

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第4期

Vol.39 No.4

2018

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

京津冀地区钢铁行业污染物排放清单及对 PM _{2.5} 影响	段文娇, 郎建全, 程水源, 贾佳, 王晓琦 (1445)
京津冀内陆平原区 PM _{2.5} 浓度时空变化定量模拟	郝静, 孙成, 郭兴宇, 王卫, 刘方田, 党海燕 (1455)
成都市冬季相对湿度对颗粒物浓度和大气能见度的影响	刘凡, 谭钦文, 江霞, 蒋文举, 宋丹林 (1466)
华山地区 PM _{2.5} 中无机离子垂直分布特征	曹聪, 王格慧, 吴灿, 李建军, 刘浪, 李瑾, 余兴 (1473)
烟花爆竹集中燃放的大气细颗粒物 (PM _{2.5}) 成分图谱	谢瑞加, 侯红霞, 陈永山 (1484)
长三角地区中小燃煤锅炉 PM _{2.5} 成分谱特征	徐健, 黄成, 李莉, 陈勇航, 楼晟荣, 乔利平, 王鸿宇 (1493)
民用燃煤排放分级颗粒物中重金属排放因子	严沁, 孔少飞, 刘海彪, 王伟, 吴剑, 郑明明, 郑淑容, 杨国威, 吴方琪 (1502)
冬、春季青岛大气气溶胶中乙二酸的分布特征及影响因素	张帅, 石金辉, 姚小红, 高会旺 (1512)
青岛大气降水中微量元素的浓度及溶解度	李茜, 石金辉, 李鹏志, 姚小红, 高会旺 (1520)
辽东湾大气中多环芳烃的含量组成及气粒分配	张玉凤, 宋永刚, 田金, 赵海勃, 杨爽, 吴金浩 (1527)
典型地区大气新型卤代阻燃剂污染特征、来源分析及人体暴露	李琦路, 杨孔, 李军, 张干 (1537)
苏州工业园区室内外颗粒物中多溴联苯醚污染特征及人体暴露水平	王俊霞, 顾海东, 张占恩, 钱飞跃 (1544)
上海市大气污染对感冒疾病相对危险度的影响	杨丝絮, 马玉霞, 周建丁, 周骥 (1552)
城镇化河流溶解性有机质的荧光特性与水质相关性: 以宁波市北仑区芦江为例	曹昌丽, 梁梦琦, 何桂英, 纵亚男, 唐剑锋 (1560)
艾比湖区域景观格局与河流水质关系探讨	曹灿, 张飞, 阿依尼格·亚力坤, 朱世丹, 郭苗, 阿丽米热·塔力甫江, Kung Hsiangte (1568)
三峡澎溪河水华期间水体 CH ₄ 浓度及其通量变化特征初探	秦宇, 张渝阳, 李哲, 马健荣 (1578)
漓江段地表水体旱季硝酸盐动态变化特征及其来源	苗迎, 章程, 肖琼, 赵海娟, 李成习 (1589)
柳江流域饮用水源地重金属污染与健康风险评价	张清华, 韦永著, 曹建华, 于爽 (1598)
黄柏河流域梯级水库沉积物磷形态特征及磷释放通量分析	刘佳, 雷丹, 李琼, 王亮, 张平, 肖尚斌 (1608)
白洋淀典型持久性有机污染物污染特征与风险评估	高秋生, 焦立新, 杨柳, 田自强, 杨苏文, 安月霞, 贾海斌, 崔志丹 (1616)
典型有机氯农药在珠三角地区多介质环境中的归趋模拟	高梓闻, 徐月, 亦如瀚 (1628)
河道水旁路处理中试工艺中 PPCPs 的去除效果及机制	李力, 朱楦, 白瑶, 赵健, 曹之淇, 郭泓利, 李凌云, 左剑思 (1637)
蔡普生在氯消毒过程中的去除、转化与风险评价	樊鑫鑫, 杜尔登, 李佳琦, 赵丽丽, 王聿琳, 彭明国 (1645)
真空紫外/氯处理饮用水典型致嗅物质	孙昕, 张焱, 史路肖, 陈笑涵, 唐晓 (1654)
热活化过硫酸盐降解三氯生	蒋梦迪, 张清越, 季跃飞, 陆鸢鹤 (1661)
水体模拟颗粒物对四环素的吸附特性及基本规律	徐龙凤, 魏群山, 吕强, 唐立朋, 刘亚男, 柳建设 (1668)
海水优化 ANAMMOX 包埋固定化及其处理含海水污水的脱氮性能	单晓静, 于德爽, 李津, 陈光辉, 冯莉, 吕廷廷, 邵青 (1677)
外源甜菜碱投加增强高盐废水厌氧氨氧化脱氮性能	于德爽, 吴国栋, 李津, 周同, 王晓静 (1688)
硝化污泥富集及其强化高氨氮冲击的中试研究	盛晓琳, 崔灿灿, 王家德, 刘锐, 徐峰, 陈吕军 (1697)
分段进水对改良 A ² /O-BAF 双污泥系统反硝化除磷脱氮的影响	南彦斌, 彭永臻, 曾立云, 赵智超, 刘宏, 李慧, 陈永志 (1704)
不同温度下应用比值控制实现连续流好氧颗粒污泥短程硝化	梁东博, 卞伟, 阚睿哲, 王文啸, 赵青, 孙艺齐, 李军 (1713)
智能化曝气控制 A/O 工艺活性污泥特性演化对内源反硝化脱氮的作用机制	徐旻昶, 胡湛波, 张穗生, 李昊航 (1720)
温度对一体式厌氧流化床膜生物反应器运行效能及微生物群落结构的影响	李玥, 胡奇, 高文 (1731)
污泥臭原位置量工艺中抗生素的去除	汪鲁, 黄伟伟, 李彦刚, 强志民 (1739)
零价铁对污泥厌氧消化过程中四环素抗性基因水平转移的作用影响	杨帆, 徐雯丽, 钱雅洁, 刘振鸿, 薛罡, 高品 (1748)
环境因子对全自养脱氮颗粒污泥功能菌协同效应的影响	陈希, 钱飞跃, 王建芳, 高军军, 沈耀良, 贾珣 (1756)
后置固相反硝化滤池工艺沿程微生物特性	张千, 吉芳英, 徐璇 (1763)
复合菌株 YH01 + YH02 强化 SBR 好氧反硝化脱氮及菌群结构分析	陈海升, 曹刚, 张迪, 黄郑郑, 莫测辉 (1773)
氮磷失衡下膨胀污泥性能及膨胀菌群落结构变化	贺雪濛, 丁丽丽, 张璐璐, 顾卓江, 任洪强 (1782)
1 株铜绿假单胞菌对砷的降解特性及代谢途径	李想, 张雪英, 周俊, 宋军, 王建刚, 雍晓雨, 贾红华 (1794)
铜尾矿库坝面土壤微生物群落动态的驱动因子	李磊, 景炬辉, 刘晋仙, 柴宝峰 (1804)
垦殖对桂林会仙喀斯特湿地土壤养分与微生物活性的影响	黄科朝, 沈育伊, 徐广平, 黄玉清, 张德楠, 孙英杰, 李艳琼, 何文, 周龙武 (1813)
黄土丘陵区退耕还林还草对土壤细菌群落结构的影响	陈孟立, 曾全超, 黄懿梅, 倪银霞 (1824)
河岸带表层土壤的铁氨氧化 (Feammox) 脱氮机制的探究	丁帮琛, 李正魁, 朱鸿杰, 陈湜, 覃云斌, 杨建华, 胡优优 (1833)
藏猪扰动作用下的高寒草甸土壤退化特征及微生物群落结构变化	展鹏飞, 肖德荣, 闫鹏飞, 刘振亚, 马金成, 陈志明, 格茸, 田伟, 王行 (1840)
深圳湾典型红树植物根表铁膜及其重金属富集特征	沈小雪, 李瑞利, 柴民伟, 邱国玉 (1851)
香港周边海域野生鱼体内 DDTs 和 PCBs 的含量分布和食用风险评估	苏杨, 鲍恋君, 曾永平 (1861)
偏远高山湿地土壤中 PAHs 污染特征: 以神农架大九湖为例	胡天鹏, 邢新丽, 柯艳萍, 毛瑶, 黎荧, 郑煌, 喻月, 张家泉, 祁士华 (1872)
西南地区典型森林水库土壤和沉积物汞的迁移转化特征	孙涛, 马明, 王永敏, 安思危, 王定勇 (1880)
广西西江流域土壤镉含量特征及风险评估	宋波, 杨子杰, 张云霞, 王佛鹏, 周浪, 李黎, 钟雪梅 (1888)
长期施肥对旱地红壤及作物中砷累积的影响	张蓉, 余光辉, 李亚青 (1901)
三元土壤调理剂对田间水稻镉累积转运的影响	辜娇峰, 周航, 贾润语, 王倩倩, 李虹呈, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (1910)
稻田土壤性质与水稻镉含量的定量关系	王梦梦, 何梦媛, 苏德纯 (1918)
钙基膨润土辅助对堆肥及土壤 Cu、Zn 形态转化和白菜吸收的影响	赵军超, 王权, 任秀娜, 李荣华, Mukesh Kumar Awasthi, Altaf Hussain Lahori, 张增强 (1926)
外源碳和氮输入对降水变化下土壤呼吸的短期影响	贺云龙, 齐玉春, 彭琴, 董云社, 郭树芳, 闫钟清, 李兆林, 王丽芹 (1934)
模拟降水量减少对大豆-冬小麦轮作农田土壤呼吸的影响	王朝辉, 陈书涛, 孙鹭, 胡正华 (1943)
紫色土丘陵区农田源头沟渠一氧化氮排放的季节差异及影响因素	田琳琳, 任光前, 朱波 (1952)
季节非对称升温对喀斯特土壤 CO ₂ 释放的影响	唐国勇, 张春华, 刘方炎, 李昆, 马艳 (1962)
《环境科学》征订启事 (1472) 《环境科学》征稿简则 (1511) 信息 (1755, 1839, 1925)	

西南地区典型森林水库土壤和沉积物汞的迁移转化特征

孙涛¹, 马明¹, 王永敏¹, 安思危¹, 王定勇^{1,2,3*}

(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: 以西南地区典型拦蓄筑坝形成的森林水库重庆四面山大洪海为研究对象, 在湖边位置将从未被水淹没区域的土壤(未淹水区土壤)和沉积物进行原位置换实验, 并对水库水体以及土壤总汞(THg)和总甲基汞(TMeHg)的变化进行了为期一年的监测研究. 结果表明, 四面山大洪海水库未受汞污染的影响, 其水体 THg[$(1.89 \pm 0.72) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$]和 TMeHg[$(0.13 \pm 0.04) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$]的质量浓度均值远低于我国环境质量标准中 I 类水质标准和国内外其他一些水库或湖泊, 未淹水区土壤和沉积物中 THg 和 TMeHg 的含量也相应低于其他一些水库或湖泊; 水体和土壤中 THg 和 TMeHg 的含量具有一定的季节性变化(暖季 > 冷季), 其中 TMeHg 的季节性变化更明显, 主要影响因素为气候和降雨量的变化; 沉积物中 THg 和 TMeHg 的含量相对未淹水区土壤均有明显的升高, 表明沉积物是水库汞储存的重要场所, 同时也使沉积物成为水库汞(尤其是甲基汞)污染的潜在源; 原位置换后的土柱 THg 和 TMeHg 含量在经过较短的时间即能与周围土壤达到平衡状态, 特别是表层土壤, 说明水库消落带能够加快汞的地球化学循环过程.

关键词: 汞; 未淹水土壤; 沉积物; 消落带; 森林水库

中图分类号: X171.5 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)04-1880-08 DOI: 10.13227/j.hj.kx.201709051

Migration and Transformation of Mercury in Unsubmerged Soil and Sediment at One Typical Forest Reservoir in Southwest China

SUN Tao¹, MA Ming¹, WANG Yong-min¹, AN Si-wei¹, WANG Ding-yong^{1,2,3*}

(1. College of Resources 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: Mercury (Hg) has been regarded as a global pollutant due to its volatility and toxicity. The sediment in the reservoirs or lakes is an important compartment for Hg methylation and it has also been considered as a sensitive area of Hg. In this study, a typical forest reservoir surrounding by evergreen broad-leaved forest in Chongqing of southwest China was selected to investigate the migration and transformation of Hg in unsubmerged soil and sediment. The unsubmerged soil and sediment were also replaced to each other to observe the dynamics of THg and TMeHg concentrations in equilibrium processes. The results were as follows: ① The THg and TMeHg mean concentrations in Dahonghai reservoir water were $(1.89 \pm 0.72) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ and $(0.13 \pm 0.04) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, respectively, which were lower than the first class water quality standards in environmental quality standard of China and other reservoirs or lakes, implying that this study area did not affect by Hg pollution. Meanwhile, the THg and TMeHg mean concentrations in unsubmerged soil and sediment were also lower than those in other reservoirs or lakes. ② Seasonal variations of THg and TMeHg concentrations in reservoir water and soil were both observed higher in warm seasons, and more obvious variations occurred for TMeHg which probably influenced by meteorological parameters, such as, temperature and rainfall. ③ Compared with unsubmerged soil, the THg and TMeHg mean concentrations in sediment were both elevated, suggesting the sediment was an important sink of Hg. While, the sediment would be a source of Hg (especially TMeHg) with a high THg and TMeHg level. ④ The THg and TMeHg mean concentrations in unsubmerged soil and sediment after situ replacement were equilibrated with ambient soil in a short time (one or two months), implying the hydro-fluctuation belt of reservoir promoting the geochemical cycle of Hg.

Key words: mercury; unsubmerged soil; sediment; hydro-fluctuation belt; forest reservoir

20 世纪 50 年代发生在日本熊本县的水俣病事件引起了人们对汞污染的关注与研究. 随着汞污染研究的广泛开展, 人们逐渐认识到汞是一种具有全球污染性的有毒重金属, 尤其是甲基汞毒性更强^[1,2]. 近几十年的研究发现, 水环境中的无机汞可以通过生物以及非生物的方式转化为甲基汞, 并通过食物链向高营养级传递放大, 最终可危害到人

体的健康^[3,4]; 而进一步的研究发现, 水体中甲基汞主要来自于微生物(如硫酸盐还原菌和铁还原

收稿日期: 2017-09-06; 修订日期: 2017-10-10

基金项目: 国家重点基础研究发展规划(973)项目(2013CB430000); 中央高校基本科研业务费专项(XDJK2017D202); 国家自然科学基金项目(41671469)

作者简介: 孙涛(1989~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为环境污染化学, E-mail: suntao81589@126.com

* 通信作者, E-mail: dywang@swu.edu.cn

菌)的甲基化过程^[5~7],且该过程主要发生在水体沉积物的表层^[5,8].同时研究人员也发现筑坝拦截形成的水库有利于汞的活化、甲基化和生物富集效应^[9,10],这种生态系统已被认为是典型的“汞敏感生态系统”^[11].目前,研究人员在对美国和加拿大不同类型湖泊以及我国长江流域、乌江流域、红枫湖等的研究中也都观察到沉积物表层有汞的富集趋势^[12~16].

筑坝拦截形成的水库不但能改变水量和水文过程,也会对河流的生物地球化学、生态环境等产生深远的影响^[17].水库蓄水后,势必会淹没一部分土壤和植物,进而影响水库汞的甲基化;同时水库周期性的蓄水也会形成大面积的消落带,消落带周期性的淹没/裸露以及植物生长/腐解能够对消落带土壤汞的地球化学循环产生一定的影响;所以研究水库土壤在淹没以及裸露后汞的迁移转化特征具有十分重要的意义.

西南地区是我国主要的森林分布地区之一,占全国森林总面积的29.17%^[18],也是我国主要的水源涵养地之一.西南林区分布有众多的森林湖泊和水库,而林区这种特殊的环境(如大量枯枝落叶的存在)易造成具有特殊汞迁移转化特征的水生生态系统.然而,目前我国对森林水库在淹水/裸露后

土壤和沉积物汞的迁移转化特征的研究还鲜见报道,本文选取西南地区分布有典型性的常绿阔叶林的重庆市江津区四面山大洪海水库为研究对象,探索水库未淹水区土壤和沉积物经过原位置换过后汞的形态分布和甲基化特征,通过深入了解森林水库土壤和沉积物中汞的迁移转化特征,以期为深入研究随着水库周期性蓄水消落带汞的迁移转化在水库汞的地球化学循环中的重要作用提供科学的数据支撑.

1 材料与方法

1.1 研究区概况

研究区位于长江上游的重庆市江津区四面山国家级风景名胜区内(E106°17′43″~106°30′43″, N28°16′27″~28°31′37″),如图1所示.四面山国家级风景名胜区距离重庆市主城约200 km,景区内现存有地球同纬度保存最完好的亚热带常绿原始森林,森林覆盖率达95.4%^[19].该林区属于中亚热带季风湿润气候,多年平均降水量为1 250 mm,且多集中于6~10月,年均气温13.7℃,8月达到最高温(多年均值31.5℃),1月出现年最低温(多年均值-5.5℃).实验期间该研究区日气温和月降雨量变化趋势如图2所示.

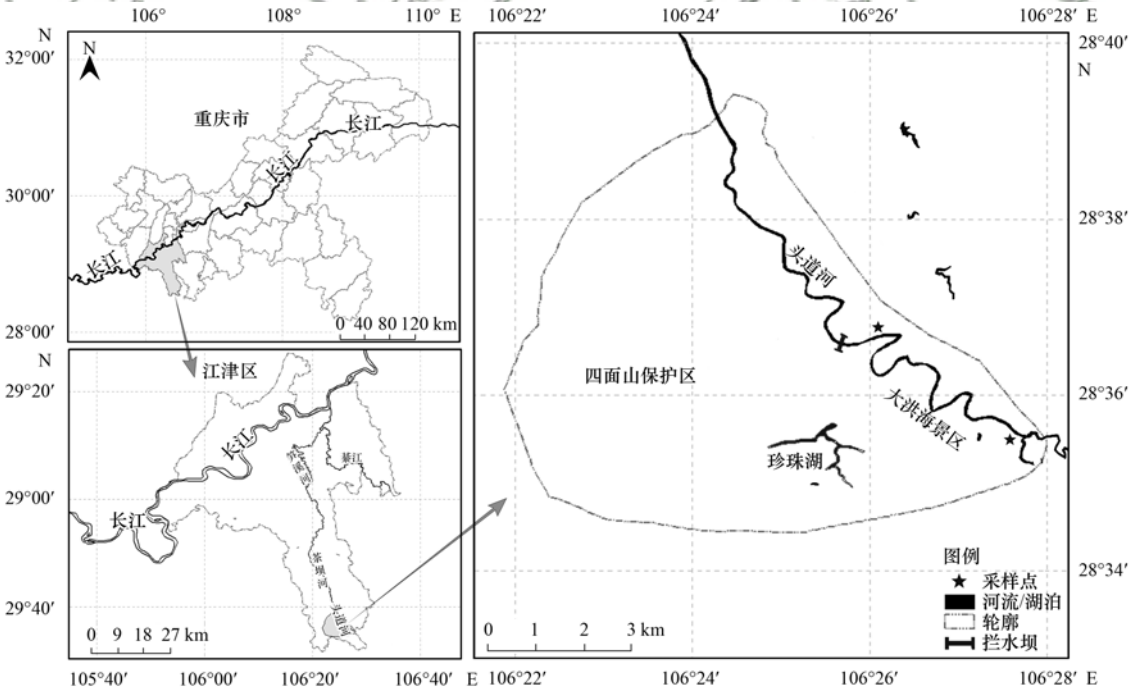


图1 研究区域示意
Fig. 1 Schematic diagram of the study area

1970年在四面山镇红海村筑坝蓄水,头道河被拦截形成了一个森林人工水库,即为现在的大洪海

景区.大洪海全长6 850 m,宽60~200 m之间,最深处可达12 m,蓄水 $3.1 \times 10^6 \text{ m}^3$,大洪海水库水

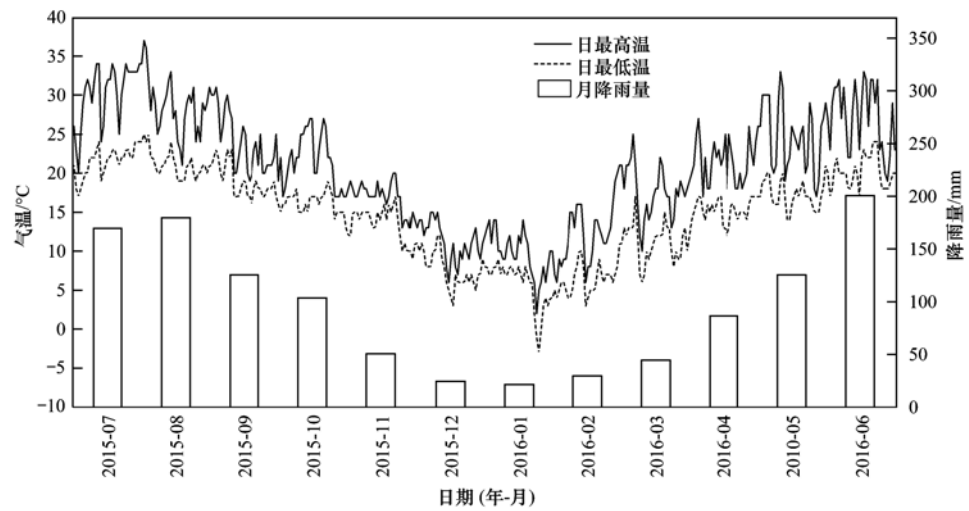


图2 实验期间研究区日气温和月降雨量变化

Fig. 2 Schematic diagram of the air temperature and rainfall during study

体水质参数如表 1 所示. 由于大洪海的拦水坝为固定的混凝土坝顶溢流的溢流坝, 所以大洪海水位年变化较小, 较为适合做水库未淹水区土壤和沉积物原位置换实验.

表 1 大洪海水库水体水质参数统计

Table 1 Water parameters of Dahonghai reservoir

	2015-07	2015-08	2015-09	2015-10	2015-11	2015-12	2016-01	2016-02	2016-03	2016-04	2016-05	2016-06
pH	7.08	7.11	6.88	6.81	6.79	6.85	6.86	6.85	6.88	6.78	6.91	7.02
DO/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	8.35	7.58	8.15	7.26	7.04	6.52	6.33	5.84	5.24	6.34	7.42	8.75
DOC/ $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	4.02	2.42	2.89	2.43	2.59	5.13	3.16	2.55	2.90	3.11	3.42	3.82

1.2 样品采集与测定

1.2.1 水样采集与测定

2015 年 7 月至 2016 年 6 月期间, 每月采集大洪海实验点位置的水样, 水样采集后使用 500 mL 的硼硅酸玻璃瓶盛装, 并保存在 4℃ 保温箱中运送回实验室. 每次采集样品时现场测定水体酸碱度 (pH, 美国 Sartorius 公司 PT-10 便携式 pH 测定仪)、溶解氧 (DO, 美国 YSI 公司 550A 便携式溶解氧仪) 指标. 沉积物间隙水通过将采集到的沉积物在 4℃ 下以 $3\,000\text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 的转速离心并用针式过滤器通过 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ (Nitrocellulose membrane, Merck Millipore) 滤膜得到.

水样运回实验室后, 采用 $0.45\text{ }\mu\text{m}$ 滤膜过滤部分样品用于测定水样溶解性有机碳 (DOC), 同时未过滤样品用来测定 THg 和 TMeHg. 水样总汞和甲基汞的测定分别参照美国环保署颁发的 EPA-1631^[20] (最低检测限 $0.05\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) 和 EPA-1630^[21] (最低检测限 $0.009\text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$) 方法测定.

1.2.2 土样采集与测定

选取 2 个四面山大洪海岸边坡面较小的岸边作为实验点, 如图 1 所示, 在常年不被水淹没的区域

(距离岸边 10 m) 和常年能够被水淹没的沉积物区 (距离岸边 3 m, 水深约 50 cm) 分别采集土壤和沉积物样品并记为 $S_{\text{顶}}$ 和 $S_{\text{底}}$, 然后各挖一个半径为 20 cm 的土柱 (柱高 30 cm), 并将两个土柱进行原始位置置换, 分别将原沉积物区转移到未淹水区高处的土柱标记为 $S_{\text{原底移}}$ 和原未淹水区高处转移到水中沉积物区的土柱标记为 $S_{\text{原顶移}}$. 土样的采集时间同水样的采集时间, 每次采样分别采集未淹水区土壤、沉积物和置换过后土柱的土壤样品并按表层 (0 ~ 10 cm)、深层 (10 ~ 20 cm) 的方式采集. 土样采集后立刻放在 4℃ 保温箱中保存, 然后运送回实验室. 土样运回实验室后, 经过冷冻干燥 (-60°C) 使用玛瑙研钵研磨并过 100 目筛后测定土样总汞 (THg) 和甲基汞 (TMeHg). 土样 THg 采用意大利 Milestone Srl. 公司生产的 DMA-80 直接测汞仪测定, 土样甲基汞的测定采用萃取-乙基化结合气相色谱 (GC)-冷原子荧光法 (CVAFS) 测定^[22].

1.3 质量控制

实验采样过程中所用到的硼硅酸玻璃瓶均需预先经过 30% (体积比) 硝酸浸泡 24 h 后再经过 500℃ 高温 40 min 超净化处理, 然后在超净实验台冷却后

用聚乙烯薄膜袋包裹 3 层. 同时将经过同样处理的 2 瓶装有超纯水的硼硅酸玻璃瓶和采样待用的硼硅酸玻璃瓶放在一起, 作为野外采样空白对照处理. 水样汞参照美国 EPA-1631, 采用金汞齐-冷原子荧光法测定, 相对标准偏差 -8.6%, 检出限为 $0.5 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 萃取-乙基化结合 GC-CVAFS 法测定沉积物及土壤中的甲基汞, 回收率可达 97.8%, 相对标准偏差 -10%, 方法检出限为 $0.6 \text{ pg}\cdot\text{g}^{-1}$. 实验空白值较低, 仅为样品测定值的 1% ~5%, 可忽略不计.

2 结果与讨论

2.1 大洪海水体以及间隙水汞的变化特征

四面山大洪海水体和沉积物间隙水中的 THg

和 TMeHg 的质量浓度统计以及变化如表 2 和图 3 所示. 大洪海水体 THg 和 TMeHg 的质量浓度变化范围分别为 $(1.89 \pm 0.72) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $(0.13 \pm 0.04) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 远低于我国环境质量标准 (GB 3838-2002) [23] 中规定的 I 类地表水汞质量浓度标准 ($50 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$); 与国内外其他水体相比, 大洪海水体 THg 和 TMeHg 的质量浓度与美国的 Spring Lake、加拿大的 Experimental Reservoir、匈牙利的 Balaton Lake 以及我国的黄河小浪底水库相当, 但低于贵州红枫湖、云南滇池以及具有相似背景的三峡库区典型农田小流域和长寿湖水库, 说明四面山大洪海水体未受到明显的人为汞污染的影响, 对下游河流汞负荷的贡献率较低.

表 2 大洪海水库 THg、TMeHg 质量浓度与国内外其他水体比较

Table 2 THg and TMeHg concentrations in the Dahonghai reservoir and other aquatic systems

地名	介绍	水体		间隙水		文献
		THg/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	TMeHg/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	THg/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	TMeHg/ $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$	
Spring Lake, USA	背景值	1.5 ± 0.87	0.1 ± 0.12	10 ~ 22	$0.1 \sim 2.1$	[24]
Experimental Reservoir, Canada	新建水库	$1.1 \sim 6.0$	$0.1 \sim 2.1$			[25]
Balaton Lake, Hungary	旅游景点	$1.4 \sim 6.5$	$0.08 \sim 0.44$			[26]
小浪底水库	筑坝拦蓄	1.72 ± 0.40		23.99 ± 13.61	0.56 ± 0.40	[27]
红枫湖	富营养化	$2.5 \sim 14$	$0.05 \sim 0.92$	10 ~ 50	$0.2 \sim 3.0$	[28]
滇池	曾经汞污染	30 ± 8	0.24 ± 0.07			[29]
农田小流域	三峡库区	13.54 ± 10.55	0.22 ± 0.42	54 ± 16	2.0 ± 0.55	[30]
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	[16]
四面山大洪海	森林水库	1.89 ± 0.72	0.13 ± 0.04	11.02 ± 3.95	1.13 ± 0.50	本研究

间隙水中 THg 和 TMeHg 的质量浓度相对水库水体具有明显的增加, 分别为 $(11.02 \pm 3.95) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $(1.13 \pm 0.50) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 其中间隙水中 TMeHg 的质量浓度相对水库水体增加了 10 倍左右, 说明水库沉积物是甲基汞产生的主要场所并且间隙水中的 TMeHg 有向库水迁移的特征, 很多研究也已证实了这个结论 [6, 15, 24, 25, 29]. 大洪海间隙水中 TMeHg/THg 的比值 (10%) 比小浪底 (2%) 高, 比长寿湖 (18%) 低, 原因可能为小浪底沉积物相较森林水库以及受生活污水和农田面源污染的长寿湖有机质含量低, 沉积物中汞甲基化作用的微生物活性较低; 而大洪海沉积物虽然具有大量的枯枝落叶的降解释放有机质, 但是长寿湖水体有机质含量较大洪海高 (尤其是类蛋白质), 使得微生物有相对充足的可利用碳源 [31].

由图 3 可知, 大洪海水库水体和间隙水中 THg 和 TMeHg 的质量浓度均具有一定的季节性变化规律. 随着 6 月降雨量的增加, 水库水体 THg 和 TMeHg 的质量浓度也随之升高, 间隙水 THg 和

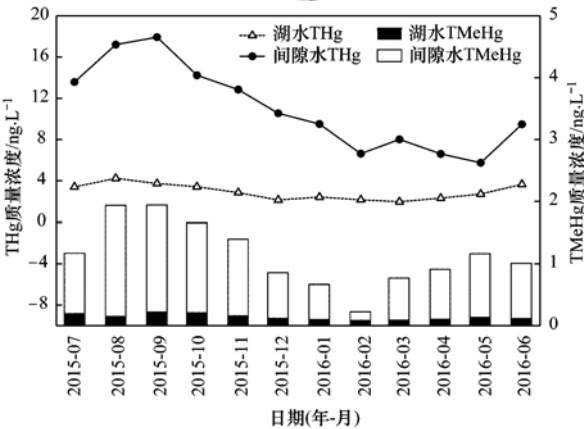


图 3 大洪海水库水和间隙水 THg 和 TMeHg 的变化
Fig. 3 Fluctuates of THg and TMeHg concentrations in Dahonghai reservoir and porewater

TMeHg 在 9 月达到最高值, 这是由于雨季的到来使得更多的地表枯枝落叶以及土壤冲刷到库水中, 进而沉降形成沉积物; 而 8 月和 9 月为该地区气温最高的时间段, 枯枝落叶的降解释放出充足的有机物 [31] 以及汞沉降的增加, 为沉积物层厌氧微生物

的甲基化作用提供了良好的环境.

2.2 未淹水区土壤汞的变化特征

表3统计了大洪海未淹水区土壤和沉积物表层THg和TMeHg的含量. 大洪海未淹水区土壤中THg和TMeHg的含量分别为 $(58.45 \pm 8.78) \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $(0.44 \pm 0.09) \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 其含量高于加拿大Newfoundland地区湖泊, 但是远小于我国乌江渡水库、红枫湖和滇池(表1), 说明四面山大洪海未淹水区土壤并未受到过多的人为汞污染影响, 该区域土壤汞含量接近背景值. 沉积物中THg和TMeHg的含量分别为 $(91.13 \pm 14.05) \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$ 和 $(0.93 \pm 0.19) \text{ ng} \cdot \text{g}^{-1}$, 相对未淹水区, 沉积物中THg和TMeHg的含量均有明显的升高, 这可能是大气干湿沉降和未淹水区土壤中的汞被沉降或冲刷到库水中, 导致大量的汞迁移到库水并沉降在沉积物表层; 而大洪海又处在常绿阔叶林地区, 大量的枯枝落叶也被冲刷到库水中并在沉积物表层分解释放出

有机质和汞, 与此同时沉积物表层高含量的有机质易于络合并固定沉降在沉积物表层的汞^[8, 32~34]; 沉积物表层高含量的有机质以及厌氧环境又为汞甲基化微生物(硫酸盐还原菌和铁还原菌)提供了良好的生存环境^[8, 35], 促使沉积物中TMeHg的含量升高; 另外, 沉积物层TMeHg/THg含量比值(0~10 cm 均值0.93%, 10~20 cm 均值0.81%)高于未淹水区土壤(0~10 cm 均值0.44%, 10~20 cm 均值0.62%), 也印证了沉积物层汞的甲基化效应强于未淹水区. 而分别对比未淹水区土壤和沉积物中THg和TMeHg的含量(图4和图5)发现:除未淹水区TMeHg的含量呈现出表层低于10~20cm外, 其他均表现出表层汞富集的特征. Ma等^[36]的研究指出四面山森林土壤具有表层汞富集的现象, 美国 and 加拿大不同类型湖泊以及我国乌江流域、红枫湖等的研究中也都观察到沉积物表层有汞的富集趋势^[12~15].

表3 大洪海土壤和沉积物THg、TMeHg含量与国内外其他水体比较¹⁾

Table 3 THg and TMeHg concentrations in Dahonghai reservoir soil and sediment and other aquatic systems

地名	介绍	沉积物		文献
		THg/ $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$	TMeHg/ $\text{ng} \cdot \text{g}^{-1}$	
Newfoundland, 加拿大	未污染	39		[32]
乌江渡	筑坝拦蓄	250	0.15~5.9	[37]
红枫湖	富营养化	392 ± 70	3.4 ± 2.5	[15]
滇池	曾经汞污染	290 ± 120	1.2 ± 0.68	[29]
大洪海未淹水区土壤	森林水库	58.45 ± 8.78	0.44 ± 0.09	本研究
大洪海沉积物(0~10 cm)	森林水库	91.13 ± 14.05	0.93 ± 0.19	本研究

1) 表中大洪海未淹水区土壤和沉积物THg和TMeHg的含量统计数据为表层(0~10 cm)

由图4知, 未淹水区土壤中THg和TMeHg的含量均具有一定的季节性变化. 未淹水区表层土中THg和TMeHg的含量在暖季有明显的增加, 但在冷季却出现了下降趋势, 其中THg的含量波动性比TMeHg强. 原因可能为:6月到10月, 四面山降雨量增加, 温度升高, 进而使得伴随着枯枝落叶的降解以及干湿沉降等作用而富集在森林地表的汞的迁移性增强; 然而在降雨量较小的季节, 表层土壤汞易于通过 Hg^0 的形式释放到大气中^[38]; 同时, 裸露表层土没有严格的厌氧环境, 不利于甲基汞的形成.

未淹水区土壤层10~20 cm处土壤中THg的含量季节性变化相对表层土并不明显, 然而TMeHg的含量随着冷暖季的变化却比表层土较为明显, 这是由于深层次土壤汞受降雨等影响较小, 但却具备厌氧环境利于甲基化微生物的生长, 而冷暖季的变化可以影响到土壤层的温度变化进而影响到甲基化微生物的活性, 同时暖季地表径流的增加也会为甲基化微生物提供更多的碳源以及硫酸盐等. 另外, 未淹

水区土壤层10~20 cm处土壤的TMeHg/THg含量比值也随着冷暖季的交替而产生了规律性的变化, 如TMeHg/THg含量比值在9月达到最高值(1.64%), 而2月达到最低值(1.20%), 这也进一步说明随着冷暖季的变化, 温度、地表径流、枯落物等因素的差异性影响了土壤层中汞的迁移与转化.

由图4(a)和图4(b)可知, 移位到未淹水区后的 $S_{\text{原底移}}$ 土柱表层土中THg和TMeHg的含量在一个月左右的时间即流失到未淹水区原本土壤的含量水平, 并且TMeHg的流失要较THg的流失更快. 沉积物土柱被移位到未淹水区后, 所处的环境条件发生了较大的变化, 失去了厌氧环境, 土壤水分大幅降低, 土温升高, 土壤有机质降解加快等, 导致了表层土壤中汞流失的加快^[38]. 图4(c)和图4(d)所示, 被移位到未淹水区的 $S_{\text{原底移}}$ 土柱10~20 cm处的THg含量在3个月后才和未淹水区土壤同样深度THg的含量达到平衡, 而对于TMeHg则需要2个月左右的时间. 相对于表层土, 10~20 cm处

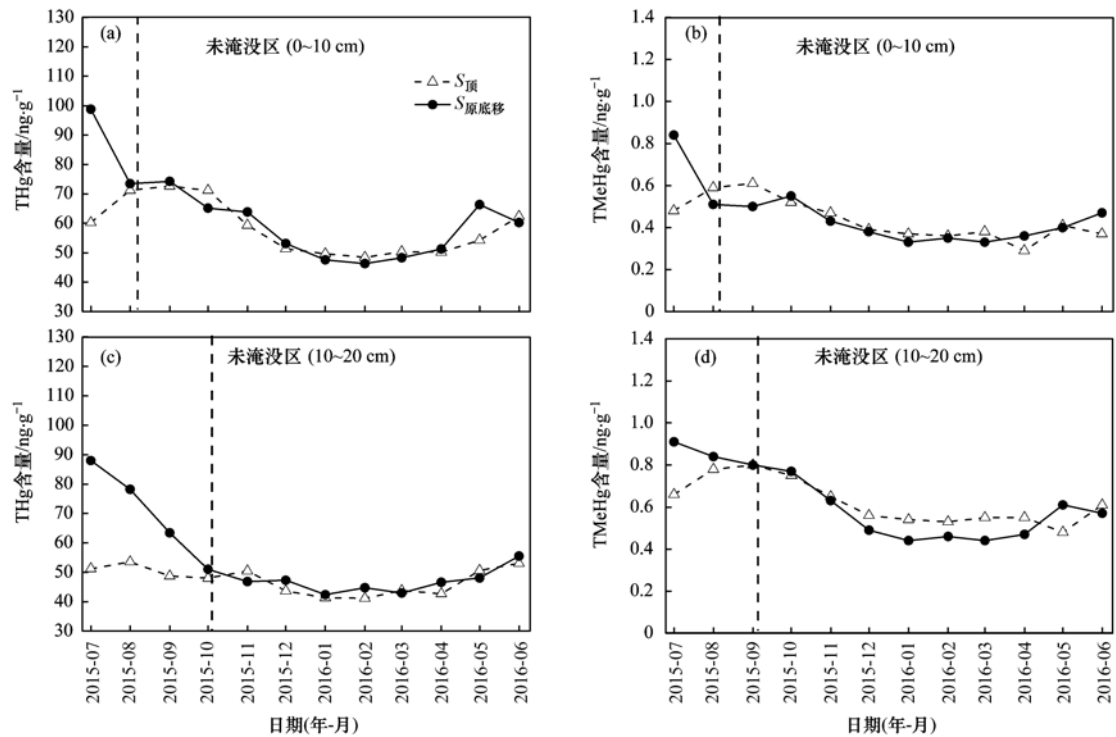


图4 未淹水区土壤 THg 和 TMeHg 的变化

Fig. 4 Fluctuates of THg and TMeHg concentrations in unsubmerged soil

$S_{\text{原底移}}$ 土柱 THg 和 TMeHg 的含量降低到和周围土壤相当水平所需要的时间更久, 这是因为处于更深层的土壤相对表层土所受到的环境变化较小, 如雨水的冲刷、温度的变化、厌氧环境的改变等; 而

TMeHg 相对 THg 所需时间更短, 说明土壤中 TMeHg 的含量更容易受到环境变化的影响.

2.3 沉积物汞的变化特征

沉积物层 THg 和 TMeHg 的含量变化如图 5 所

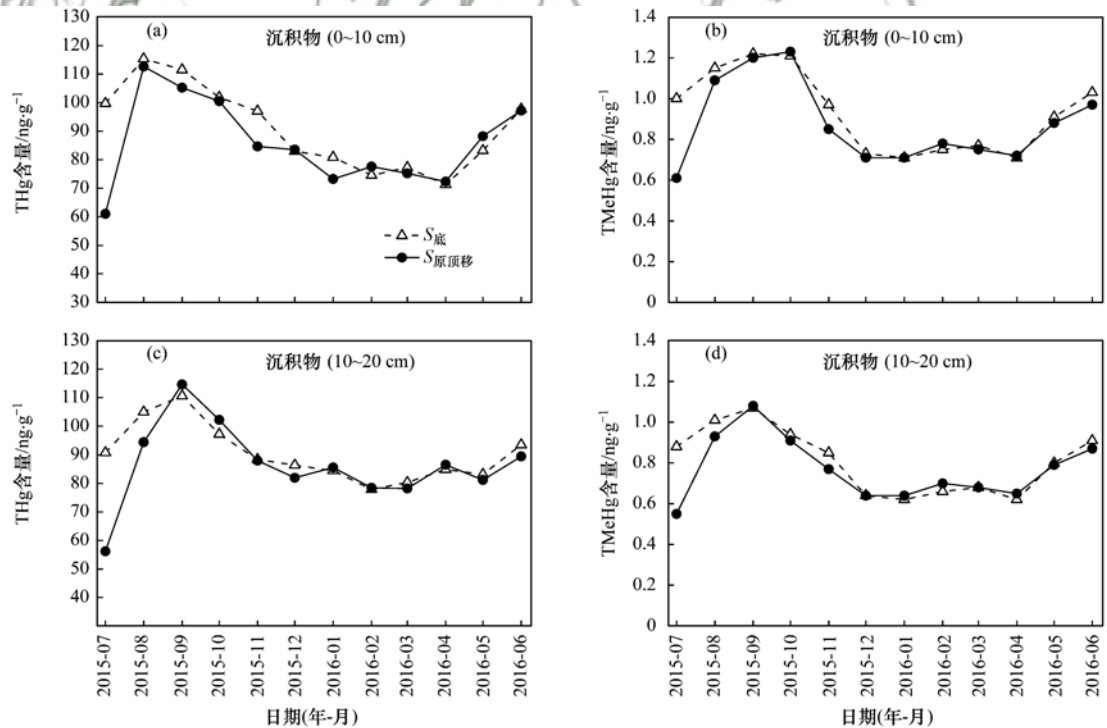


图5 沉积物层 THg 和 TMeHg 的变化

Fig. 5 Fluctuates of THg and TMeHg concentrations in sediment

示. 与未淹水区土壤对比, 沉积物层 THg 和 TMeHg 的含量季节性变化更加明显, 但同样表现出暖季含量偏高而冷季含量偏低的趋势, 这是因为该林区的汞源主要来自大气干湿沉降和植被富集的周围环境的汞随着枯枝落叶降解的再释放^[36], 同时干湿沉降、地表径流、枯枝落叶等又是该森林水库汞含量增加的主要原因, 而降雨量的变化又能影响到这些主要原因, 如降水能够溶解大气中以及沉降到林冠层的汞、较大的降雨也能形成较强的地表径流进而将森林地表汞和枯枝落叶冲刷到森林水库中; 同时, 冷暖季温度的差异也会导致甲基化微生物活性和食物是否充实的不同, 进而导致沉积物层 TMeHg 的含量的变化.

由图 5(a) 和图 5(b) 可知, 被移位到库底沉积物层的 $S_{原顶移}$ 土柱表层土中 THg 和 TMeHg 的含量在一个月左右的时间即升高到沉积物表层 THg 和 TMeHg 的含量水平; 因此同未淹水区土壤置换实验表层土一样, 沉积物置换实验表层也同样表现出在较短的时间即能使移位后的土壤 THg 和 TMeHg 的含量同周围沉积物达到平衡的水平, 原因可能为沉积物表层在实验开始后即已进入该研究区的雨季, 大量的汞被冲刷并沉积到沉积物表层, 另外沉积物表层易受扰动(如水流、水生生物、过往船只等), 而且沉积物中的间隙水又是汞传输的良好介质. 而如图 5(c) 和图 5(d) 所示, 在沉积物层 10~20 cm 深处 $S_{原顶移}$ 土柱中 THg 和 TMeHg 的含量需要 2 个月的时间才能达到周围沉积物中 THg 和 TMeHg 的含量水平, 说明对于沉积物层深层次的置换土壤相对表层需要更久的时间才能使 THg 和 TMeHg 的含量同周围沉积物达到平衡.

3 结论

(1) 四面山大洪海水库水体 THg 和 TMeHg 的质量浓度均值分别为 $(1.89 \pm 0.72) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$ 和 $(0.13 \pm 0.04) \text{ ng} \cdot \text{L}^{-1}$, 其值远低于我国环境质量标准中 I 类水质标准, 也低于国内外其他一些水库和湖泊中 THg 和 TMeHg 的质量浓度, 说明该水库未受到汞污染的影响.

(2) 水库水体和土壤中的 THg 和 TMeHg 的含量具有一定的季节性变化. 气候的变化以及降雨量等因素是影响大洪海水库水体和土壤中汞和甲基汞季节性变化的主要因素, 其中 TMeHg 具有更明显的季节性变化.

(3) 大洪海沉积物中 THg 和 TMeHg 的含量相

对未淹水区土壤中的 THg 和 TMeHg 的含量均有明显的升高, 表明沉积物是水库汞储存的重要场所, 同时也使沉积物成为水库汞污染的潜在源, 尤其是沉积物中的甲基汞; 原位置换后土柱的 THg 和 TMeHg 含量在经过较短的时间即能与周围土壤达到平衡状态, 特别是表层土壤, 说明水库的消落带能够加快汞的地球化学循环过程.

参考文献:

- [1] Yu B, Fu X W, Yin R S, *et al.* Isotopic composition of atmospheric mercury in China: new evidence for sources and transformation processes in air and in vegetation [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50** (17): 9262-9269.
- [2] Ma M, Wang D Y, Du H X, *et al.* Atmospheric mercury deposition and its contribution of the regional atmospheric transport to mercury pollution at a national forest nature reserve, southwest China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015, **22**(24): 20007-20018.
- [3] 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.
- [4] Lindqvist O, Johansson K, Bringmark L, *et al.* Mercury in the Swedish environment — recent research on causes, consequences and corrective methods [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 1991, **55**(1-2): xi-261.
- [5] Compeau G C, Bartha R. Sulfate-reducing bacteria: principal methylators of mercury in anoxic estuarine sediment [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 1985, **50**(2): 498-502.
- [6] Gilmour C C, Henry E A. Mercury methylation in aquatic systems affected by acid deposition [J]. *Environmental Pollution*, 1991, **71**(2-4): 131-169.
- [7] Fleming E J, Mack E E, Green P G, *et al.* Mercury methylation from unexpected sources: molybdate-inhibited freshwater sediments and an iron-reducing bacterium [J]. *Applied and Environmental Microbiology*, 2006, **72**(1): 457-464.
- [8] Regnell O, Elert M, Höglund L O, *et al.* Linking cellulose fiber sediment methyl mercury levels to organic matter decay and major element composition [J]. *Ambio*, 2014, **43**(7): 878-890.
- [9] Brunberg A K, Blomqvist P. Quantification of anthropogenic threats to lakes in a lowland county of central Sweden [J]. *Ambio*, 2001, **30**(3): 127-134.
- [10] Egeland G M, Middaugh J P. Balancing fish consumption benefits with mercury exposure [J]. *Science*, 1997, **278** (5345): 1904-1905.
- [11] Wiener J G, Krabbenhoft D P, Heinz G H, *et al.* Ecotoxicology of mercury [A]. Hoffman D J, Rattner B A, Burton Jr G A, *et al.* (Eds.). *Handbook of Ecotoxicology* [M]. Boca Raton, Florida: Lewis, 2003. 409-463.
- [12] He T R, Lu J L, Yang F, *et al.* Horizontal and vertical variability of mercury species in pore water and sediments in small lakes in Ontario [J]. *Science of the Total Environment*, 2007, **386**(1-3): 53-64.
- [13] Amos H M, Jacob D J, Kocman D, *et al.* Global biogeochemical implications of mercury discharges from rivers and sediment burial [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48** (16):

- 9514-9522.
- [14] Yao H, Feng X B, Guo Y N, *et al.* Mercury and methylmercury concentrations in two newly constructed reservoirs in the Wujiang River, Guizhou, China [J]. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2011, **30**(3): 530-537.
- [15] 何天容, 冯新斌, 郭艳娜, 等. 红枫湖沉积物中汞的环境地球化学循环[J]. *环境科学*, 2008, **29**(7): 1768-1774.
- 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.
- [16] 白薇扬, 张成, 唐振亚, 等. 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[J]. *环境科学*, 2015, **36**(10): 3649-3661.
- Bai W Y, Zhang C, Tang Z Y, *et al.* Seasonal variations in vertical profile of Hg species and the influential factors in Changshou reservoir [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(10): 3649-3661.
- [17] Dynesius M, Nilsson C. Fragmentation and flow regulation of river systems in the northern third of the world [J]. *Science*, 1994, **266**(5186): 753-762.
- [18] 中华人民共和国国家统计局. 中国统计年鉴—2016 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2016.
- National Bureau of Statistics of China. China statistical yearbook—2016 [M]. Beijing: China Statistics Press, 2016.
- [19] 孙涛, 马明, 王定勇, 等. 中亚热带典型林分不同层次氮硫湿沉降动态变化[J]. *环境科学*, 2014, **35**(12): 4475-4481.
- Sun T, Ma M, Wang D Y, *et al.* Dynamics of nitrogen and sulfur wet deposition in typical forest stand at different spatial levels in Simian mountain, mid-subtropical region [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(12): 4475-4481.
- [20] EPA. Method 1631, Revision E; Mercury in water by oxidation, purge and trap, and cold vapor atomic fluorescence spectrometry [M]. Washington, DC: US Environmental Protection Agency, 2002.
- [21] EPA. Method 1630, methyl mercury in water by distillation, aqueous ethylation, purge and trap, and cold vapor atomic fluorescence spectrometry [M]. Washington, DC: US Environmental Protection Agency, 1998.
- [22] 何天容, 冯新斌, 戴前进, 等. 萃取-乙基化结合 GC-CVAFS 法测定沉积物及土壤中的甲基汞[J]. *地球与环境*, 2004, **32**(2): 83-86.
- He T R, Feng X B, Dai Q J, *et al.* Determination of methyl mercury in sediments and soils by GC-CVAFS after aqueous phase ethylation [J]. *Earth and Environment*, 2004, **32**(2): 83-86.
- [23] GB 3838-2002, 地表水环境质量标准[S].
- GB 3838-2002, Environmental quality standards for surface water [S].
- [24] 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.
- [25] 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.
- [26] Nguyen H L, Leermakers M, Kurunzi S, *et al.* Mercury distribution and speciation in lake Balaton, Hungary [J]. *Science of the Total Environment*, 2005, **340**(1-3): 231-246.
- [27] 程柳, 毛宇翔, 麻冰涓, 等. 汞在小浪底水库的赋存形态及其时空变化[J]. *环境科学*, 2015, **36**(1): 121-129.
- Cheng L, Mao Y X, Ma B J, *et al.* Speciation and spatial-temporal variation of mercury in the Xiaolangdi reservoir [J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(1): 121-129.
- [28] 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]. *Environmental Pollution*, 2008, **154**(1): 56-67.
- [29] 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.
- [30] 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.
- Wang Y, Zhao Z, Mu Z J, *et al.* Spatial and temporal distribution of mercury in water of a small typical agricultural watershed in the Three Gorges reservoir region [J]. *Environmental Science*, 2014, **35**(11): 4095-4102.
- [31] 卢松, 江韬, 张进忠, 等. 两个水库型湖泊中溶解性有机质三维荧光特征差异[J]. *中国环境科学*, 2015, **35**(2): 516-523.
- Lu S, Jiang T, Zhang J Z, *et al.* Three-dimensional fluorescence characteristic differences of dissolved organic matter (DOM) from two typical reservoirs [J]. *Environmental Science*, 2015, **35**(2): 516-523.
- [32] French K J, Scruton D A, Anderson M R, *et al.* Influence of physical and chemical characteristics on mercury in aquatic sediments [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 1999, **110**(3-4): 347-362.
- [33] El Bilali L, Rasmussen P E, Hall G E M, *et al.* Role of sediment composition in trace metal distribution in lake sediments [J]. *Applied Geochemistry*, 2002, **17**(9): 1171-1181.
- [34] Jiang T, Skjellberg U, Wei S Q, *et al.* Modeling of the structure-specific kinetics of abiotic, dark reduction of Hg(II) complexed by O/N and S functional groups in humic acids while accounting for time-dependent structural rearrangement [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2015, **154**: 151-167.
- [35] Ma M, Du H X, Wang D Y, *et al.* Biotically mediated mercury methylation in the soils and sediments of Nam Co lake, Tibetan plateau [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **227**: 243-251.
- [36] Ma M, Wang D Y, Du H X, *et al.* Mercury dynamics and mass balance in a subtropical forest, southwestern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(7): 4529-4537.
- [37] 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. 33-43.
- Jiang H M. Effects of hydroelectric reservoir on the biogeochemical cycle of mercury in the wujiang river [D]. Guiyang: Institute of Geochemistry Chinese Academy of Sciences, 2005. 33-43.
- [38] Ci Z J, Peng F, Xue X, *et al.* Air-surface exchange of gaseous mercury over permafrost soil: an investigation at a high-altitude (4700 m a. s. l.) and remote site in the central Qinghai-Tibet Plateau [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(22): 14741-14754.

CONTENTS

Air Pollutant Emission Inventory from Iron and Steel Industry in the Beijing-Tianjin-Hebei Region and Its Impact on PM _{2.5}	DUAN Wen-jiao, LANG Jian-lei, CHENG Shui-yuan, <i>et al.</i> (1445)
Simulation of the Spatio-temporally Resolved PM _{2.5} Aerosol Mass Concentration over the Inland Plain of the Beijing-Tianjin-Hebei Region	HAO Jing, SUN Cheng, GUO Xing-yu, <i>et al.</i> (1455)
Effect of Relative Humidity on Particulate Matter Concentration and Visibility During Winter in Chengdu	LIU Fan, TAN Qin-wen, JIANG Xia, <i>et al.</i> (1466)
Vertical Distributional Characteristics of Inorganic Ions of PM _{2.5} at Mt. Huashan, Inland China	CAO Cong, WANG Ge-hui, WU Can, <i>et al.</i> (1473)
Analysis of the Composition of Atmospheric Fine Particles (PM _{2.5}) Produced by Burning Fireworks	XIE Rui-jia, HOU Hong-xia, CHEN Yong-shan (1484)
Chemical Composition Characteristics of PM _{2.5} Emitted by Medium and Small Capacity Coal-fired Boilers in the Yangtze River Delta Region	XU Jian, HUANG Cheng, LI Li, <i>et al.</i> (1493)
Emission Factors of Heavy Metals in Size-resolved Particles Emitted from Residential Coal Combustion	YAN Qin, KONG Shao-fei, LIU Hai-biao, <i>et al.</i> (1502)
Distribution of Oxalate in Atmospheric Aerosols and the Related Influencing Factors in Qingdao, During Winter and Spring	ZHANG Shuai, SHI Jin-hui, YAO Xiao-hong, <i>et al.</i> (1512)
Concentrations and Solubility of Trace Elements in Atmospheric Precipitation in Qingdao	LI Qian, SHI Jin-hui, LI Peng-zhi, <i>et al.</i> (1520)
Occurrence and Gas-particle Partitioning of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Air of Liaodong Bay	ZHANG Yu-feng, SONG Yong-gang, TIAN Jin, <i>et al.</i> (1527)
Analysis of Sources, Pollution Characteristics, and Human Exposure to Atmospheric New Halogenated Flame Retardants in Selected Areas	LI Qi-lu, YANG Kong, LI Jun, <i>et al.</i> (1537)
Contamination Characterization and Human Exposure Levels to Polybrominated Diphenyl Ethers in Indoor and Outdoor Air in Industrial Park of Suzhou City	WANG Jun-xia, GU Hai-dong, ZHANG Zhan-en, <i>et al.</i> (1544)
Effect of Air Pollution on the Cold Disease in Shanghai	YANG Si-xu, MA Yu-xia, ZHOU Jian-ding, <i>et al.</i> (1552)
Fluorescent Dissolved Organic Matter and Its Correlation with Water Quality in a Urban River: A Case Study of the Lujiang River in Beilun, Ningbo	CAO Chang-li, LIANG Meng-qi, HE Gui-ying, <i>et al.</i> (1560)
Relationship Between Landscape Pattern and Water Quality in the Ebinur Lake Region	CAO Can, ZHANG Fei, Ayinigeer·Yalikun, <i>et al.</i> (1568)
CH ₄ Fluxes During the Algal Bloom in the Pengxi River	QIN Yu, ZHANG Yu-yang, LI Zhe, <i>et al.</i> (1578)
Dynamic Variations and Sources of Nitrate During Dry Season in the Lijiang River	MIAO Ying, ZHANG Cheng, XIAO Qiong, <i>et al.</i> (1589)
Heavy Metal Pollution of the Drinking Water Sources in the Lujiang River Basin, and Related Health Risk Assessments	ZHANG Qing-hua, WEI Yong-zhu, CAO Jian-hua, <i>et al.</i> (1598)
Characteristics of Phosphorus Fractions and Phosphate Diffusion Fluxes of Sediments in Cascade Reservoirs of the Huangbai River	LIU Jia, LEI Dan, LI Qiong, <i>et al.</i> (1608)
Occurrence and Ecological Risk Assessment of Typical Persistent Organic Pollutants in Baiyangdian Lake	GAO Qiu-sheng, JIAO Li-xin, YANG Liu, <i>et al.</i> (1616)
Simulating the Fate of Typical Organochlorine Pesticides in the Multimedia Environment of the Pearl River Delta	GAO Zi-wen, XU Yue, YI Ru-han (1628)
Mechanisms and Efficiencies of Removal of PPCPs by Pilot River Water Bypass Treatment Process	LI Li, ZHU Bing, BAI Yao, <i>et al.</i> (1637)
Chlorination of Naproxen: Removal, Transformation and Risk Assessment	FAN Xin-xin, DU Er-deng, LI Jia-qi, <i>et al.</i> (1645)
Removing Typical Odorants in Drinking Water by Vacuum Ultraviolet Combined with Chlorine	SUN Xin, ZHANG Yi, SHI Lu-xiao, <i>et al.</i> (1654)
Degradation of Triclosan by Heat Activated Persulfate Oxidation	JIANG Meng-di, ZHANG Qing-yue, JI Yue-fei, <i>et al.</i> (1661)
Adsorption of Tetracycline on Simulated Suspended Particles in Water	XU Long-feng, WEI Qun-shan, LÜ Qiang, <i>et al.</i> (1668)
Characteristics and Performance of Embedded ANAMMOX Bacteria in Treating Saline Wastewater	SHAN Xiao-jing, YU De-shuang, LI Jin, <i>et al.</i> (1677)
Enhanced Nitrogen Removal of ANAMMOX Treating Saline Wastewater With Betaine Addition	YU De-shuang, WU Guo-dong, LI Jin, <i>et al.</i> (1688)
Pilot-scale Experiment on Enrichment of Nitrifying Activated Sludge and Its Application in Enhancing a Wastewater Biological Treatment System Against Ammonia Shocking Loads	SHENG Xiao-lin, CUI Can-can, WANG Jia-de, <i>et al.</i> (1697)
Effect of Step Feed on Denitrifying Phosphorus and Nitrate Removal in a Modification of the Two Sludge A ² /O-BAF System	NAN Yan-bin, PENG Yong-zhen, ZENG Li-yun, <i>et al.</i> (1704)
Achieving Partial Nitrification in a Continuous-flow Aerobic Granular Sludge Reactor at Different Temperatures Through Ratio Control	LIANG Dong-bo, BIAN Wei, KAN Rui-zhe, <i>et al.</i> (1713)
Mechanism of Action of Activated Sludge Properties in Nitrogen Removal by Endogenous Denitrification Through an Intelligent Aeration-controlled A/O Process	XU Min-yang, HU Zhan-bo, ZHANG Sui-sheng, <i>et al.</i> (1720)
Effect of Temperature on the Performance and Microbial Community Structure in an Integrated Anaerobic Fluidized-bed Membrane Bioreactor Treating Benzothiazole Wastewater	LI Yue, HU Qi, GAO Da-wen (1731)
Removal of Antibiotics During In-situ Sludge Ozone-reduction Process	WANG Lu, BEN Wei-wei, LI Yan-gang, <i>et al.</i> (1739)
Effect of Zero Valent Iron on the Horizontal Gene Transfer of Tetracycline Resistance Genes During Anaerobic Sludge Digestion Process	YANG Fan, XU Wen-li, QIAN Ya-jie, <i>et al.</i> (1748)
Effects of Environmental Factors on the Synergy of Functional Bacteria in Completely Autotrophic Granular Sludge	CHEN Xi, QIAN Fei-yue, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (1756)
Microbiological Characteristics of a Post Solid-Phase Denitrification Biofilter Process	ZHANG Qian, JI Fang-ying, XU Xuan (1763)
Aerobic Denitrification and Microbial Community Shift in SBR Bioaugmented with Strains YH01 and YH02	CHEN Hai-sheng, CAO Gang, ZHANG Di, <i>et al.</i> (1773)
Performance, Sludge Characteristics, and the Microbial Community Dynamics of Bulking Sludge Under Different Nitrogen and Phosphorus Imbalances	HE Xue-meng, DING Li-li, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (1782)
Degradation Characteristics and Metabolic Pathway of a Pyrene-Degrading <i>Pseudomonas aeruginosa</i> Strain	LI Xiang, ZHANG Xue-ying, ZHOU Jun, <i>et al.</i> (1794)
Driving Factors of the Dynamics of Microbial Community in a Dam of Copper Mine Tailings	LI Cui, JING Ju-hui, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (1804)
Effects of Reclamation on Soil Nutrients and Microbial Activities in the Huixian Karst Wetland in Guilin	HUANG Ke-chao, SHEN Yu-yi, XU Guang-ping, <i>et al.</i> (1813)
Effects of the Farmland-to-Forest/Grassland Conversion Program on the Soil Bacterial Community in the Loess Hilly Region	CHEN Meng-li, ZENG Quan-chao, HUANG Yi-mei, <i>et al.</i> (1824)
Insight into the Mechanism of Feammox in the Surface Soils of a Riparian Zone	DING Bang-jing, LI Zheng-kui, ZHU Hong-jie, <i>et al.</i> (1833)
Soil Degradation-Associated Microbial Community Structure Changes in an Alpine Meadow Under Tibetan Pig Herding	ZHAN Peng-fei, XIAO De-rong, YAN Peng-fei, <i>et al.</i> (1840)
Characteristics of Iron Plaque and Its Heavy Metal Enrichment in Typical Mangrove Plants in Shenzhen Bay, China	SHEN Xiao-xue, LI Rui-li, CHAI Min-wei, <i>et al.</i> (1851)
Spatial Distribution of DDTs and PCBs in Wild Fish from Hong Kong Coastal Areas and Potential Human Health Risk Assessment	SU Yang, BAO Lian-jun, ZENG Eddy Y (1861)
Pollution Characteristics of PAHs in Soil from a Remote Mountain Wetland-Dajihu Lake, Shengnongjia	HU Tian-peng, XING Xin-li, KE Yan-ping, <i>et al.</i> (1872)
Migration and Transformation of Mercury in Unsubmerged Soil and Sediment at One Typical Forest Reservoir in Southwest China	SUN Tao, MA Ming, WANG Yong-min, <i>et al.</i> (1880)
Accumulation of Cd and Its Risks in the Soils of the Xijiang River Drainage Basin in Guangxi	SONG Bo, YANG Zi-jie, ZHANG Yun-xia, <i>et al.</i> (1888)
Effects of Long-term Fertilization Regimes on As Accumulation in Upland Red Earth and the Crops Growing on It	ZHANG Rong, YU Guang-hui, LI Ya-qing (1901)
Effects of a Tribasic Amendment on Cadmium and Arsenic Accumulation and Translocation in Rice in a Field Experiment	GU Jiao-feng, ZHOU Hang, JIA Run-yu, <i>et al.</i> (1910)
Quantitative Relationship Between Paddy Soil Properties and Cadmium Content in Rice Grains	WANG Meng-meng, HE Meng-yuan, SU De-chun (1918)
Effect of Ca-bentonite on Cu and Zn Forms in Compost and Soil, and Their Absorption by Chinese Cabbage	ZHAO Jun-chao, WANG Quan, REN Xiu-na, <i>et al.</i> (1926)
Effects of Short-term Exogenous Nitrogen and Carbon Input on Soil Respiration Under Changing Precipitation Pattern	HE Yun-long, QI Yu-chun, PENG Qin, <i>et al.</i> (1934)
Effects of Simulated Precipitation Reduction on Soil Respiration in a Soybean-Winter Wheat Rotation Cropland	WANG Zhao-hui, CHEN Shu-tao, SUN Lu, <i>et al.</i> (1943)
Seasonal Variation in Nitric Oxide Emission from an Agricultural Headwater Ditch in the Hilly Purple Soil Area and the Factors Influencing Emission	TIAN Lin-lin, REN Guang-qian, ZHU Bo (1952)
Effects of Seasonal Asymmetric Warming on Soil CO ₂ Release in Karst Region	TANG Guo-yong, ZHANG Chun-hua, LIU Fang-yan, <i>et al.</i> (1962)