.61		-0.00	0.92 **	
PMeHg	0.00	0.81 **	0.53 **	-0.14	-0.29	0.49	-0.60	0.55	-0.33	-0.17	0.99 **	0.88 **

1) \* 表示  $P < 0.05$ , \*\* 表示  $P < 0.01$

### 3 讨论

#### 3.1 不同类型水体总汞时空分布特征

井水作为该流域居民的主要饮用水源, THg 浓度范围为  $2.22 \sim 31.22 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ , 以颗粒态为主, 浓度均值高于其他地区有关研究结果 ( $0.5 \sim 4 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ )<sup>[16,17]</sup>, 但低于国家生活饮用水标准 ( $1000 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ )<sup>[18]</sup> 及地下水环境质量 I 类标准 ( $\leq 50 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ )<sup>[19]</sup>, 可满足流域内居民日常生活需要. 研究区位于我国西南汞矿化带、川东南高汞背景区, 特殊的地质背景可能是导致井水浓度偏高的因素之一; 此外, 虽有研究认为汞在土壤中的垂直迁移微乎其微, 但降雨、径流等作用会促进汞向土壤深层迁移而污染地下水<sup>[20]</sup>. 本研究区域内, 井水 DHg、PHg 与 THg 存在着极显著相关关系 ( $r = 0.78^{**}$ ,  $P < 0.01$ ;  $r = 0.87^{**}$ ,  $P < 0.01$ ), W2 处于下游耕地中, 周围土壤扰动频繁, 其较高的汞浓度可能是受上游地表水渗透和土壤汞的深层迁移造成. 井水 THg 浓度时间变化表现为 3 月最高, 5~9 月低, 各月份间差异较大, 可能是因为 5~9 月期间降雨量较大, 地表水向下渗透, 土壤截获大量的汞<sup>[21]</sup>, 对井水汞浓度产生稀释作用. 井水汞时空分布现象说明地质条件、地表水渗透、土壤环境是影响井水汞浓度变化的共同因素.

雨水 THg 浓度范围为  $15.90 \sim 64.04 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ , 均值与重庆其他地区年降雨平均值相当 ( $30.67 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ )<sup>[22]</sup>, 颗粒态是其主要形式, 与其他有关研究结果相似<sup>[23]</sup>. 重庆特殊的产业结构和地形、天气等因素导致汞污染较重, 加之汞的远距离迁移性和特殊的干湿沉降机理, 造成远离汞污染源的地区湿沉降汞含量升高, 当地居民的生活方式 (生物质燃料、燃煤燃烧等) 也是影响大气汞负荷的重要因素. 该流域降雨中 THg 时间变化特征表现为: 2012 年 11 月到次年 1 月汞浓度较高, 3~9 月呈下降再升高趋势, 但汞浓度低于其他月份, 以 5 月最低, THg 与 PHg 呈现出极显著相关关系 ( $r = 0.98^{**}$ ,  $P < 0.01$ ), 与 DHg 相关性不明显. 这可能受降雨特征影响, 5~9 月降雨量大, 虽强烈冲刷大气中的汞, 但同时稀释作用也较强烈, 9 月~次年 1 月, 虽降雨量小, 但降雨持续时间长, 雨滴直径小, 有利于汞在雨滴中溶解, 可对大气汞进行有效去除<sup>[24]</sup>, 故降雨中汞浓度偏高. 总体而言该流域雨水汞浓度值较高, 雨水对大气颗粒物的冲洗是引起汞含量增高的直接因素, 使其成为该流域重要的汞源.

本研究的池塘是自然蓄水而成, 上游 W4 井以及降雨是其主要水源, 受外界干扰少, 主要用于农业灌溉, THg 浓度范围为  $13.43 \sim 30.93 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ , THg 浓度在时间变化上较流域内其他类型水体波动小 (变异系数  $32.36\%$ ), 其 PHg 与 THg 呈现出显著相关关系 ( $r = 0.83^*$ ,  $P < 0.05$ ), 这说明颗粒物是引起池塘水汞浓度增高的主要因素. 时间变化特征表现为 1 月最高, 7 月最低, 这可能是因为 7 月正处夏季, 降雨量及强度均较大, 从而增加了池塘的水流交换量, 故其水体汞浓度较其他月份低, 但其汞浓度明显高于上游井水, 成为流域内汞的“汇”. 此外, 若将池塘水用于农业灌溉, 池塘将从汞“汇”变为流域重要汞“源”. 此外, 池塘 RHg 浓度值 ( $1.20 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ) 相较于流域内其他类型水体高, 通常活性汞在环境中极易发生形态改变, 其含量的高低反映了水体汞的活化性能, 这说明池塘水中溶解态中的汞极易发生生活化, 使之更有利于汞的甲基化作用, 将会加大池塘在该流域内的汞风险.

沟渠主要汇集上游水体以及地表径流, THg 浓度范围为  $1.12 \sim 31.86 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ , 以颗粒态为主, THg 浓度处于其他有关径流水的研究结果范围内 ( $5 \sim 150 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ )<sup>[25]</sup>, 满足国家 I 类地表水环境质量标准 ( $50 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ )<sup>[18]</sup>, 较自然环境中水体汞的本底值高 ( $0.3 \sim 1.0 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ). 由于各沟渠点位置及周围耕作条件的不同, 不同采样点 THg 浓度存在一定差异, 但并不明显, 这可能是因为流域面积过小. 沟渠水 THg 时间变化特征表现为: 从 2012 年 11 月~2013 年 9 月呈下降趋势, 7 月出现略微波动, 雨水对其汞浓度影响较大, THg 浓度变化以 PHg 变化为主. 流域产生的地表径流通过沉淀、溶解、吸附、解吸及络合等物理化学过程, 可将土壤中二价汞和部分汞络合物溶出<sup>[26]</sup>, 但土壤对上游池塘以及降雨作用形成的径流水体中的汞又具有较大吸持作用<sup>[21]</sup>. 本研究中井水由于受外界干扰较少, 降雨则因大气汞的远距离迁移以及对大气汞的冲刷, 池塘水则因蓄水作用以及动物粪便, 故沟渠水汞浓度高于上游井水, 低于池塘水和雨水, 且沟渠环境开放, 易受周围环境和人类活动影响, 如农药施用、垃圾处置不当等, 这可能也是引起波动的原因之一. 此外, 高含量 RHg 的沟渠点水体对应相对高含量的 DHg, 且 RHg 与 DHg 呈极显著正相关性 ( $r = 0.48^{**}$ ,  $P < 0.01$ ), 与 PHg 呈显著性负相关关系 ( $r = -0.28^*$ ,  $P < 0.05$ ), 暗示会有大量活性的溶解态汞, 同时颗粒物可能也会固定一定量的汞而降低汞

的活性.

流域内各类型水体以径流形式汇入沟渠后,最终进入三峡水库. 该流域入库水体 RHg 浓度均值为  $(0.64 \pm 0.58) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ , THg 浓度均值为  $(10.64 \pm 8.73) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ , 以颗粒态为主 PHg/THg 为  $(66.46 \pm 21.47)\%$ . 研究表明, 在农业环境下, 流域地表径流作用促进流域汞特别是颗粒态汞的迁移, 引起水库汞负荷加重的同时, 也可能带入大量其他物质促进水库水环境改变.

### 3.2 不同类型水体甲基汞时空分布特征

井水由于受外界干扰少, 相对于其他类型水体其 TMeHg 浓度最低, 范围为 0 (未检出) ~  $4.24 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ , 浓度均值高于其他有关研究值  $(0.02 \sim 0.2 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1})$ <sup>[16,27]</sup>. 井水 TMeHg 的空间分布特征表现为下游(W2、W5)高于上游(W1、W3、W4), 时间变化特征表现为 11 月、3 月、5 月相对于 1 月和 7 月较高, 各月份间差异性显著, 其浓度变化受 DMeHg 与 PMeHg 共同控制. 1 月温度低, 不利于汞的甲基化作用, 而 7 月由于降雨量大, 地表径流渗透进入地下水的同时, 土壤对汞以及甲基汞的吸持作用, 使井水甲基汞浓度受到一定的稀释, 故 1、7 月井水 TMeHg 浓度相对于其他月份低. 总体而言, 温度是影响井水甲基汞浓度的主要因素, 但径流水体向下渗透对土壤的冲刷以及水流量大时产生的稀释作用也不容忽视, 其甲基汞可能主要来自于汞的原位甲基化.

监测期间, 雨水 TMeHg 浓度范围为  $0.05 \sim 0.29 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ , 以颗粒态为主, 年均值以及甲基化水平与 Wang 等<sup>[22]</sup>对重庆城区降雨甲基汞浓度的调查结果一致  $(0.04 \sim 1.94 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}, 0.1\% \sim 7.6\%)$ , 其 TMeHg 与 THg 表现出相似的时间变化特征. 有研究推测, 降雨中的甲基汞可能来自于大气自身含有或二甲基汞的光降解<sup>[28]</sup>, 其甲基化程度受大气条件影响; 也有研究认为, 降雨中的甲基汞可能来自于大气中二价汞和甲基基团反应生成的气态甲基汞, 但就目前而言, 对大气和大气湿沉降中甲基汞的来源还缺乏认识<sup>[29]</sup>. 虽然监测期间雨水甲基汞浓度波动较小(变异系数为 37.89%), 但受降雨特征影响明显, 这说明降雨特征也是影响雨水甲基汞浓度变化的主要因素. 从本研究结果可看出, 雨水甲基汞可能主要来自于大气中生成, 以及降雨对大气中甲基汞的清洗, 但降雨量较大时也会对雨水中甲基汞浓度产生稀释作用.

池塘作为流域内主要的汞汇的同时, 其甲基汞

浓度和甲基化率均高于井水和雨水, TMeHg 并未表现出与 THg 相似的时间变化特征. 如表 3 所示, TMeHg 与 THg 也并未呈现出很好的正相关关系, 同时 TMeHg 与 DMeHg、PMeHg 相关关系也不明显, 这说明影响池塘水体汞甲基化水平的因素很多, 受 THg 影响不大. DOC 是影响汞甲基化的重要因素, 既有抑制作用也有促进作用, 本研究发现, DOC 与 DMeHg 间呈现出极显著相关关系  $(r = 0.99^{**}, P < 0.01)$ , 对汞的甲基化进程起直接促进作用. 池塘由于其特有的蓄水性质, 水体流动性小, 功能类似于河流筑坝而成的水库, 是汞活化、甲基化的有利场所. 因此, 将塘水用于灌溉时, 它将既是流域主要的汞“源”, 也是流域重要的甲基汞“源”, 要降低池塘汞生态风险, 需尽量避免塘受污染以减少有机质等利于汞甲基化物质的含量, 以及增加池塘水体流动性.

沟渠水 TMeHg 浓度范围为  $0.06 \sim 4.24 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ , 浓度均值低于其他有关研究结果  $(0.18 \sim 2.1 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1})$ <sup>[25]</sup>, 满足国家地表水 II、III 类水质标准  $(1 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1})$ <sup>[18]</sup>, 溶解态是其主要存在形式. 在空间上沟渠水 TMeHg 浓度波动较大, 时间上表现为 7 月出现最高峰值, 特别是 D8 点  $(4.24 \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1})$ , 其他月份差异不明显, 其浓度变化受 DMeHg 和 PMeHg 共同控制. 沟渠水 TMeHg 浓度的空间差异以及时间变化, 可能是受上游水体, 地表径流对土壤的冲刷<sup>[26]</sup>, 降雨以及外界干扰共同影响. 由于地表径流对土壤冲刷促进了土壤甲基汞的溶出, 以及沟内淹水环境会产生一部分的甲基汞, 再加上沟渠敞开环境, 易受外界干扰(如 7 月 D8 点), 故沟渠水出现较高浓度的甲基汞, 再加上其总汞浓度较低, 水体汞的甲基化率较其他类型水体最高. 在 7 月出现最高, 这可能是因为降雨量大而加大了地表径流对土壤的冲刷, 虽然土壤截获了一部分来自雨水中甲基汞, 但与此同时, 也促进了土壤中甲基汞的溶出, 以及携带着甲基汞的土壤颗粒物的流失, 外界干扰也不容忽视. 其 TMeHg 的时空分布特征表明, 农业环境下地表径流引起了土壤甲基汞的溶出和颗粒物的迁移, 以及农作活动是该流域入库甲基汞的主要来源.

地表径流汇入沟渠后最终进入三峡水库, 入库水 TMeHg 浓度均值为  $(0.18 \pm 0.10) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ , 以溶解态为主, DMeHg/TMeHg 为  $(61.33 \pm 22.43)\%$ , 入库水汞的甲基化率为  $(2.45 \pm 2.07)\%$ , 甲基汞浓度以及甲基化率均略低于目前有关三峡的研究<sup>[9]</sup>, 研究区流域在监测期间对水体甲基汞的贡献很少, 未直接引起库区水体甲基汞负荷的增加.

## 4 结 论

流域内水体 THg、TMeHg 浓度均满足国家地表水环境质量标准。由于水环境、外界干扰及降雨等因素影响,THg 空间分布特征为:雨水 > 池塘水 > 沟渠水 > 井水; TMeHg 为:沟渠水 > 池塘水 > 雨水 > 井水。在时间变化上各类型水体总汞浓度均表现出冷季高于暖季,而甲基汞则因水体类型而异。雨水是流域汞的重要来源,农业环境下颗粒物的迁移是汞、甲基汞迁移的主要途径,地表径流是影响流域对水库汞负荷贡献量的重要因素。

### 参考文献:

- [ 1 ] Grigal D F. Inputs and outputs of mercury from terrestrial watersheds: a review [ J ]. *Environmental Reviews*, 2002, **10** ( 1 ): 1-39.
- [ 2 ] Qureshi A, MacLeod M, Scheringer M, *et al.* Mercury cycling and species mass balances in four North American lakes [ J ]. *Environmental Pollution*, 2009, **157** ( 2 ): 452-462.
- [ 3 ] 于瑞莲, 胡恭任, 刘越, 等. 泉州湾红树林湿地沉积物中汞分布及形态特征 [ J ]. *生态学杂志*, 2011, **30** ( 5 ): 1004-1007.
- [ 4 ] Nagorski S A, Engstrom D R, Hudson J P, *et al.* Spatial distribution of mercury in southeastern Alaskan streams influenced by glaciers wetlands, and salmon [ J ]. *Environmental Pollution*, 2014, **184**: 62-72.
- [ 5 ] 杨海, 李平, 仇广乐, 等. 世界汞矿区汞污染研究进展 [ J ]. *地球与环境*, 2009, **37** ( 1 ): 80-85.
- [ 6 ] Brumbaugh W G, Tillitt D E, May T W, *et al.* Environmental survey in the Tuul and Orkhon River basins of north-central Mongolia, 2010: metals and other elements in streambed sediment and floodplain soil [ J ]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2013, **185** ( 11 ): 8991-9008.
- [ 7 ] 魏复盛, 张建辉, 何立环, 等. 三峡库区水污染防治的关键在源头控制与削减 [ J ]. *中国工程科学*, 2009, **11** ( 2 ): 4-9.
- [ 8 ] Lucotte M, Schetagne R, Therien N, *et al.* Mercury in biogeochemical cycle natural environments and hydroelectric reservoirs of Northern Quebec ( Canada ) [ M ]. Berlin and New York, USA: Springer, 1999. 317-334.
- [ 9 ] 李萍. 三峡库区典型消落带水体中汞的时空分布 [ D ]. 重庆: 西南大学, 2013.
- [ 10 ] 余杨, 王雨春, 周怀东, 等. 三峡水库蓄水初期鱼体汞含量及其水生食物链累积特征 [ J ]. *生态学报*, 2013, **33** ( 13 ): 4059-4067.
- [ 11 ] 张成, 陈宏, 王定勇, 等. 三峡库区消落带土壤汞形态分布与风险评价 [ J ]. *环境科学*, 2014, **35** ( 3 ): 1060-1067.
- [ 12 ] 陈瑜鹏. 乌江流域河水、降雨中汞的地球化学分布特征 [ D ]. 重庆: 西南大学, 2010.
- [ 13 ] 闫海鱼, 冯新斌, 商立海, 等. 天然水体中痕量汞的形态分析方法研究 [ J ]. *分析测试学报*, 2003, **22** ( 5 ): 10-13.
- [ 14 ] 蒋红梅, 冯新斌, 梁琰, 等. 蒸馏-乙基化结合 GC-CVAFS 法测定天然水体中的甲基汞 [ J ]. *中国环境科学*, 2004, **24** ( 5 ): 568-571.
- [ 15 ] 商立海, 冯新斌, 闫海鱼, 等. 环境样品中甲基汞的分析方法综述 [ J ]. *地球与环境*, 2004, **32** ( 1 ): 17-22.
- [ 16 ] Vidon P G, Mitchell C P J, Jacinthe P A, *et al.* Mercury dynamics in groundwater across three distinct riparian zone types of the US Midwest [ J ]. *Environmental Science-Processes & Impacts*, 2013, **15** ( 11 ): 2131-2141.
- [ 17 ] Grigal D F, Kolka R K, Fleck J A, *et al.* Mercury budget of an upland-peatland watershed [ J ]. *Biogeochemistry*, 2000, **50** ( 1 ): 95-109.
- [ 18 ] GB/T 3838-2002, 地表水环境质量标准 [ S ].
- [ 19 ] GB/T 14848-93, 地下水环境质量标准 [ S ].
- [ 20 ] Matilainen T, Verta M, Korhonen A, *et al.* Behavior of mercury in soil profiles: impact of increased precipitation, acidity, and fertilization on mercury methylation [ J ]. *Water Air and Soil pollution*, 2001, **125** ( 1 ): 105-120.
- [ 21 ] 章明奎, 符娟林, 顾国平, 等. 长三角和珠三角土壤中汞的化学形态、转化和吸附特性 [ J ]. *安全与环境学报*, 2006, **6** ( 2 ): 1-5.
- [ 22 ] Wang Y M, Wang D Y, Meng B, *et al.* Spatial and temporal distributions of total and methyl mercury in precipitation in core urban areas, Chongqing, China [ J ]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12** ( 20 ): 9417-9426.
- [ 23 ] 郭艳娜, 冯新斌, 何天容, 等. 乌江流域大气降雨中不同形态汞的时空分布 [ J ]. *环境科学学报*, 2008, **28** ( 7 ): 1441-1446.
- [ 24 ] 蒋红梅. 水库对乌江流域河流汞生物地球化学循环的影响 [ D ]. 贵州: 中国科学院地球化学研究所, 2005.
- [ 25 ] Eklöf K, Meili M, Åkerblom S, *et al.* Impact of stump harvest on run-off concentrations of total mercury and methylmercury [ J ]. *Forest Ecology and Management*, 2013, **290**: 83-94.
- [ 26 ] Balogh S J, Nollet Y H, Swain E B. Redox chemistry in Minnesota streams during episodes of increased methylmercury discharge [ J ]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38** ( 19 ): 4921-4927.
- [ 27 ] Lamborg C H, Kent D B, Swarr G J, *et al.* Mercury speciation and mobilization in a wastewater contaminated groundwater plume [ J ]. *Environmental Science & Technology*, 2013, **47** ( 23 ): 13239-13249.
- [ 28 ] Brosset C, Lord E. Methylmercury in ambient air-method of determination and some measurement results [ J ]. *Water Air & Soil Pollution*, 1995, **82** ( 3-4 ): 739-750.
- [ 29 ] Hammerschmidt C R, Lamborg C H, Fitzgerald W F. Aqueous phase methylation as a potential source of methylmercury in wet deposition [ J ]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41** ( 8 ): 1663-1668.

## CONTENTS

Variation Characteristics of Surface Ozone and Its Precursors During Summertime in Nanjing Northern Suburb .....	SHAO Ping, AN Jun-lin, YANG Hui, <i>et al.</i> (4031)
Distribution Characteristics of Pollution Gases and Water Soluble Ion in Aerosol During the Asian Youth Games of Nanjing, China .....	ZOU Jia-nan, AN Jun-lin, WANG Hong-lei, <i>et al.</i> (4044)
Aerosol Concentration Variation in Nanjing During Asian Youth Games and the Relationship Between Aerosol Concentration and Visibility .....	YUAN Liang, YIN Yan, LI Qi, <i>et al.</i> (4052)
Characteristic Analysis of a Multi-day Pollution Event in Chang-Zhu-Tan Metropolitan Area During October 2013 .....	LIAO Zhi-heng, FAN Shao-jia, HUANG Juan, <i>et al.</i> (4061)
Application of On-line Single Particle Aerosol Mass Spectrometry (SPAMS) for Studying Major Components in Fine Particulate Matter .....	FU Huai-yu, YAN Cai-qing, ZHENG Mei, <i>et al.</i> (4070)
Establishment and Application of Replaceable Source Profiles of PM <sub>10</sub> .....	CHEN Qiang, JING Yi, WU Huan-bo, <i>et al.</i> (4078)
Distribution, Flux and Biological Consumption of Carbon Monoxide in the East China Sea and the South Yellow Sea in Summer .....	WANG Jing, LU Xiao-lan, YANG Gui-peng, <i>et al.</i> (4085)
Spatial and Temporal Distribution of Mercury in Water of a Small Typical Agricultural Watershed in the Three Gorges Reservoir Region .....	WANG Ya, ZHAO Zheng, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (4095)
Fluorescence Characteristics of Fractionated Colloidal Organic Matter in Freshwater from Hunhe and Taizihe Watersheds .....	LIU Na-na, LI Bin, LIU Rui-xia, <i>et al.</i> (4103)
Variations of Annual Load of TN and TP in the Deep Bay Watershed, Shenzhen .....	ZHAO Chen-chen, ZHANG Shi-yan, MAO Xian-zhong (4111)
Characteristics and Bioavailability of Organic Phosphorus from Different Sources of Sediments in Dianchi Lake .....	XIONG Qiang, JIAO Li-xing, WANG Sheng-rui, <i>et al.</i> (4118)
Heavy Metals Distribution Characteristics and Ecological Risk Evaluation in Surface Sediments of Dammed Jinshan Lake .....	ZHOU Xiao-hong, LIU Long-mei, CHEN Xi, <i>et al.</i> (4127)
Vertical Distribution Pattern and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in a Sediment Core from Pumoyum Co, Tibet .....	XIE Ting, LUO Dong-xia, YANG Rui-qiang (4135)
Heavy Metals Pollution and Analysis of Seasonal Variation Runoff in Xi'an .....	YUAN Hong-lin, LI Xing-yu, WANG Xiao-chang (4143)
Distribution and Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Urban Rainfall Runoff .....	WU Zi-lan, YANG Yi, LIU Min, <i>et al.</i> (4148)
Influence of the Substrate Composition in Extensive Green Roof on the Effluent Quality .....	CHEN Yu-lin, LI Tian, GU Jun-qing (4157)
Investigation of the Microbial Diversity and Structure of Biological Activated Carbon from Different Sources in Drinking Water Treatment Process .....	DU Er-deng, ZHENG Lu, FENG Xin-xin, <i>et al.</i> (4163)
Microcystin Safety Study During <i>Cyanobacteria</i> Removal by Pressure Enhanced Coagulation Process .....	JIANG Xin-yue, LUAN Qing, CONG Hai-bing, <i>et al.</i> (4171)
Membrane Fouling Based on Change of Membrane Characteristic Parameters During Ultrafiltration of Protein .....	WANG Xu-dong, ZHANG Yin-hui, WANG Lei, <i>et al.</i> (4176)
Impact Factors and Degradation Mechanism for the Ozonation of Acetaminophen in Aqueous Solution .....	CAO Fei, YUAN Shou-jun, ZHANG Meng-tao, <i>et al.</i> (4185)
Degradation of Benzothiazole in Electro-Assisted Microbial Reactor .....	LIU Chun-miao, DING Jie, LIU Xian-shu, <i>et al.</i> (4192)
Preparation and Evaluation of Fe-La Composite Oxide Nanoadsorbent for As(III) Removal from Aqueous Solutions .....	ZHANG Wei, CHEN Jing, ZHANG Gao-sheng (4198)
Physiological Responses of Tubificidae to Heavy Metal Chromium Stress .....	LOU Ju-qing, YANG Dong-ye, CAO Yong-qing, <i>et al.</i> (4205)
Effects of Light Quality on the Growth Characteristics and Biochemical Component of <i>Chlorella pyrenoidosa</i> .....	TANG Qing-qing, FANG Zhi-guo, JI Wen-wen, <i>et al.</i> (4212)
Influence of Alkalinity and DO on ANAMMOX Bioreactor at Normal Temperature and Low Substrate Concentration .....	REN Yu-hui, WANG Ke, LI Xiang-kun, <i>et al.</i> (4218)
Effect of Fe <sup>2+</sup> and Fe <sup>3+</sup> on the Activity of ANAMMOX .....	LI Xiang, HUANG Yong, WU Chuan, <i>et al.</i> (4224)
Research on Change Process of Nitrosation Granular Sludge in Continuous Stirred-Tank Reactor .....	YIN Fang-fang, LIU Wen-ru, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (4230)
Effects of Salinity on N <sub>2</sub> O Production During Nitrification Using Aerobic Granular Sludge .....	WANG Shan-shan, LIANG Hong, GAO Da-wen (4237)
Analysis of Microbial Community Variation in the Domestication Process of Sludge in a Sulfate-reducing Reactor .....	ZENG Guo-qu, JIA Xiao-shan, ZHENG Xiao-hong, <i>et al.</i> (4244)
Quantifying the Influence of Different Matrices on Pb Accumulation in the Soil from Nanjing and Suspended Matter from the Lower of the Yangtze River with Pb Isotopic Technique .....	WANG Cheng, XIA Xue-qi, ZHANG Yi, <i>et al.</i> (4251)
Contamination Characteristics of Fluoroquinolones in Different Kinds of Soil Profiles in Southeast Suburb of Beijing .....	SU Si-hui, HE Jiang-tao, YANG Lei, <i>et al.</i> (4257)
Effect of Environmental Factors on the Formation of Several Typical Tetracycline Resistance Genes in Soil .....	ZHANG Jun, LUO Fang-yuan, XIONG Hao-hui, <i>et al.</i> (4267)
Response of Nitrification/Denitrification and Their Associated Microbes to Soil Moisture Change in Paddy Soil .....	LIU Ruo-xuan, HE Ji-zheng, ZHANG Li-mei (4275)
Microbial Community Abundance and Diversity in Typical Karst Ecosystem to Indicate Soil Carbon Cycle .....	JIN Zhen-jiang, TANG Hua-feng, LI Min, <i>et al.</i> (4284)
Effects of Variable Temperature on Organic Carbon Mineralization in Typical Limestone Soils .....	WANG Lian-ge, GAO Yan-hong, DING Chang-huan, <i>et al.</i> (4291)
Influence of the Interaction Between Iron Oxide and Electron Donor Substances on 1,1,1-Trichloro-2,2-bis( <i>p</i> -chlorophenyl)ethane (DDT) Reductive Dechlorination in Hydragic Acrisols .....	LIU Cui-ying, XU Xiang-hua, WANG Zhuang, <i>et al.</i> (4298)
Continuous Remediation of Heavy Metal Contaminated Soil by Co-Cropping System Enhanced with Chelator .....	WEI Ze-bin, GUO Xiao-fang, WU Qi-tang, <i>et al.</i> (4305)
Spatial Heterogeneity of Soil Respiration in a Subalpine Meadow at Different Sampling Scales .....	LI Hong-jian, GAO Yu-feng, YAN Jun-xia, <i>et al.</i> (4313)
Study on Regularity of Greenhouse Gas Emissions from Black Soil with Different Reclamation Years .....	LI Ping, LANG Man, XU Xiang-hua, <i>et al.</i> (4321)
Comparison Between Transgenic Insect-Resistant Cotton Expressing CryI <sub>Ac</sub> Protein and Its Parental Variety in Rhizospheric Fungal Diversity .....	PAN Jian-gang, JIAO Hai-hua, BAI Zhi-hui, <i>et al.</i> (4329)
Concentrations of Mercury in Ambient Air in Wastewater Irrigated Area of Tianjin City and Its Accumulation in Leafy Vegetables .....	ZHENG Shun-an, HAN Yun-lei, ZHENG Xiang-qun (4338)
Combined Effects of 1-Nitropyrene and 1,2-Naphthoquinone on Cytotoxicity and DNA Damage in A549 Cells .....	SHANG Yu, JIANG Yu-ting, ZHANG Ling, <i>et al.</i> (4345)
Influence of Organic Matter Evolution During Composting on the Bioavailability of Heavy Metals .....	BU Gui-jun, YU Jing, DI Hui-hui, <i>et al.</i> (4352)
Carbonization of Heavy Metal Cu Implanted Sewage Sludge and Stability of Heavy Metal in the Resulting Char .....	DOU Xiao-min, CHEN De-zhen, DAI Xiao-hu (4359)
Technological Characteristics of Bioreactor Landfill with Aeration in the Upper Layer .....	TIAN Ying, WANG Shen, XU Qi-yong (4365)
Impact of Nitrate Continuous Injection on N <sub>2</sub> O Releases from Bioreactor Landfill .....	BIAN Rong-xing, SUN Ying-jie, LI Jing-jing, <i>et al.</i> (4371)
Research on Contribution Decomposition by Industry to China's Carbon Intensity Reduction and Carbon Emission Growth .....	JIANG Jing-jing, YE Bin, JI Jun-ping, <i>et al.</i> (4378)
Shifting Path of Industrial Pollution Gravity Centers and Its Driving Mechanism in Pan-Yangtze River Delta .....	ZHAO Hai-xia, JIANG Xiao-wei, CUI Jian-xin (4387)
Method for Environmental Management in Paper Industry Based on Pollution Control Technology Simulation .....	ZHANG Xue-ying, WEN Zong-guo (4395)
Research Progress and Direction of Atmospheric Brown Carbon .....	YAN Cai-qing, ZHENG Mei, ZHANG Yuan-hang (4404)

# 《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军  
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明  
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞  
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2014年11月15日 第35卷 第11期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 35 No. 11 Nov. 15, 2014

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science ( HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301  
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 90.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行