

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第10期

Vol.36 No.10

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

基于细颗粒物来源追踪技术的2013年12月上海市严重污染过程中PM_{2.5}的源贡献分析..... 李莉, 安静宇, 严茹莎 (3543)

华北地区乡村站点(曲周)夏季PM_{2.5}中二次无机组分的生成机制与来源解析 陈仕意, 曾立民, 董华斌, 朱彤 (3554)

成都市大气PM_{2.5}中有机磷阻燃剂的污染水平及来源 印红玲, 李世平, 叶芝祥, 杨迎春, 梁金凤, 游俊杰 (3566)

不同生物质燃烧排放多环芳烃及糖醇类化合物的模拟研究 黄帅, 黄欣怡, 吴水平, 胡清华, 陈晓秋 (3573)

北京地区大气消光特征及参数化研究 陈一娜, 赵普生, 何迪, 董璠, 赵秀娟, 张小玲 (3582)

光助芬顿反应催化降解气体中甲苯 郑思灿, 陈天虎, 刘海波, 邹雪华, 朱承驻, 陈冬 (3590)

遗体火化二噁英类排放水平及影响因素 尹文华, 于晓巍, 韩静磊, 冯桂贤, 付建平, 杨艳艳, 鞠勇明, 张素坤 (3596)

我国餐厨废物生化处理设施恶臭排放特征分析 张妍, 王元刚, 卢志强, 韩萌, 商细彬, 曹阳, 张君 (3603)

太湖湖表反照率时空特征及影响因子 曹畅, 李旭辉, 张弥, 刘寿东, 肖薇, 肖启涛, 徐家平 (3611)

基于GOCI影像的太湖水体漫衰减系数遥感反演 王珊珊, 李云梅, 王桥, 吕恒 (3620)

河口盐度梯度下短叶茳苳沼泽湿地土壤孔隙水溶解性甲烷时空特征 杨平, 张子川, 杜威宁, 黄佳芳, 全川 (3633)

石家庄市区土壤水分运移的稳定同位素特征分析 陈同同, 陈辉, 韩璐, 邢星, 付阳阳 (3641)

长寿湖水库垂直剖面不同形态汞的季节变化特征及其影响因素 白薇扬, 张成, 唐振亚, 赵铮, 王定勇 (3649)

三峡库区消落带4种典型植物根际土壤养分与氮素赋存形态 王晓锋, 袁兴中, 刘红, 张磊, 尉建军, 岳俊生 (3662)

湖泊水-沉积物界面DIC和DOC交换通量及耦合关系 王伟颖, 吕昌伟, 何江, 左乐, 颜道浩 (3674)

水体扰动条件下物质在沉积介质中的迁移 李邵龙, 陈道毅 (3683)

城市道路径流的排污特征 武俊良, 任玉芬, 王雪梅, 王效科, 陈利顶, 刘刚才 (3691)

杭州市余杭区典型农村暴雨径流污染特征 段圣辉, 赵钰, 单保庆, 唐文忠, 张文强, 张淑珍, 郎超 (3697)

海水淡化超滤-反渗透工艺沿程溴代消毒副产物变化规律 杨哲, 孙迎雪, 石娜, 胡洪管 (3706)

天然有机物和电解质对水中C₆₀凝聚行为的影响 方华, 荆洁, 于江华, 王钰葶 (3715)

钆改性高岭土原位改良技术控制重污染河道底泥磷释放效果 王虹, 林建伟, 詹艳慧, 章喆, 王笛入 (3720)

污水管网中无机氮类营养盐迁变规律 金鹏康, 焦丁, 任武昂 (3730)

微好氧水解酸化在石化废水预处理中的应用研究 朱晨, 吴昌永, 周岳溪, 伏小勇, 陈学民, 邱延波, 吴晓峰 (3738)

倒置A²/O-MBR组合工艺处理生活污水效能及膜污染特性 王旭东, 马亚斌, 王磊, 杨怡婷, 黄丹曦, 夏四清 (3743)

高氨氮对具有回流的PN-ANAMMOX串联工艺的脱氮影响 李祥, 崔剑虹, 袁砚, 黄勇, 袁怡, 刘忻 (3749)

苯甲酸盐厌氧驯化体系中三氯乙烯的还原脱氯特性 李姜维, 杨晓永, 胡安谊, 于昌平 (3756)

驯化污泥厌氧还原脱氯促进2,4,6-三氯酚矿化及胞外呼吸脱氯途径 宋佳秀, 李玲, 盛凡凡, 郭翠香, 张永明, 李祖元, 王天丽 (3764)

苯酚对厌氧氨氧化污泥脱氮效能长短期影响 杨朋兵, 李祥, 黄勇, 朱亮, 崔剑虹, 徐彬彬 (3771)

连续流好氧颗粒污泥系统处理低COD/N实际生活污水的工艺优化 鲁磊, 信欣, 鲁航, 朱辽东, 谢思建, 武勇 (3778)

FNA对好氧吸磷的长期抑制及污泥吸磷方式转化 马娟, 李璐, 俞小军, 孙雷军, 孙洪伟, 陈永志 (3786)

污水处理厂不同工艺的污泥脱水效能分析及其影响因素研究 刘吉宝, 李亚明, 吕镗, 魏源送, 杨敏, 郁达伟 (3794)

残留过氧化氢对微波-过氧化氢-碱预处理后污泥水解酸化的影响 贾瑞来, 刘吉宝, 魏源送, 才兴 (3801)

大围山典型森林土壤有机氮垂直分布特征 丁咸庆, 马慧静, 朱晓龙, 陈珊, 侯红波, 彭佩钦 (3809)

缙云山不同土地利用方式对土壤活性有机碳、氮组分的影响 祁心, 江长胜, 郝庆菊, 李鉴霖 (3816)

三峡库区典型退耕还林模式土壤养分流失控制 吴东, 黄志霖, 肖文发, 曾立雄 (3825)

坡位与土层对喀斯特原生林土壤微生物生物量与丰度的影响 冯书珍, 苏以荣, 张伟, 陈香碧, 何寻阳 (3832)

不同种植方式对亚热带红壤微生物多样性的影响 沈冰洁, 祝贞科, 袁红朝, 葛体达, 王久荣, 陈明利, 吴晓英, 吴金水 (3839)

有色冶金区土壤-玉米系统汞累积及健康风险 纪小凤, 郑娜, 王洋, 刘强, 张静静 (3845)

改良剂对4种木本植物的铅锌耐性、亚细胞分布和化学形态的影响 陈永华, 张富运, 吴晓英, 梁希, 袁斯文 (3852)

菹草乙酸酯组分抑藻活性物质的分离纯化和鉴定 孙颖颖, 苏振霞, 浦寅芳, 肖辉, 王长海 (3860)

血吸虫病疫区水生生物体内氯苯化合物的污染特征与潜在风险 李昆, 赵高峰, 周怀东, 赵健, 张盼伟, 刘巧娜, 王兴勋, 刘晓茹 (3866)

生物传感细胞ADP1_pWHlux在水环境急性毒性检测中的应用 唐慧, 宋一之, 姜博, 陈光玉, 贾建丽, 张旭, 李广贺 (3872)

虹鳟鱼鳃及肝脏多种CYP1基因表达模式作为生物标志物监测海河水污染状况 高锴, 闫佩, 檀翠玲, 罗彦鹤, 孙静, Maria E. Jönsson, Ingvar Brandt, 唐运平 (3878)

纳米氧化锌对斑马鱼肝脏的毒性效应 刘林, 赵群芬, 金凯星, 朱帅旗, 王小飞, 吕佳昀 (3884)

黄连根茎浸提物对隆线蚤的急性毒性作用 陈亚楠, 袁玲 (3892)

发酵稻壳对亚铁离子和硫离子的吸附-解吸附特性 谢晓梅, 廖敏, 华嘉媛, 陈娜, 张楠, 徐培智, 解开治, 徐昌旭, 刘光荣 (3896)

搅拌棒吸附萃取-气相色谱-质谱联用测定海水中邻苯二甲酸酯 高晨晨, 李锋民, 卢伦, 孙玥 (3906)

COD组分分析的实验条件及结果可靠性分析 李志华, 张银, 韩杏, 余科, 李汝佳 (3913)

养猪废水和污泥中11种兽用抗生素的同时分析技术及其在生物降解过程的应用 丁佳丽, 刘锐, 郑炜, 余卫娟, 叶朝霞, 陈吕军, 张永明 (3918)

土壤微生物产电技术及其潜在应用研究进展 邓欢, 薛洪婧, 姜允斌, 钟文辉 (3926)

《环境科学》征订启事 (3553) 《环境科学》征稿简则 (3589) 信息 (3705, 3755, 3763, 3800)

长寿湖水库垂直剖面不同形态汞的季节变化特征及其影响因素

白薇扬^{1,2}, 张成^{1,3}, 唐振亚¹, 赵铮¹, 王定勇^{1,3*}

(1. 西南大学资源环境学院, 重庆 400715; 2. 重庆理工大学化学化工学院, 重庆 400054; 3. 重庆市农业资源与环境研究重点实验室, 重庆 400715)

摘要: 分别于2013年9月至2014年7月,在三峡库区长寿湖水库设置5个采样点,分季节、分层次对水样和沉积物间隙水进行了采集和分析,考察了水库水体和沉积物间隙水不同形态汞浓度及垂向分布特征,并研究了沉积物中汞向上覆水的扩散通量. 结果表明,长寿湖水体总汞浓度平均值为 $(14.77 \pm 12.24) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$,总甲基汞浓度平均值为 $(0.41 \pm 0.47) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$. 夏秋季采样点溶解态甲基汞浓度在表层下4~8 m出现峰值,随之其值降低近湖底部再次跃增. 颗粒态甲基汞浓度峰值出现在表层下8~20 m而非在沉积物-水体界面处,主要与上层水体颗粒物吸附甲基汞的沉降有关. 长寿湖水库垂直剖面间隙水甲基汞峰值出现在表层下16 cm和28 cm,可能硫酸盐还原细菌活动扩展到更深的区域,从而导致了沉积物深处甲基化率的提高. 间隙水溶解态甲基汞在秋季和夏季向上覆水体扩散通量分别为 $28.2 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ 和 $30.0 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$,远高于冬季 $3.8 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$,这与夏秋两季水温较高有关. 夏季、春季水体 DMeHg 浓度与 DO 相关关系($r = -0.482^{**}, P < 0.05$; $r = -0.339^*, P < 0.01$),秋季和冬季不具有相关性.

关键词: 水体; 汞; 甲基汞; 长寿湖水库; 间隙水

中图分类号: X524 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)10-3649-13 DOI: 10.13227/j.hjxx.2015.10.013

Seasonal Variations in Vertical Profile of Hg Species and the Influential Factors in Changshou Reservoir

BAI Wei-yang^{1,2}, ZHANG Cheng^{1,3}, TANG Zhen-ya¹, ZHAO Zheng¹, WANG Ding-yong^{1,3*}

(1. College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400715, China; 2. College of Chemistry and Chemical Engineering, Chongqing University of Technology, Chongqing 400054, China; 3. Chongqing Key Laboratory of Agricultural Resources and Environment, Chongqing 400715, China)

Abstract: The vertical distribution of mercury (Hg) species were investigated in water and porewater of Changshou reservoir during the period from September 2013 to July 2014. Water samples were collected seasonally from five sampling sites, and the concentrations of Hg species were evaluated. Diffusion fluxes of Hg from sediment to overlaying water were also obtained. The results showed that the average concentrations of total Hg and total methylmercury (MeHg) were $(14.77 \pm 12.24) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ and $(0.41 \pm 0.47) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, respectively. The concentrations of dissolved MeHg (DMeHg) was highest in 4-8 m under surface water, and then decreased with the increasing water depth with a subsequent increase in the bottom of Changshou Reservoir. Peak particulate MeHg (PMeHg) values were found in 8-20 m under surface water, but not in the interface of sediment-water, suggesting that the increasing PMeHg might be related to the deposition of MeHg adsorbed to particulates from upper water. Two peak MeHg levels in pore water appeared in 16 and 28 cm under sediment surface, probably due to the extension of living region for sulfate reduction bacteria (SRB) to deeper sediment which resulted in increased methylation rate there. The diffusion fluxes of DMeHg from pore water to overlaying water were $28.2 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ and $30.0 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$ in autumn and summer, which were significantly higher than that in winter $3.8 \text{ ng} \cdot (\text{m}^2 \cdot \text{d})^{-1}$. It may be associated with the higher temperature in those two seasons. An obvious negative correlation was observed between DMeHg and dissolved oxygen (DO) in summer and spring ($r = -0.482^{**}, P < 0.05$; $r = -0.339^*, P < 0.01$); however, similar correlations were not found in autumn and winter.

Key words: water body; mercury; methylmercury; Changshou Reservoir; porewater

拦坝建库截流形成的水环境被认为是有利于汞活化、甲基化和生物累积的场所^[1]. 在水库环境

中,水体中多种赋存形态汞通过活化、甲基化进程,形成亲脂强生物神经毒性的甲基汞. 水体中甲基汞

收稿日期: 2015-04-24; 修订日期: 2015-05-31

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); 中央高校基本科研业务费专项(XDJK2013C155)

作者简介: 白薇扬(1980~),女,博士研究生,主要研究方向为水污染化学, E-mail: baiwy@cqut.edu.cn

* 通讯联系人, E-mail: dywang@swu.edu.cn

通过食物链吸收传递和以生物富集放大系数 $10^4 \sim 10^7$ 逐级放大,最终富集在高营养层次鱼类和哺乳动物体内^[3].

研究表明,水库中水体表层温差大,持续时间长,呈现季节性分层的现象^[4,5],抑制了上、下层水体物质的对流交换,一方面造成氮磷等营养物质在底层滞留,另一方面导致溶解氧、氧化还原电位等重要水环境参数发生改变^[5],进而影响着溶解态和颗粒态汞在水库中的扩散沉降,沉积态汞向间隙水溶出向上覆水体扩散重新入水体的释放过程^[6].因此,探讨大型水库各形态汞的迁移转化特征,无疑是研究水库敏感汞效应的重要环节.

长寿湖水库是长江支流重要大型水库,位于重庆西南 130 km,于 1957 年建成,兼具饮用、养殖、发电、旅游、防洪功能.水库流域面积 3 248 km²,龙溪河为主要供水河流,平均库容 7.48×10^9 m³,水力停留时间 0.38 a,最大水深 40 m,平均水深 15 m.20 世纪 90 年代,由于在长寿湖水库大规模开展网箱、网栏养鱼,大量投放饲料,并投放化肥、鸡粪等,导致水体污染,水体富营养化严重.尽管 2004 年 4 月后,已全面拆除水库的网箱、拦网养殖,水质已有所改善,但目前水体仍呈中到富营养化状态.因此,开展长寿湖水库水体和沉积物间隙水中不同形态汞的浓度及其空间分布特征研究,探讨其迁移转化规律,以期为进一步研究汞在水体中的环境化学行为具有重要意义.

1 材料与方法

1.1 采样点布设

本次调查于 2013 年 9 月~2014 年 7 月在长寿湖水库选取了 5 个采样点,采样点布设见图 1. 采样点 S1 (E 107°15'29", N 29°55'3") 位于水库大坝前,为长寿湖水库出水口. S2 (E 107°16'23", N 29°59'3") 位于水库西部,为龙溪河入水口,龙溪河流经垫江县和梁平县,河两岸分布密集村落和大片果园. S3 (E 107°18'58", N 29°58'21") 位于水库北部回水区,水力交换时间长. S4 (E 107°20'19", N 29°57'5") 位于水库东部,为另一主要支流入水口,两岸果园分布广泛,村落分布较少. S5 (E 107°17'45", N 29°56'30") 位于水库中部,北部岛屿分布成片果园,西部和南部岛屿旅游业发达. 分别于 2013 年 9 月 25 日,2014 年 1 月 8 日、4 月 24 日、7 月 13 日,在 S1~S5 采样点分层采集垂直断面水样和沉积物间隙水样. 水体水样测定了总汞 (THg)、溶解态汞

(DHg)、颗粒态汞 (PHg)、活性汞 (RHg) 和总甲基汞 (TMeHg)、溶解态甲基汞 (DMeHg)、颗粒态甲基汞 (PMeHg) 浓度,沉积物间隙水测定溶解态汞 (DHg)、溶解态甲基汞 (DMeHg) 浓度.

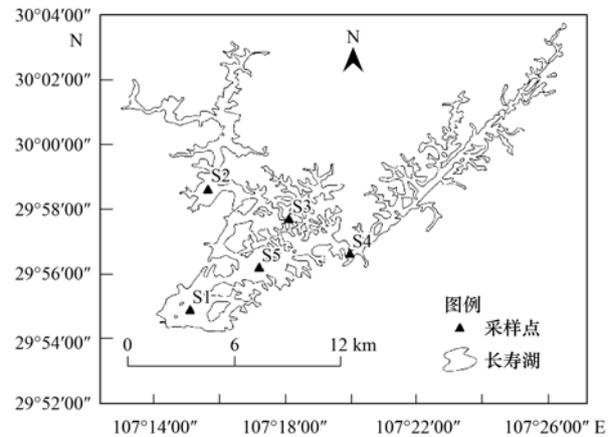


图 1 重庆长寿湖水库采样点分布示意

Fig. 1 Sampling Location in Changshou Reservoir

1.2 样品采集与分析

1.2.1 水样采集

Nisiki 采样器在 S1~S5 样点,从表层到底层按每 4 m 深度取一个样. 采集的水样一部分注入高硼硅玻璃样品瓶,用于分析 THg、RHg、TMeHg,另一部分用 0.45 μm 滤膜 (Millipore) 过滤后注入高硼硅玻璃样品瓶,用于分析 DHg、DMeHg. 水样放入冷藏样品箱,运至实验室后存放冰箱中 0~4℃ 保存,1 周内完成各形态汞的分析.

1.2.2 沉积物间隙水采集

SWB-1 型便携式不扰动湖泊沉积物采样器采集 S1-S5 样点的沉积物柱,确保界面水清澈,沉积物未被扰动^[8]. 仔细抽取界面水后,沉积物样品在氮气氛围的厌氧条件下在现场分割. 表层以下 10 cm 按 1 cm 间距分割,10 cm 以下部分按 2 cm 间距分割,将样品封存入经过酸预处理的 50 mL 离心管,用封口胶密封,低温 4℃ 保存. 24 h 内于转速为 3 000 r·min⁻¹ 约 30 min, 4℃ 恒温条件下高速离心沉积物固相和液相,用针式过滤器以 0.45 μm (Millipore) 滤膜获得沉积物间隙水,用于分析 DHg、DMeHg.

1.2.3 水样分析与质量控制

水样分析参照 USEPA Method 1630 和 Method 1631^[9,10] 进行. 分别取未过滤水样和过滤水样经氯化溴氧化,氯化亚锡还原,金管富集-冷原子荧光光谱法 (CVAFS) 测定,得出水样 THg、DHg 浓度,将 THg - DHg = PHg. 取未过滤水样直接用氯化亚锡还原,金管富集-CVAFS 测定,得出水样 RHg 浓度. 分

别取未过滤水样和过滤水样, 采样蒸馏-乙基化-GC-CVAFS 法测定, 分别得出 TMeHg、DMeHg 浓度, 将 TMeHg - DMeHg = PMeHg. 采用不大于样品最小值 20% 的方法空白、实验器皿空白、野外空白确保样品各形态汞的质量分析准确性^[11]. 分析过程中的质量控制采用平行样控制及加标回收率, 加标回收率为 80% ~ 112%, 并对 5% 的样品进行重复测定, 相对标准偏差 < 9%.

阴阳离子按照 Method 300 Revision 2.1 (EPA, 1993) 采用 DX-120 (Dionex, USA) 进行分析. pH 用 PT-10 (Sartorius, Germany) 测定. 溶解氧 (DO) 用 YSI 550A (Washington, USA) 测定; DOC 使用 Sievers InnovOx Laboratory TOC Analyzer (GE USA) 进行分析.

1.2.4 数据处理

数据管理采用 Microsoft Excel(2010), 正态分布检验采用 Origin 8.0 软件, 统计分析采用 SPSS 16.0.

1.2.5 沉积物孔隙水中的汞对上覆水体的贡献率

根据 Fick's First Law 并结合浓度梯度, 计算出

长寿湖水库沉积物/水界面溶解态甲基汞和溶解态汞的扩散通量 F ^[12].

$$F = - \left[\frac{\varphi D_w}{\theta^2} \right] \frac{\partial c}{\partial x} \quad (1)$$

式中, $\frac{\partial c}{\partial x}$ 是溶质的最大浓度梯度; φ 是沉积物孔隙度(表层 0 ~ 5 cm 沉积物的孔隙度为 0.93^[12]), θ 是弯曲度, D_w 为溶液中的分子扩散系数. MMHg 和 DHg 的扩散系数分别为 $1.84 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 和 $8.65 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ^[12].

$$\theta^2 = 1 - \ln(\varphi^2) \quad (2)$$

式(2)是孔隙度与弯曲度之间的关系式.

假设沿浓度梯度扩散是沉积物中的汞向上覆水体迁移的主要途径, 根据式(3)可以估算出沉积物间隙水中汞对上覆水体汞的贡献程度 η :

$$\eta = (F \times t_w) / (h \times c) \quad (3)$$

式中, η 为贡献率, F 为扩散通量, h 为长寿湖水库平均水深 15 m, t_w 为长寿湖水库水力停留时间 0.38 a, c 为上覆水体中汞的平均浓度 ($\text{ng} \cdot \text{L}^{-1}$).

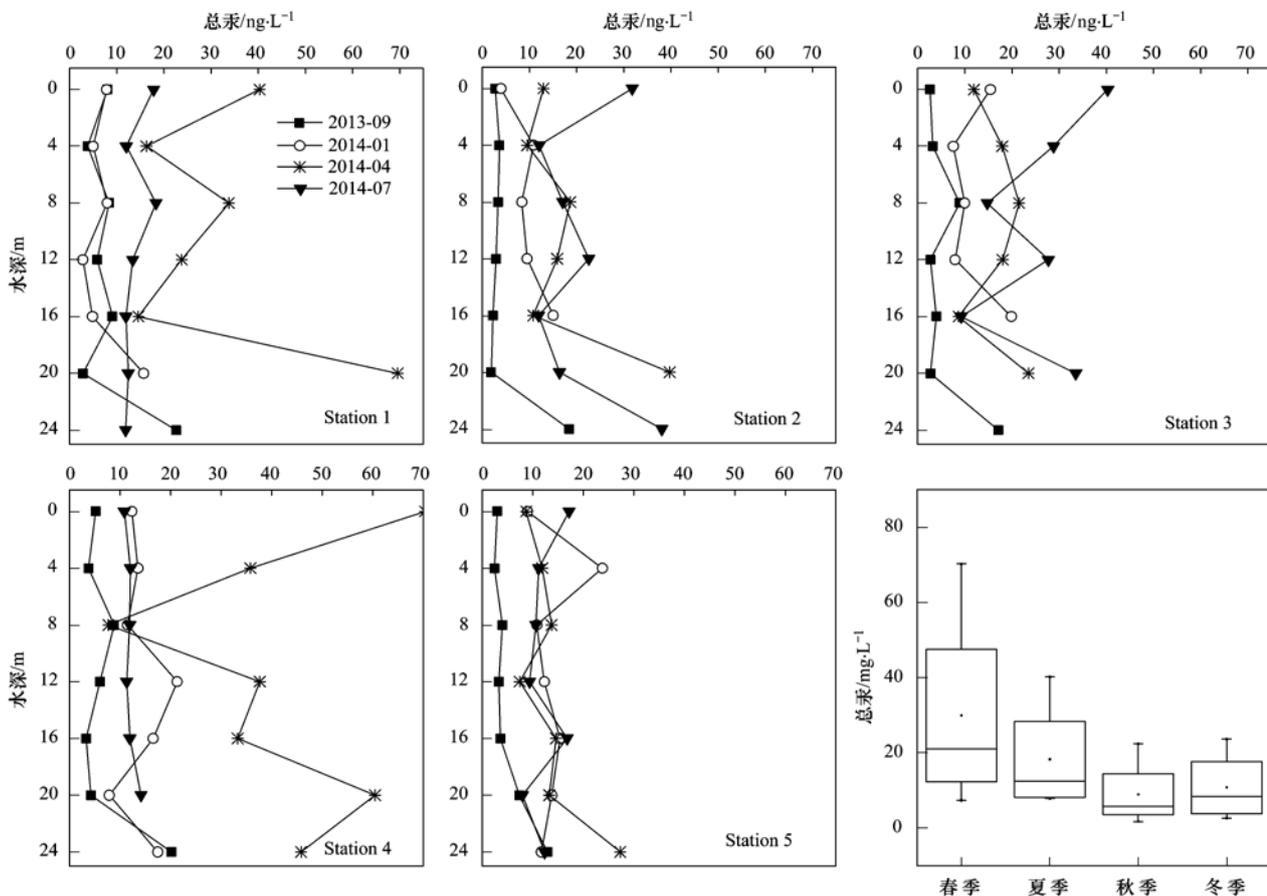


图 2 长寿湖水库水体总汞剖面季节分布

Fig. 2 Distribution of THg in water columns of Changshou Reservoir

2 结果与讨论

2.1 垂直剖面水体各形态汞浓度季节变化

长寿湖水库不同形态汞浓度垂直分布如图 2 ~ 5 所示. 长寿湖水库水体总汞浓度变化范围为 1.86 ~ 70.33 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均值为 $(14.77 \pm 12.24) \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 远低于我国环境质量标准(GB 3838-2002)规定的一类地表水汞浓度标准限值($50 \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$). 总汞浓度春季 > 夏季 > 冬季 > 秋季. 从水体垂直剖面来看, 春季浓度变化波动最为明显, 总汞浓度从表层到 4 ~ 8 m 降低, 分析原因是大量径流携带汞入库造成表层总汞含量偏高, 随着水深增加, 颗粒物携汞逐渐沉降, 因而总汞含量逐渐降低. 当接近湖底, 总汞含量增高明显, 这与沉积物的扰动和再悬浮有关. 通过将长寿湖水库水体总汞浓度与世界上其他湖泊

水库相比较(表 1), 高于北欧北美未受污染天然水体^[13~15], 与云南滇池汞浓度相当^[16]. 与同属西南地区湖泊的乌江渡, 东风水库^[17] 和阿哈水库^[18] 对比, 汞含量在同一数量级. 究其原因如下: ① 重庆长寿湖水库周边地区土壤重金属 Hg [$(0.54 \pm 0.22) \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$] 富集较为严重, 超过了土壤质量一级标准($0.15 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$)^[19]. 水库流域农业活动密集, 且土壤蓄水能力弱, 坡耕地受径流冲刷严重, 会造成大量总汞、溶解态汞以及颗粒态汞随径流进入长寿湖. ② 覃蔡清等^[6] 对重庆降雨研究发现总汞含量 7.47 ~ 120.11 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 大气湿沉降是水库流域的重要汞输入. ③ 长寿湖水库唯一主要来水龙溪河两岸分布长寿化工厂、村落以及大片果园, 工业以及农业生活污水所带入的外源性污染物可能是各形态汞的主要来源.

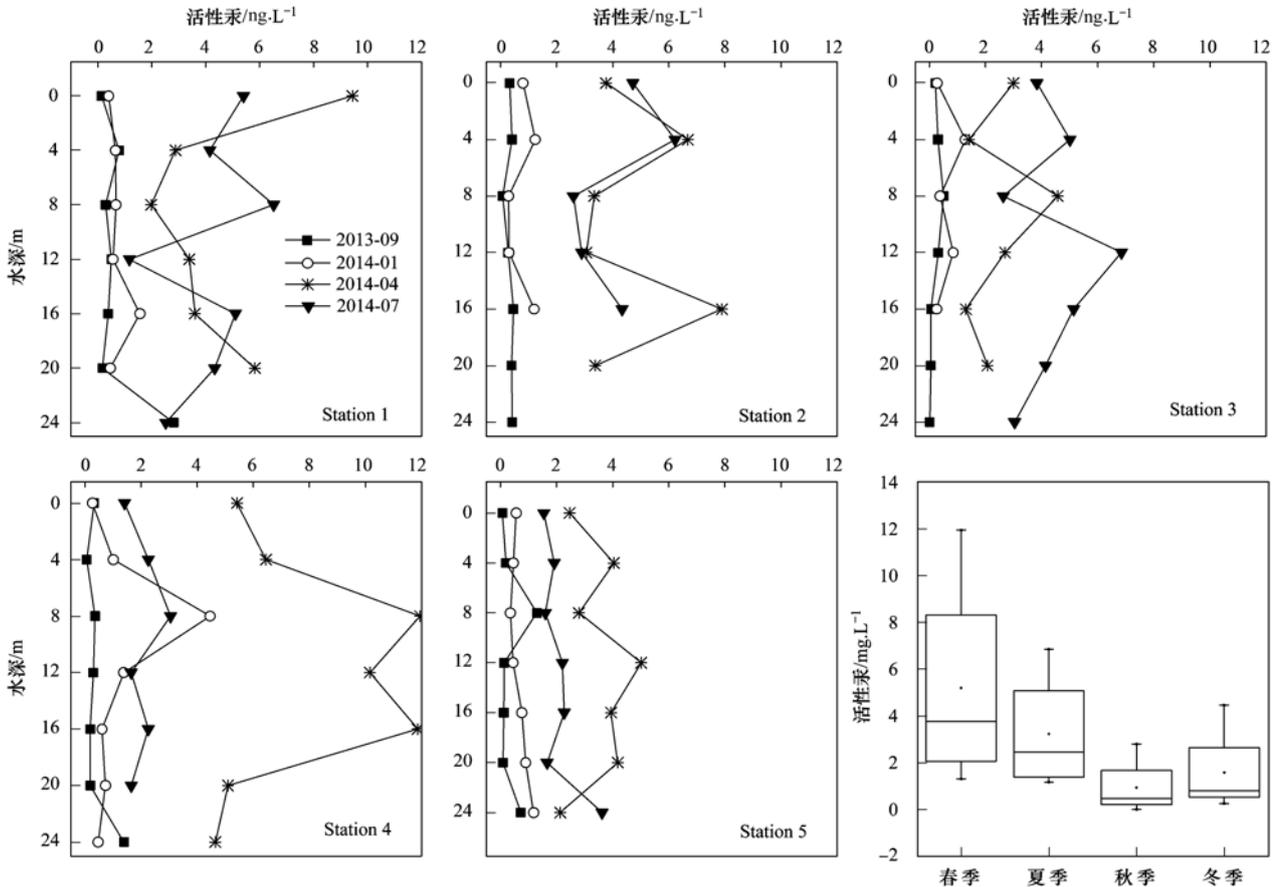


图 3 长寿湖水库水体活性汞剖面季节分布

Fig. 3 Distribution of RHg in water columns of Changshou Reservoir

长寿湖水库水体颗粒态汞浓度平均值为 $(9.13 \pm 11.51) \text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 全年中春季水体颗粒态汞浓度最高, 且水体垂直剖面上颗粒态汞浓度表现出先降低再升高的趋势, 在表层下 8 m 和 20 m 处出现浓度跃增, 原因可能是春季进入丰水期, 入库径流水温较水

库本身水温低, 即入库径流密度较水库水体大, 而这种密度差异导致径流在表层 10 m 以下深处潜流进入水库, 造成水库中下部水体颗粒态汞浓度增加.

从图5可以看出, 长寿湖水库溶解态汞浓度平

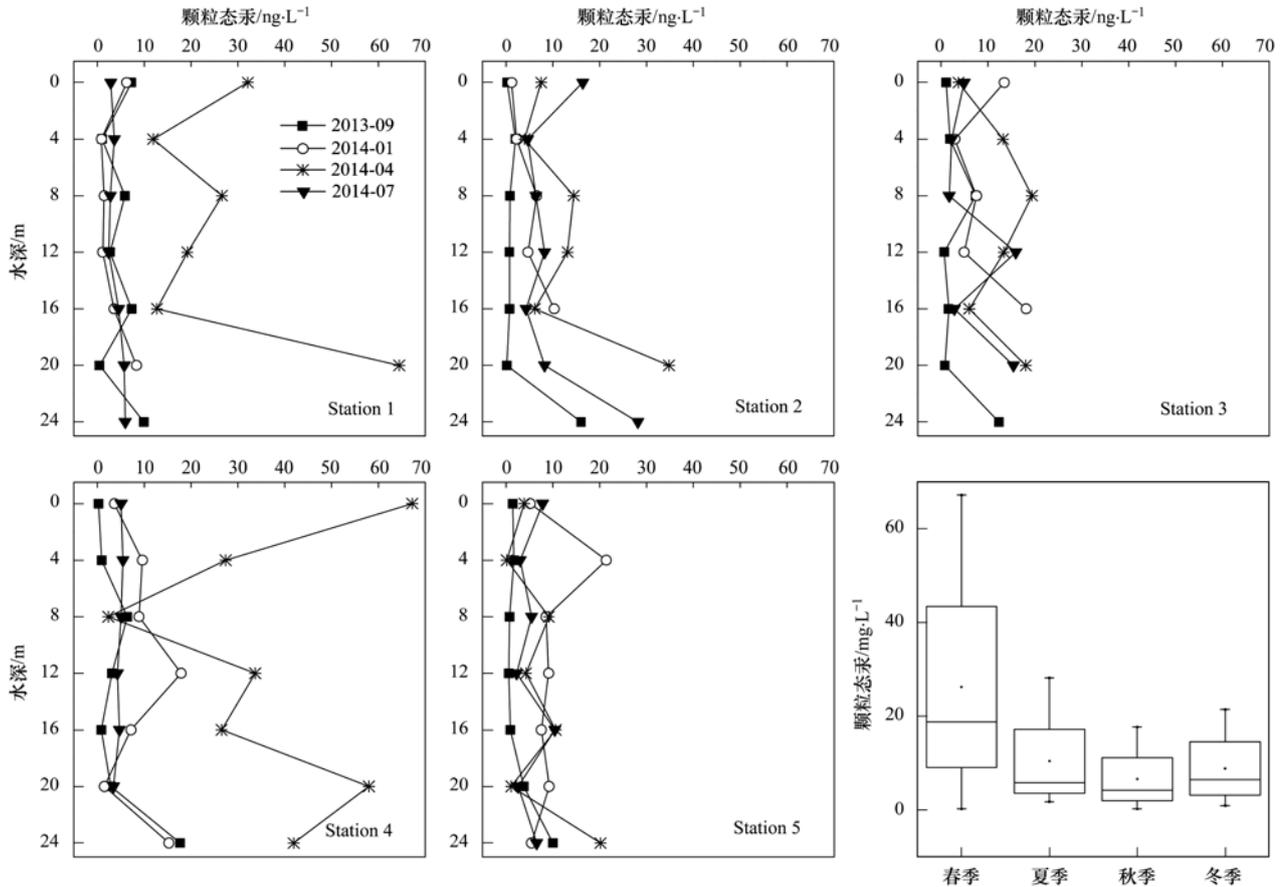


图 4 长寿湖水垂直剖面不同形态汞的季节分布

Fig. 4 Distribution of PHg in water columns of Changshou Reservoir

表 1 长寿湖水总汞、甲基汞浓度与世界其他湖泊比较

Table 1 Comparison of THg and TMeHg concentrations in the Changshou Reservoir with other aquatic systems

地点	介绍	湖水		间隙水		文献
		THg /ng·L ⁻¹	MeHg /ng·L ⁻¹	THg /ng·L ⁻¹	MeHg /ng·L ⁻¹	
Spring Lake, USA	背景值	1.5 ± 0.87	0.1 ± 0.12	10 ~ 22	0.1 ~ 2.1	[13]
Salmon Falls Creek Reservoir, USA	富营养化	2.0 ~ 4.4	0.48 ~ 1.8	11 ~ 230	0.68 ~ 8.5	[14]
Experimental Reservoir, Canada	新建水库	1.1 ~ 6.0	0.1 ~ 2.1			[15]
云南滇池	富营养化	30 ± 8.2	0.24 ± 0.08	54 ± 16	2.0 ± 0.55	[16]
乌江渡、东风水库	地质汞富集	16 (6.1 ~ 26)	1.12 (0.52 ~ 1.64)	21.26 (14 ~ 29)	3.51 (0.25 ~ 9.86)	[17]
阿哈水库	曾经煤窑废水注入	9.3 (2.08 ~ 19.04)	0.66 (0.26 ~ 2.05)	34.1 (7.5 ~ 92.1)	0.62 (0.06 ~ 1.57)	[18]
百花湖	曾经汞污染	22 (7.1 ~ 150)	1.3 (0.11 ~ 10)	6.1 ~ 5860	0.3 ~ 15	[20]
红枫湖	富营养化	2.5 ~ 14	0.05 ~ 0.92	10 ~ 50	0.2 ~ 3.0	[21]
长寿湖水库	富营养化	14.7 ± 12.24	0.41 ± 0.47	14.39 ± 11.77	2.62 ± 3.03	本研究

均值为(5.62 ± 4.75) ng·L⁻¹. 溶解态汞浓度大小顺序依次为: 夏季 > 春季 > 冬季 > 秋季. 长寿湖水库秋、冬、春、夏季溶解态汞占总汞比例分别为 53.4% ± 25.6%、41.4% ± 23.6%、31.2% ± 23.9%、63.9% ± 14.2%. 夏季水体垂直剖面表层和底层溶解态出现升高,一方面是由于夏季丰水期暴雨径流带入大量颗粒态汞同时表层溶解态汞的浓

度相应升高,另一方面夏季温跃层的以下的水体逐渐进入缺氧还原状态,湖底沉积物吸附的汞解析再悬浮进入水体底部水体.

长寿湖水库活性汞浓度平均值为(2.30 ± 2.43) ng·L⁻¹. 类似于总汞,春季和夏季由于降水和地表径流等外源性输入增加,表层水体活性汞增高显著,而后随水体深度增加整体变化波动变化明显.

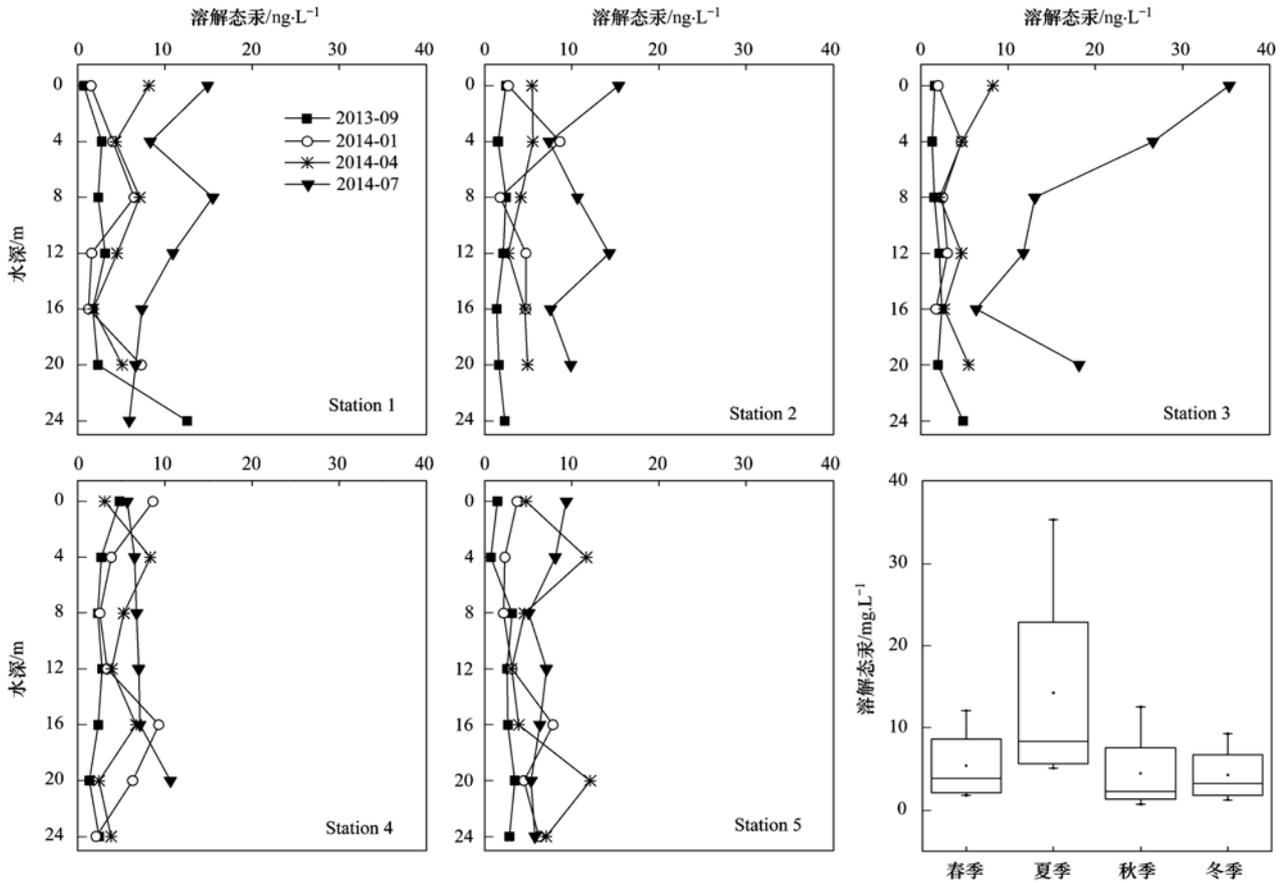


图5 长寿湖水体溶解态汞剖面季节分布

Fig. 5 Distribution of DHg in water columns of Changshou Reservoir

长寿湖水体活性汞与总汞之间呈显著性相关关系($r=0.754^{**}$, $P < 0.01$), 这表明长寿湖水体活性汞浓度受总汞影响显著。

从图6~8可以看出, 长寿湖水体总甲基汞浓度平均值为 $(0.41 \pm 0.47) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。秋、冬、春、夏季甲基汞浓度分别为: (0.46 ± 0.17) 、 (0.32 ± 0.24) 、 (0.41 ± 0.26) 、 $(0.46 \pm 0.31) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 在夏秋季节随着剖面垂直深度增加, 表层下10 m左右出现峰值, 而后又逐步降低, 接近湖底部又明显增加。Watrás等^[22]研究发现, 暖季水体8 m处温度的分层和溶解氧的跌落, 有利于该处甲基汞的形成。因此, 一方面长寿湖水体夏季上部湖水分层, 水体垂直剖面中部的峰值与自身甲基化的生成有关, 另一方面底部浓度的跃增与季节性的湖底厌氧环境, 结合夏季的高温, 更有利于甲基化速率的增加, 沉积物间隙水总甲基汞向上的扩散从而使得水体底部总甲基汞浓度增加。

溶解态甲基汞浓度平均值为 $(0.17 \pm 0.18) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。秋、冬、春、夏季溶解态甲基汞浓度分别

为: (0.27 ± 0.10) 、 (0.09 ± 0.05) 、 (0.25 ± 0.16) 、 $(0.07 \pm 0.03) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。从垂直剖面上看, 夏秋季采样点溶解态甲基汞浓度在表层下4~8 m出现峰值, 随之其值降低近湖底部再次跃增。主要原因为湖体高温厌氧环境中, 沉积物表面有机物腐烂过程中形成的气泡, 使已经沉降的悬浮物再浮起, 同时还还原条件下具有较大比表面积的铁和锰的氧化物及氢氧化物溶解, 大量甲基汞得以向水体释放, 溶解态甲基汞由沉积物再次进入上覆水体, 使其溶解态甲基汞浓度增加。

颗粒态甲基汞浓度在秋、冬、春、夏季分别为: (0.23 ± 0.11) 、 (0.21 ± 0.15) 、 (0.24 ± 0.12) 、 $(0.27 \pm 0.17) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 。颗粒态甲基汞浓度大小顺序依次为: 夏季 > 春季 > 秋季 > 冬季。从图8可以看出, 全年中大多数时候颗粒态甲基汞的峰值并没有出现在沉积物-水体界面处, 而是在湖水体中下部8~20 m处。He等^[21]研究指出上层颗粒物的沉降会导致缺氧层颗粒态甲基汞的升高。因而, 长寿湖水体剖面中颗粒态甲基汞增高并不来源于沉积物

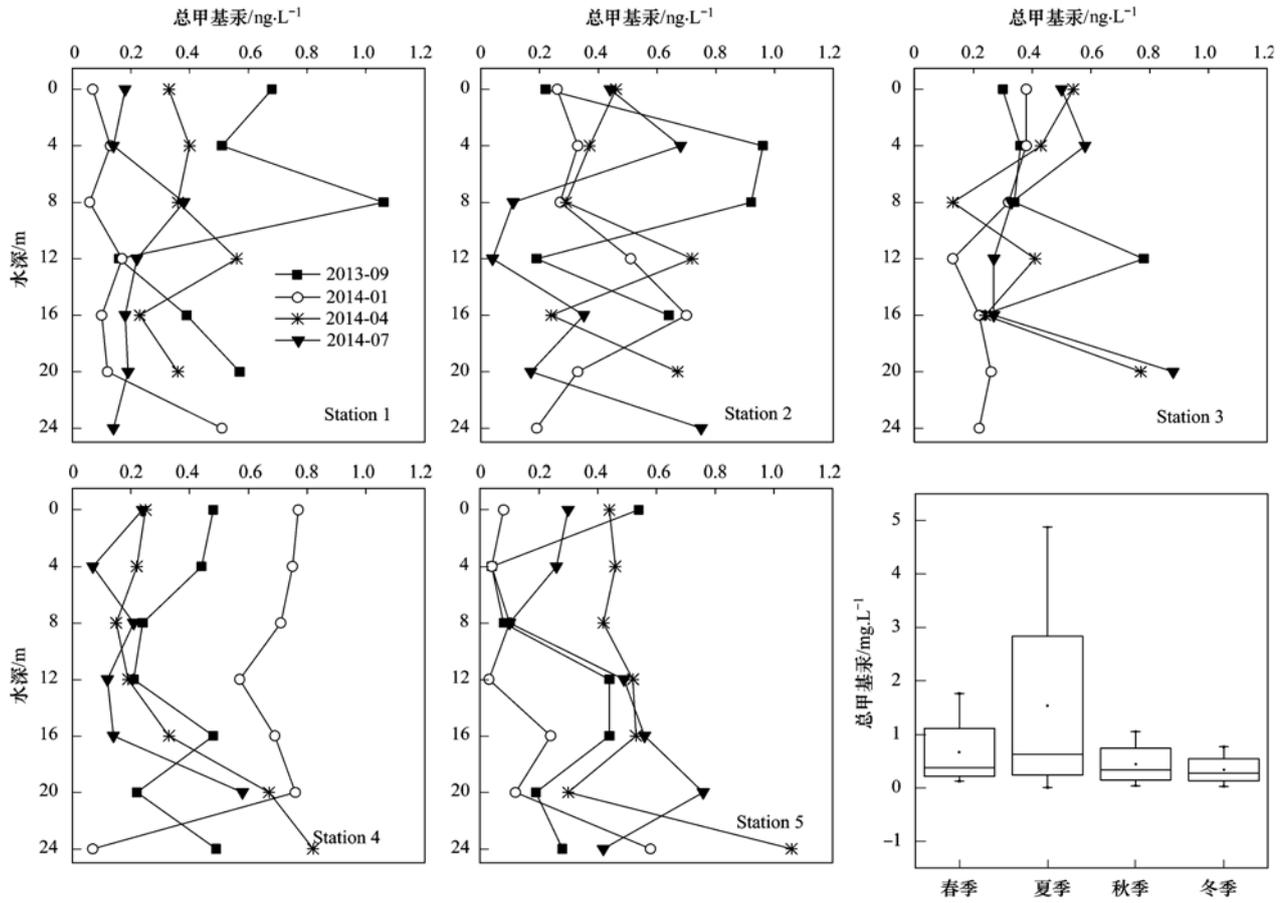


图6 长寿湖水库水体总甲基汞剖面分布

Fig. 6 Distribution of TMeHg in water columns of Changshou Reservoir

的再悬浮,而是上层水体颗粒态甲基汞的沉降。

2.2 沉积物间隙水中溶解态汞与溶解态甲基汞分布

沉积物间隙水水化学是沉积物形成和与水体进行物质交换的敏感指示器^[24,25]。长寿湖水库沉积物间隙水溶解态汞浓度分布如图9所示,其变化范围为 $1.85 \sim 85.39 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值为 $14.39 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。间隙水中无机汞浓度季节趋势:秋季>夏季>春季>冬季。Barkay等^[26]研究发现汞在沉积物固相与液相的分配会受到pH、Eh因素影响。因此,长寿湖水库沉积物间隙水溶解态汞在垂直剖面波动范围较大,不固定峰值的出现与间隙水中氧化还原条件,配位反应等环境因素的影响有关。总体而言,间隙水中溶解态汞的浓度高于上覆水体中溶解态汞的浓度。

从图10可以看出间隙水溶解态甲基汞浓度变化范围为 $0.01 \sim 17.35 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均值为 $2.62 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。间隙水中溶解态甲基汞浓度季节趋势:秋季>夏季>春季>冬季,且间隙水中溶解态甲基汞的浓度远高于上覆水体中溶解态甲基汞的浓度。

Hines等^[13]研究发现在Spring湖孔隙水甲基汞浓度峰值出现在表层下20 cm和31 cm处。长寿湖水库垂直剖面间隙水甲基汞峰值出现在表层下16 cm和28 cm,可能硫酸盐还原细菌活动扩展到更深的区域,从而导致了沉积物深处甲基化率的提高。

研究表明,水生系统中甲基汞占总汞比例(DMeHg/THg)是判断甲基汞产率的重要指标^[27,28]。分析发现,长寿湖水库间隙水四季DMeHg/DHg(%)分别为:2013年9月 $10.9\% \pm 8.5\%$;2013年12月 $26.1\% \pm 7.8\%$;2014年3月 $24.5\% \pm 6.3\%$;2014年7月 $32.3\% \pm 15.6\%$,总体高于乌江流域乌江渡水库15%和引子渡水库13%,但远低于北美北欧所报道的新建水库水体比例(50%~80%)^[29],长寿湖水库属于中等甲基汞产率湖泊。

2.3 沉积物/水界面溶解态汞和溶解态甲基汞的扩散通量

对于深水水库而言,沉积物间隙水与上覆水体浓度梯度所引起的分子扩散作用是沉积物与上覆水

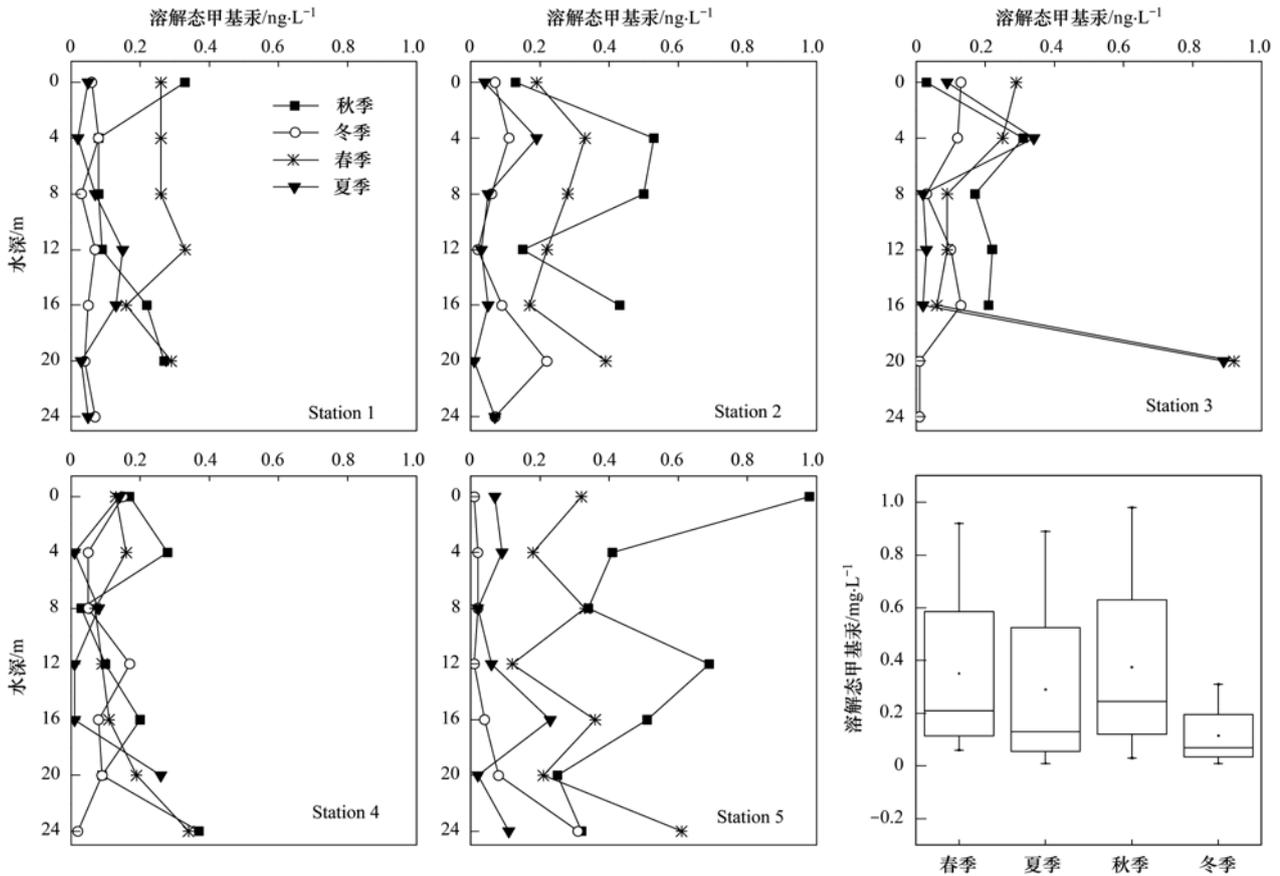


图 7 长寿湖水体溶解态甲基汞剖面分布

Fig. 7 Distribution of DMeHg in water columns of Changshou Reservoir

体之间进行物质交换的主要形式^[30]. 长寿湖水库沉积物间隙水溶解态汞和溶解态甲基汞向水体扩散通量见表 2. 可以看出, 长寿湖水库间隙水溶解态汞和溶解态甲基汞扩散通量明显季节变化. 间隙水溶解态汞秋季 > 夏季 > 春季 > 冬季. 间隙水溶解态甲基汞在夏季和秋季向上覆水体扩散通量分别为 30.0 和 28.2 $\text{ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 远高于冬季 3.8

$\text{ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$. 夏秋季节长寿湖水库沉积物的厌氧层中大量难溶的 HgS 解析, 同时具有较大比表面积的铁锰氧化物及氢氧化物逐渐溶解, 使得大量吸附的甲基汞向水体释放^[31], 造成液相溶解态甲基汞浓度的增加. 因此, 长寿湖水库沉积物与水体界面间季节性厌氧环境对促使间隙水汞扩散通量增加起到重要作用.

表 2 长寿湖水库 DHg、DMeHg 扩散通量及贡献率

Table 2 Diffusion flux and contribution rate of DHg and DMeHg in Changshou Reservoir

类型	项目	秋季	冬季	春季	夏季
溶解态汞	间隙水中汞浓度/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	25.0	6.7	10.0	16.3
	上覆水体汞浓度/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	2.6	4.2	5.2	10.4
	浓度梯度/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	22.4	2.5	4.8	5.9
	扩散通量/ $\text{ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$	147.1	16.7	32.5	43.7
	贡献率/%	0.2	0.01	0.02	0.01
溶解态甲基汞	间隙水中汞浓度/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	4.2	0.7	2.0	3.6
	上覆水体汞浓度/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	0.1	0.3	0.3	0.1
	浓度梯度/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	4.1	0.4	1.7	3.5
	扩散通量/ $\text{ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$	28.2	3.8	15.9	30.0
	贡献率/%	7.1	0.3	1.3	7.6

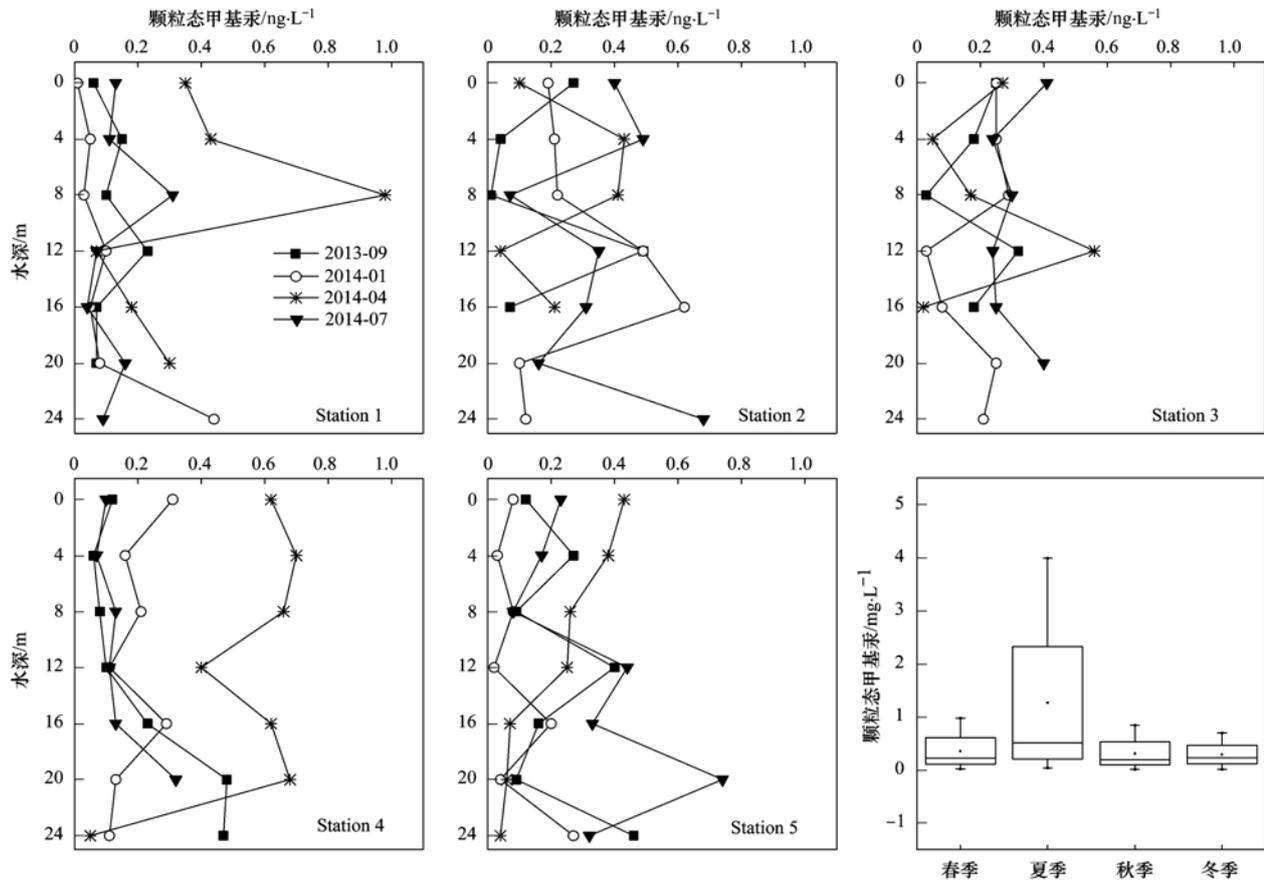


图 8 长寿湖水库水体颗粒态甲基汞剖面分布

Fig. 8 Distribution of PMeHg in water columns of Changshou Reservoir

3 影响水体甲基汞分布因素

甲基汞是水环境中最常见的有机汞形式,一般通过 Hg^{2+} 甲基化而来^[31]. PMeHg 在水库中的沉降解析为 DMeHg, 沉积态汞向间隙水溶出 DMeHg 并向上覆水体扩散重新入水体的过程均与水环境条件(如水温、溶解氧、氧化还原电位等)有着重要关系. 因此,水体水质参数条件对水体甲基汞的影响非常重要.

3.1 水温

水温作为重要的水环境影响因子之一,通过影响微生物活动的活性影响着水体甲基汞的形成^[32].

长寿湖水库全年水体垂直剖面温度 $9.0 \sim 33.2^\circ\text{C}$, 平均值 20.1°C (如图 11). 从长寿湖水库水体甲基汞所占比例 $\text{MeHg}/\text{THg}(\%)$ 来看,夏季最高 57%, 其次为春季 52%、秋季 32%、冬季 26%. 这表明夏季的到来,水体温度升高明显,硫酸盐还原菌、铁还原菌等微生物的活跃繁殖,有利于汞向甲基汞转化;在冬季微生物代谢和生长活动的低速率使得 MeHg 的产生量显著降低. 有研究者在 San

Francisco Bay 注意到沉积物微生物 Hg 的甲基化进程在 35°C 具有最高值^[29]. 因此,长寿湖水库适宜的水温有利于提高水中微生物的活性而促进汞的甲基化作用,较低温度抑制汞的甲基化或者有利于汞脱甲基化进程.

3.2 溶解氧

汞的甲基化进程大多发生在厌氧环境,好氧环境有利于去甲基化进行^[29]. 长寿湖水库水体垂直剖面中 DO 变化范围 $1.1 \sim 13 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 均值 $5.8 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ (图 12).

长寿湖水库 DO 与夏季水体 DMeHg 浓度呈极显著负相关关系 ($r = -0.482^{**}$, $P < 0.05$), 春季显著负相关关系 ($r = -0.339^*$, $P < 0.01$), 秋季和冬季不具有相关性. 夏季长寿湖水库水体 DO 随水深深度增加而逐渐减小,同时水体温度的分层有效抑制了上、下水团的交换,逐渐形成水库底部厌氧环境. 湖底水体厌氧条件下,由于溶解态硫化物复合体的形成以及铁锰氧化物及氢氧化物的溶解,大量甲基汞得以向水体释放,造成水体溶解态甲基汞浓度的增加^[32]. 因此,长寿湖水库水环境中季节性低

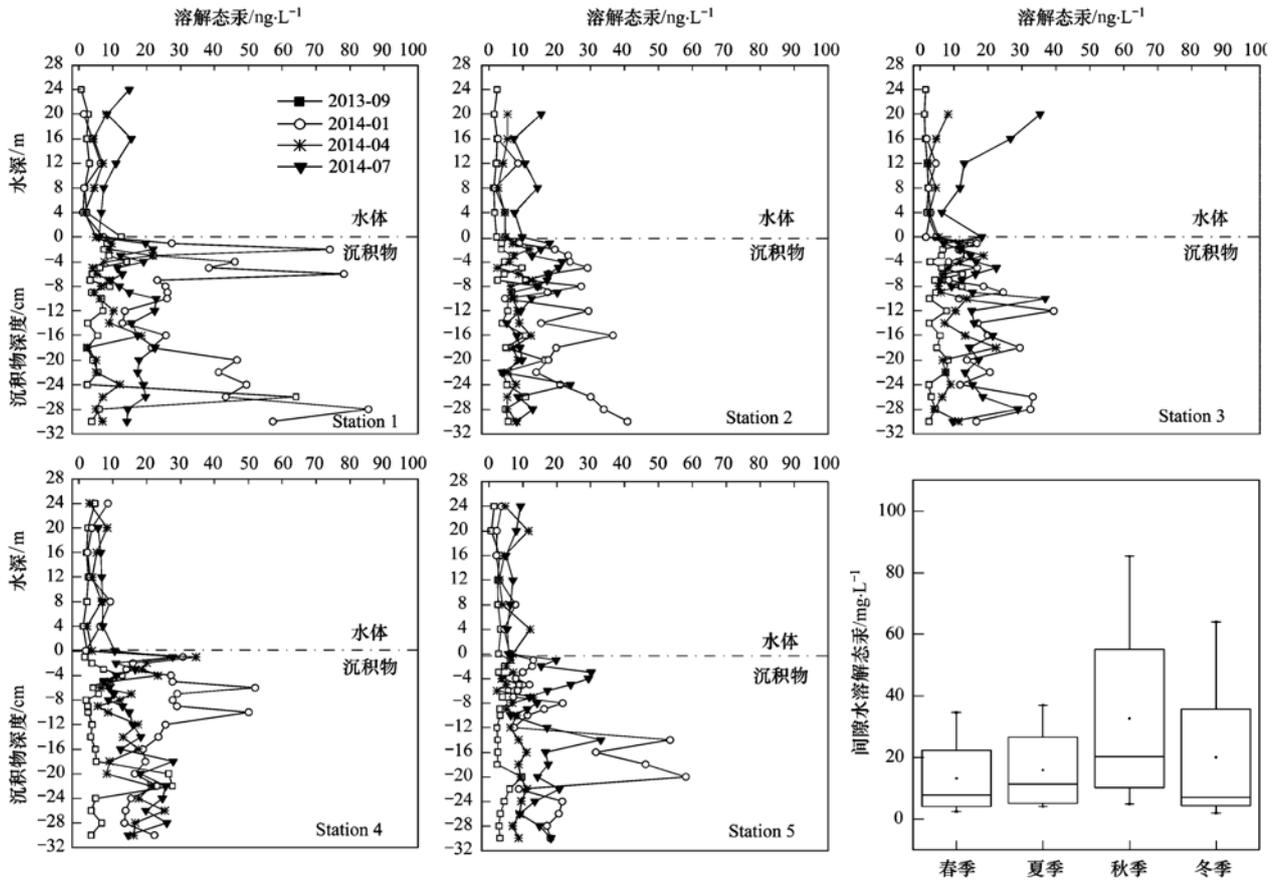


图9 长寿水库沉积物间隙水溶解态汞剖面分布

Fig. 9 Distribution of DMethHg in sediment porewater profiles

DO 有助于 DMethHg 的解析和释放。

3.3 溶解有机碳

长寿水库水体溶解有机碳 DOC 变化范围 $9.67 \sim 14.4 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 均值 $10.8 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, 远高于乌江流域的红枫湖水库 ($2.5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$) 和乌江渡水库 ($1.3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$)。通过长寿水库水体 DMethHg 与水体 DOC 浓度之间的相关分析发现两者均没有相关性。DOC 对 Hg 的内在影响因素尚有争议。Barkay 等^[26]证实高 DOC 通过降低 Hg^{2+} 对甲基化进程细菌的适宜性从而抑制 MMHg 的合成速率。而 Watras 等^[22]注意到 Wisconsin 湖水中随着 DOC 的增加而 MMHg 部分增加, 特别是 DOC 浓度大于 $5 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。长寿水库中有机质降解同时水中溶解氧消耗量随之增加, 导致沉积物/水体界面更多以厌氧环境为主, 增加了无机汞的移动性以及加速了潜在甲基化进程。同时湖中高 DOC 值意味着汞与有机配体结合型的增加, 从而降低了汞对于细菌的微生物适宜性。因此, 长寿水库水体 DOC 对 DMethHg 影响是多方面的, 有待以后进一步深入研究。

4 结论

(1) 长寿水库水体总汞浓度平均值为 $(14.77 \pm 12.24) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 长寿水库水体总甲基汞浓度平均值为 $(0.41 \pm 0.47) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。夏秋季采样点溶解态甲基汞浓度在表层下 $4 \sim 8 \text{ m}$ 出现峰值, 随之其值降低近湖底部再次跃增。颗粒态甲基汞浓度峰值出现在表层下 $8 \sim 20 \text{ m}$ 而非在沉积物-水体界面处, 主要与上层水体颗粒物吸附甲基汞的沉降有关。

(2) 长寿水库垂直剖面间隙水甲基汞峰值出现在表层下 16 cm 和 28 cm , 可能硫酸盐还原细菌活动扩展到更深的区域, 从而导致了沉积物深处甲基化率的提高。间隙水溶解态甲基汞在秋季和夏季向上覆水体扩散通量分别为 $28.2 \text{ ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 和 $30.0 \text{ ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$, 远高于冬季 $3.8 \text{ ng}\cdot(\text{m}^2\cdot\text{d})^{-1}$ 。

(3) 长寿水库适宜的水温有利于提高水中微生物的活性从而促进汞的甲基化作用, 较低温度抑制汞的甲基化或者有利于汞脱甲基化进程。夏季、春季水体 DMethHg 浓度与 DO 相关关系 ($r = -0.482^{**}$, $P < 0.05$; $r = -0.339^*$, $P < 0.01$), 秋

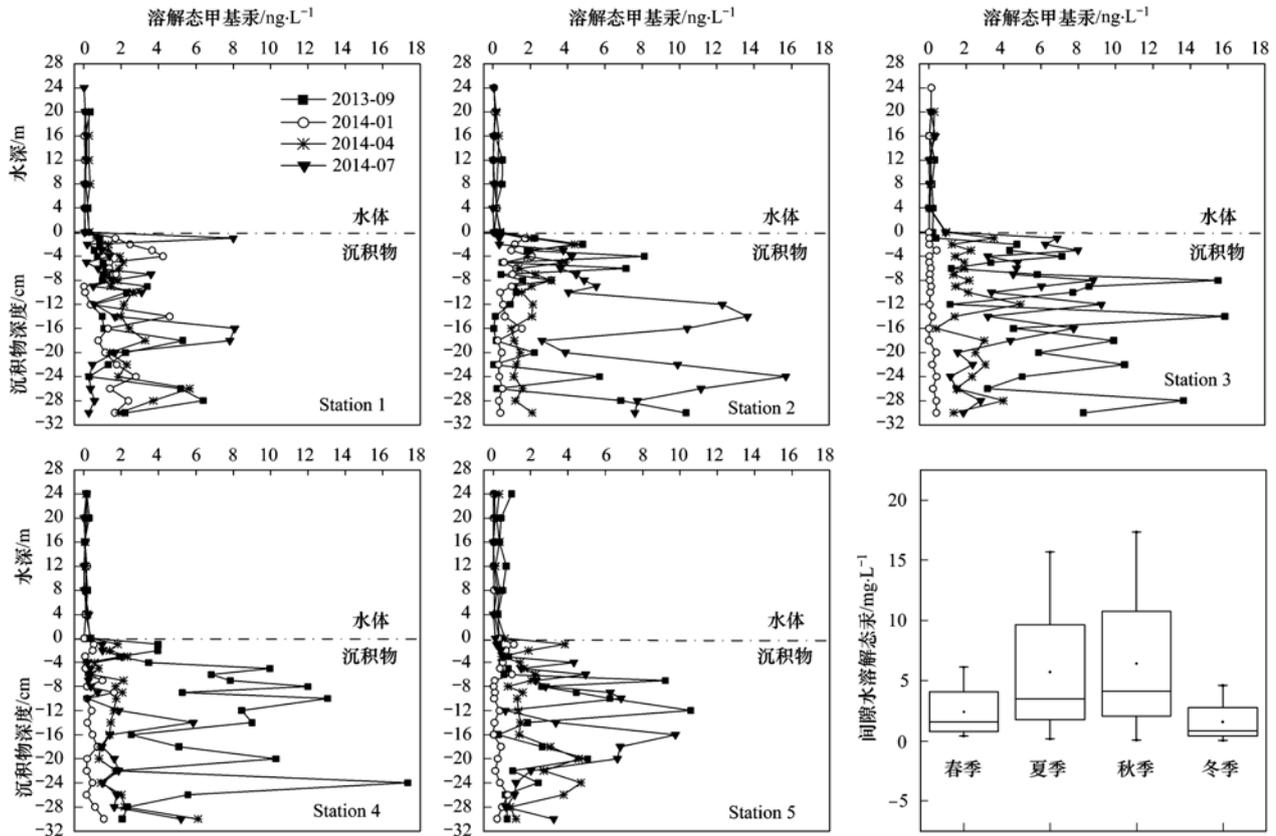


图 10 长寿湖水库沉积物间隙甲基汞剖面分布

Fig. 10 Distribution of DMethg in sediment porewater profiles

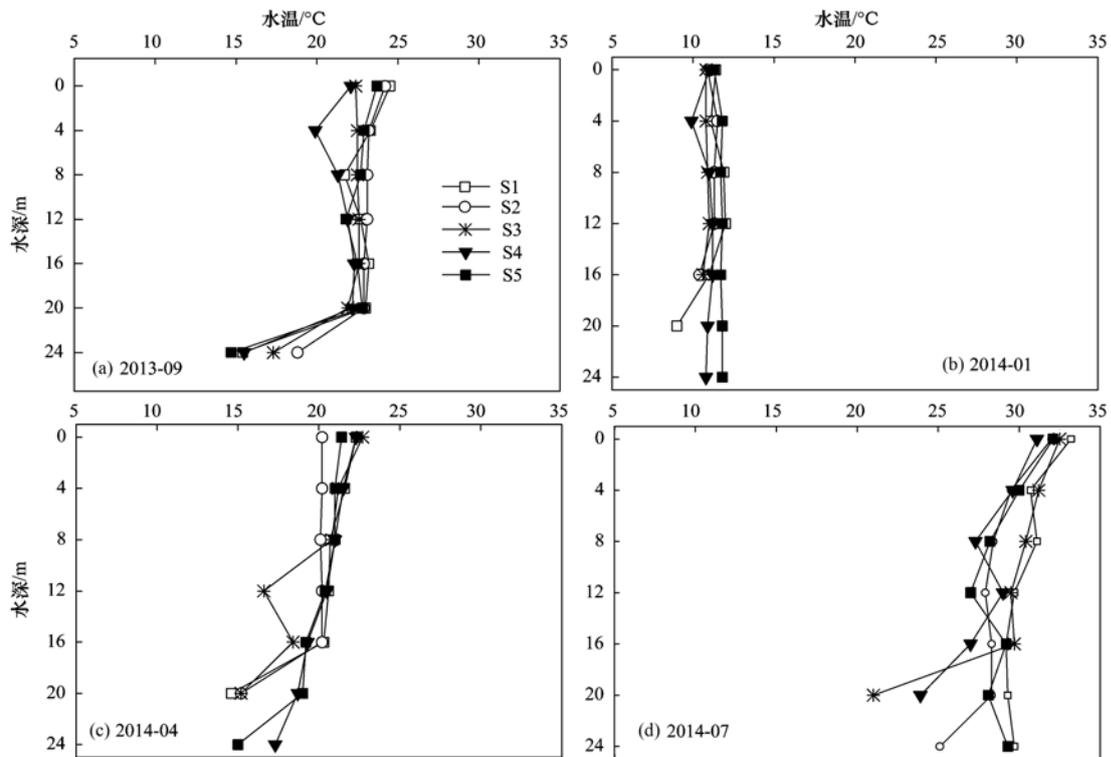


图 11 长寿湖水库水体水温参数

Fig. 11 Water temperature in Changshou Reservoir

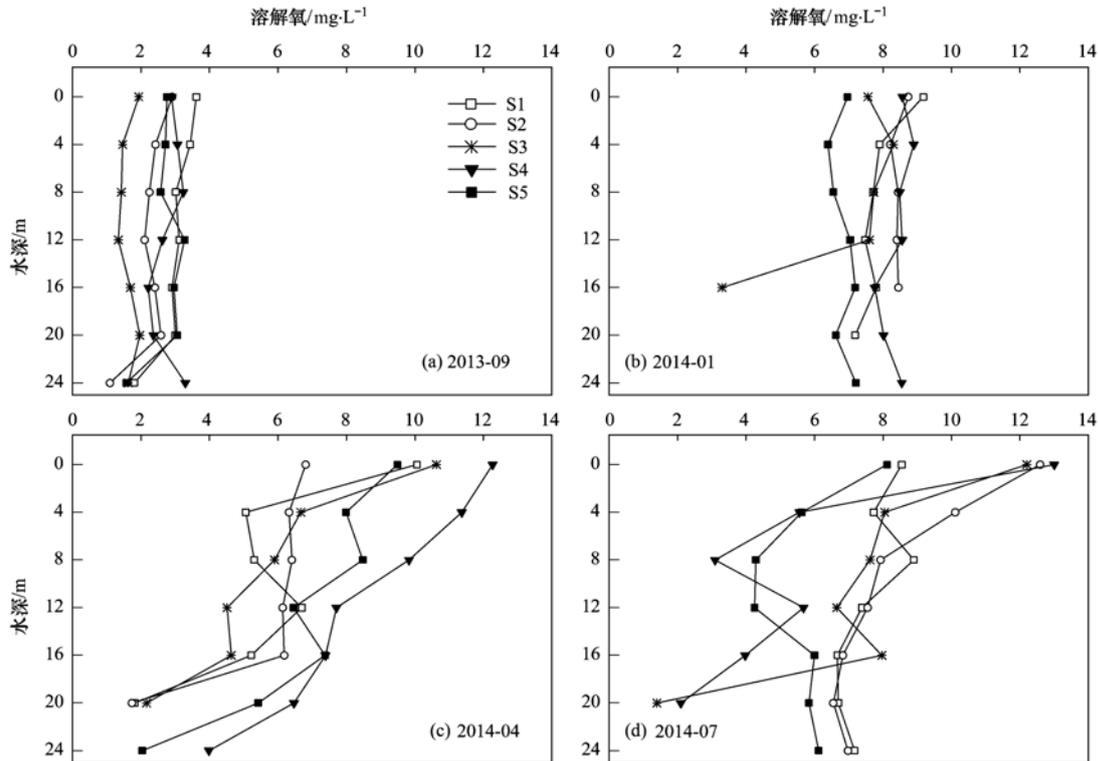


图 12 长寿湖水库水体溶解氧参数

Fig. 12 Dissolved oxygen in Changshou Reservoir

季和冬季不具有相关性。

参考文献:

- [1] Muresan B, Cossa D, Jézéquel D, *et al.* The biogeochemistry of mercury at the sediment-water interface in the Thau lagoon. 1. Partition and speciation [J]. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2007, **72**(3) : 472-484.
- [2] Yan H Y, Feng X B, Shang L H, *et al.* The variations of mercury in sediment profiles from a historically mercury-contaminated reservoir, Guizhou province, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2008, **407**(1) : 497-506.
- [3] Zhu L L, Yan B X, Wang L X, *et al.* Mercury concentration in the muscle of seven fish species from Chagan Lake, Northeast China [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2012, **184**(3) : 1299-1310.
- [4] He T R, Feng X B, Guo Y N, *et al.* Geochemical Cycling of Mercury in the Sediment of Hongfeng Reservoir [J]. *Environmental Science*, 2008, **29**(7) : 1768-1774.
- [5] 闫金龙, 江韬, 高洁, 等. 两江交汇处水体溶解性有机质的吸收和荧光光谱特征: 以渠江-嘉陵江、涪江-嘉陵江为例 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(3) : 869-878.
- [6] 覃蔡清, 王永敏, 彭玉龙, 等. 重庆缙云山降水中不同形态汞的含量及其沉降量 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(3) : 809-816.
- [7] Gao N, Armatas N G, Shanley J B, *et al.* Mass balance assessment for mercury in Lake Champlain [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(1) : 82-89.
- [8] 王雨春, 黄荣贵, 万国江. SWB-1 型便携式湖泊沉积物-界面水取样器的研制 [J]. *地质地球化学*, 1998, (1) : 94-96.
- [9] US EPA. Method 1630; Methyl mercury in water by distillation, aqueous ethylation, purge and trap, and CVAFS [S]. Washington, D. C. : US EPA, 2001.
- [10] USEPA. Method 1631, Revision E; Mercury in water by oxidation, purge and trap, and cold vapor atomic fluorescence spectrometry [S]. Washington, D. C. : U. S. EPA, 2002.
- [11] 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.
- [12] 何天容. 贵州红枫湖汞的生物地球化学循环 [D]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 2007.
- [13] Hines N A, Brezonik P L, Engstrom D R. Sediment and porewater profiles and fluxes of mercury and methylmercury in a small seepage lake in northern Minnesota [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(24) : 6610-6617.
- [14] Gray J E, Hines M E. Biogeochemical mercury methylation influenced by reservoir eutrophication, Salmon Falls Creek Reservoir, Idaho, USA [J]. *Chemical Geology*, 2009, **258**(3-4) : 157-167.
- [15] Hall B D, Louis V L S, Rolhus K R, *et al.* Impacts of reservoir creation on the biogeochemical cycling of methyl mercury and total mercury in boreal upland forests [J]. *Ecosystems*, 2005, **8**(3) : 248-266.
- [16] Wang S F, Zhang M M, Li B, *et al.* Comparison of mercury speciation and distribution in the water column and sediments

- between the algal type zone and the macrophytic type zone in a hypereutrophic lake (Dianchi Lake) in Southwestern China[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **417-418**: 204-213.
- [17] Feng X B, Jiang H M, Qiu G L, *et al.* Geochemical processes of mercury in Wujiangdu and Dongfeng reservoirs, Guizhou, China[J]. *Environmental Pollution*, 2009, **157**(11): 2970-2984.
- [18] Feng X, Bai W, Shang L, *et al.* Mercury speciation and distribution in Aha Reservoir which was contaminated by coal mining activities in Guiyang, Guizhou, China [J]. *Applied Geochemistry*, 2011, **26**(2): 213-221.
- [19] 罗真富, 谭德军, 谢洪斌, 等. 重庆长寿湖周边地区土壤重金属污染评价[J]. *湖北农业科学*, 2012, **51**(1): 30-34.
- [20] Feng X B, Bai W Y, Shang L H, *et al.* Mercury speciation and distribution in Aha Reservoir which was contaminated by coal mining activities in Guiyang, Guizhou, China [J]. *Applied Geochemistry*, 2011, **26**(2): 213-221.
- [21] He T R, Feng X B, Guo Y N, *et al.* The impact of eutrophication on the biogeochemical cycling of mercury species in a reservoir: A case study from Hongfeng Reservoir, Guizhou, China[J]. *Environment Pollution*, 2008, **154**(1): 56-67.
- [22] Watras C J, Morrison K A, Host J S, *et al.* Concentration of mercury species in relationship to other site-specific factors in the surface waters of northern Wisconsin lakes[J]. *Limnology and Oceanography*, 1995, **40**(3): 556-572.
- [23] Meli M. Mercury in lakes and rivers[A]. In: Sigel A, Sigel H (Eds.). *Mercury and its Effect on Environment and Biology* [M]. New York: Marcel Dekker Inc, 1997.
- [24] Todorova S G, Driscoll C T, Steven W E, *et al.* Changes in the long-term supply of mercury species to the upper mixed waters of a recovering lake [J]. *Environmental Pollution*, 2014, **185**: 314-321.
- [25] 吉芳英, 王图锦, 胡学斌, 等. 三峡库区消落区水体-沉积物重金属迁移转化特征[J]. *环境科学*, 2009, **30**(12): 3481-3487.
- [26] Barkay T, Gillman M, Turner R R. Effects of dissolved organic carbon and salinity on bioavailability of mercury [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1997, **63**(11): 1267-1271.
- [27] 王娅, 赵铮, 木志坚, 等. 三峡库区典型农田小流域水体汞的时空分布特征[J]. *环境科学*, 2014, **35**(11): 4095-4102.
- [28] Moingt M, Lucotte M, Paquet S, *et al.* Deciphering the impact of land-uses on terrestrial organic matter and mercury inputs to large boreal lakes of central Québec using lignin biomarkers [J]. *Applied Geochemistry*, 2014, **41**: 34-48.
- [29] Marvin-DiPasquale M, Agee J L, Microbial mercury cycling in sediments of the San Francisco Bay-Delta[J]. *Estuaries*, 2003, **26**(6): 1517-1528.
- [30] 李昆, 王玲, 李兆华, 等. 丰水期洪湖水水质空间变异特征及驱动力分析 [J]. *环境科学*, 2015, **36**(4): 1285-1292.
- [31] 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.
- [32] Cain A, Morgan J T, Brooks N. Mercury policy in the Great Lakes states: past successes and future opportunities [J]. *Ecotoxicology*, 2011, **20**(7): 1500-1511.

CONTENTS

Source Contribution Analysis of the Fine Particles in Shanghai During a Heavy Haze Episode in December, 2013 Based on the Particulate Matter Source Apportionment Technology	LI Li, AN Jing-yu, YAN Ru-sha (3543)
Transformation Mechanism and Sources of Secondary Inorganic Components in PM _{2.5} at an Agriculture Site (Quzhou) in the North China Plain in Summer	CHEN Shi-yi, ZENG Li-min, DONG Hua-bin, <i>et al.</i> (3554)
Pollution Level and Sources of Organic Phosphorus Esters in Airborne PM _{2.5} in Chengdu City	YIN Hong-ling, LI Shi-ping, YE Zhi-xiang, <i>et al.</i> (3566)
Simulation Study of the Emission of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Sugar Alcohols from Biomass Burning	HUANG Shuai, HUANG Xin-yi, WU Shui-ping, <i>et al.</i> (3573)
Characteristics and Parameterization for Atmospheric Extinction Coefficient in Beijing	CHEN Yi-na, ZHAO Pu-sheng, HE Di, <i>et al.</i> (3582)
Photocatalytic Degradation of Gaseous Toluene by a Photo-Fenton Reaction	ZHENG Si-can, CHEN Tian-hu, LIU Hai-bo, <i>et al.</i> (3590)
Emission of PCDD/Fs from Crematories and Its Influencing Factors	YIN Wen-hua, YU Xiao-wei, HAN Jing-lei, <i>et al.</i> (3596)
Odor Emission Characteristics from Biochemical Treatment Facilities of Kitchen Waste in China	ZHANG Yan, WANG Yuan-gang, LU Zhi-qiang, <i>et al.</i> (3603)
Temporal and Spatial Characteristics of Lake Taihu Surface Albedo and Its Impact Factors	CAO Chang, LI Xu-hui, ZHANG Mi, <i>et al.</i> (3611)
Remote Sensing Inversion of Diffuse Attenuation Coefficient in Lake Taihu Based on the GOCI Images	WANG Shan-shan, LI Yun-mei, WANG Qiao, <i>et al.</i> (3620)
Porewater Dissolved Methane in <i>Cyperus malaccensis</i> Marshes Along Salinity Gradient in the Minjiang River Estuary	YANG Ping, ZHANG Zi-chuan, DU Wei-ning, <i>et al.</i> (3633)
Stable Isotopes Characters of Soil Water Movement in Shijiazhuang City	CHEN Tong-tong, CHEN Hui, HAN Lu, <i>et al.</i> (3641)
Seasonal Variations in Vertical Profile of Hg Species and the Influential Factors in Changshou Reservoir	BAI Wei-yang, ZHANG Cheng, TANG Zhen-ya, <i>et al.</i> (3649)
Nutrient Characteristics and Nitrogen Forms of Rhizosphere Soils Under Four Typical Plants in the Littoral Zone of TGR	WANG Xiao-feng, YUAN Xing-zhong, LIU Hong, <i>et al.</i> (3662)
Exchange Fluxes and Coupling Relationship of Dissolved Inorganic Carbon and Dissolved Organic Carbon Across the Water-Sediment Interface in Lakes	WANG Wei-ying, LÜ Chang-wei, HE Jiang, <i>et al.</i> (3674)
Mass Transport in Porous Sediments During a Turbulent Disturbance	LI Shao-long, CHEN Dao-yi (3683)
Characterization of Pollutant Wash-off in the Urban Stormwater	WU Jun-liang, REN Yu-fen, WANG Xue-mei, <i>et al.</i> (3691)
Research of the Stormwater Runoff and Pollution Characteristics in Rural Area of Yuhang District, Hangzhou	DUAN Sheng-hui, ZHAO Yu, SHAN Bao-qing, <i>et al.</i> (3697)
Formation and Variation of Brominated Disinfection By-products in A Combined Ultrafiltration and Reverse Osmosis Process for Seawater Desalination	YANG Zhe, SUN Ying-xue, SHI Na, <i>et al.</i> (3706)
Effect of Natural Organic Matter and Electrolytes on the Aggregation of C ₆₀ Nanoparticles in Aquatic Systems	FANG Hua, JING Jie, YU Jiang-hua, <i>et al.</i> (3715)
Efficiency of Sediment Amendment with Zirconium-Modified Kaolin Clay to Control Phosphorus Release from Sediments in Heavily Polluted Rivers	WANG Hong, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (3720)
Transformation of Nitrogen Nutrients in the Urban Sewage Pipe Network	JIN Peng-kang, JIAO Ding, REN Wu-ang (3730)
Application of Micro-aerobic Hydrolysis Acidification in the Pretreatment of Petrochemical Wastewater	ZHU Chen, WU Chang-yong, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (3738)
Efficacy of A ² /O- <i>MBR</i> Combined Process in Wastewater Treatment and the Characteristics of Membrane Fouling	WANG Xu-dong, MA Ya-bin, WANG Lei, <i>et al.</i> (3743)
Effect of High Ammonium on Nitrogen Removal in an Partial Nitrification-ANAMMOX Process with Reflux System	LI Xiang, CUI Jian-hong, YUAN Yan, <i>et al.</i> (3749)
Reductive Dechlorination of Trichloroethylene by Benzoate-Enriched Anaerobic Cultures	LI Jiang-wei, YANG Xiao-yong, HU An-yi, <i>et al.</i> (3756)
2,4,6-Trichlorophenol Mineralization Promoted by Anaerobic Reductive Dechlorination of Acclimated Sludge and Extracellular Respiration Dechlorination Pathway	SONG Jia-xiu, LI Ling, SHENG Fan-fan, <i>et al.</i> (3764)
Short or Long Term Influence of Phenol on Nitrogen Removal Efficiency of ANAMMOX Sludge	YANG Peng-bing, LI Xiang, HUANG Yong, <i>et al.</i> (3771)
Process Optimization of Aerobic Granular Sludge Continuous-Flow System for the Treatment of Low COD/N Ratio Sewage	LU Lei, XIN Xin, LU Hang, <i>et al.</i> (3778)
Long-Term Inhibition of FNA on Aerobic Phosphate Uptake and Variation of Phosphorus Uptake Properties of the Sludge	MA Juan, LI Lu, YU Xiao-jun, <i>et al.</i> (3786)
Performance and Factors Analysis of Sludge Dewatering in Different Wastewater Treatment Processes	LIU Ji-bao, LI Ya-ming, LÜ Jian, <i>et al.</i> (3794)
Effect of Residual Hydrogen Peroxide on Hydrolysis Acidification of Sludge Pretreated by Microwave -H ₂ O ₂ -Alkaline Process	JIA Rui-lai, LIU Ji-bao, WEI Yuan-song, <i>et al.</i> (3801)
Vertical Distribution Characteristics of Typical Forest Soil Organic Nitrogen in Dawei Mountain	DING Xian-qing, MA Hui-jing, ZHU Xiao-long, <i>et al.</i> (3809)
Effects of Different Land Uses on Soil Active Organic Carbon and Nitrogen Fractions in Jinyun Mountain	QI Xin, JIANG Chang-sheng, HAO Qing-ju, <i>et al.</i> (3816)
Control of Soil Nutrient Loss of Typical Reforestation Patterns Along the Three Gorges Reservoir Area	WU Dong, HUANG Zhi-lin, XIAO Wen-fa, <i>et al.</i> (3825)
Effects of Slope Position and Soil Horizon on Soil Microbial Biomass and Abundance in Karst Primary Forest of Southwest China	FENG Shu-zhen, SU Yi-rong, ZHANG Wei, <i>et al.</i> (3832)
Effects of Different Plantation Type on the Abundance and Diversity of Soil Microbes in Subtropical Red Soils	SHEN Bing-jie, ZHU Zhen-ke, YUAN Hong-zhao, <i>et al.</i> (3839)
Accumulation of Mercury in Soil-maize System of Non-ferrous Metals Smelting Area and Its Related Risk Assessment	Ji Xiao-feng, ZHENG Na, WANG Yang, <i>et al.</i> (3845)
Effects of Different Modifier Concentrations on Lead-Zinc Tolerance, Subcellular Distribution and Chemical Forms for Four Kinds of Woody Plants	CHEN Yong-hua, ZHANG Fu-yun, WU Xiao-fu, <i>et al.</i> (3852)
Isolation, Purification and Identification of Antialgal Activity Substances of Ethyl Acetate Extracts from the Submerged Macrophytes <i>Potamogeton crispus</i>	SUN Ying-ying, SU Zhen-xia, PU Yin-fang, <i>et al.</i> (3860)
Distribution Characteristics and Potential Risk of CBs in Aquatic Organisms from Typical Epidemic Areas of Schistosomiasis Prevalence	LI Kun, ZHAO Gao-feng, ZHOU Huai-dong, <i>et al.</i> (3866)
Application of Whole-cell Biosensor ADP1_pWHlux for Acute Toxicity Detection in Water Environment	TANG Hui, SONG Yi-zhi, JIANG Bo, <i>et al.</i> (3872)
Application of Rainbow Trout CYP1 Gene Expression Patterns in Gill and Liver for Haihe River Bio-monitoring	GAO Kai, YAN Pei, TAN Cui-ling, <i>et al.</i> (3878)
Toxic Effect of Nano-ZnO in Liver of Zebrafish	LIU Lin, ZHAO Qun-fen, JIN Kai-xing, <i>et al.</i> (3884)
Acute Toxicity of <i>Coptis chinensis</i> Rhizome Extracts to <i>Daphnia carinata</i>	CHEN Ya-nan, YUAN Ling (3892)
Adsorption-desorption Characteristics of Fermented Rice Husk for Ferrous and Sulfur Ions	XIE Xiao-mei, LIAO Min, HUA Jia-yuan, <i>et al.</i> (3896)
Application of Stir Bar Sorptive Extraction and Gas Chromatograph Mass Spectrometer to the Phthalic Acid Esters Analysis in Seawater	GAO Chen-chen, LI Feng-min, LU Lun, <i>et al.</i> (3906)
Experimental Conditions and Reliability Analysis of Results of COD Components	LI Zhi-hua, ZHANG Yin, HAN Xing, <i>et al.</i> (3913)
Method for Simultaneous Determination of 11 Veterinary Antibiotics in Piggery Wastewater and Sludge and Its Application in Biological Treatment	DING Jia-li, LIU Rui, ZHENG Wei, <i>et al.</i> (3918)
Research Progress in Technology of Using Soil Micro-organisms to Generate Electricity and Its Potential Applications	DENG Huan, XUE Hong-jing, JIANG Yun-bin, <i>et al.</i> (3926)

《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 刘 毅 汤鸿霄 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)

2015年10月15日 第36卷 第10期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 10 Oct. 15, 2015

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. sciencecp. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencecp. 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: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行人