

贵州省草海表层水体和沉积物间隙水中汞的含量和形态分布初步研究*

钱晓莉^{1,2}, 冯新斌^{2**}, 闭向阳^{2,3}, 何天容^{2,3}, 郭艳娜^{2,3}, 付学吾^{2,3}, 李 平^{2,3}

(1: 贵州大学资源与环境工程学院, 贵阳 550003)

(2: 中国科学院地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550002)

(3: 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘 要: 运用金汞齐-冷原子荧光光谱法(CVAFS)和气相色谱技术(GC), 对贵州省草海不同水文季节(枯水期和丰水期)表层水中汞的各种赋存形态, 包括总汞(HgT)、溶解态汞(HgD)、活性汞(HgR)、颗粒态汞(HgP)、总甲基汞(MeHgT)、溶解态甲基汞(MeHgD)和颗粒态甲基汞(MeHgP)以及沉积物间隙水剖面中的溶解态总汞和甲基汞含量进行了测定。结果显示: 草海表层水体总汞浓度为 1.7–9.0ng/L, 活性汞浓度为 0.06–1.4ng/L, 总甲基汞浓度为 0.11–0.67ng/L。沉积物间隙水中溶解态汞浓度为 8.6–39.6ng/L, 溶解态甲基汞浓度为 0.11–4.9ng/L。实验数据表明, 草海湖水以溶解态汞为主, 其占总汞的比例为枯水期 87%, 丰水期 51%, 溶解态汞与总汞呈显著相关(丰水期 $P<0.01$; 枯水期 $P<0.05$), 颗粒态汞与总汞也呈显著相关(丰水期 $P<0.01$; 枯水期 $P<0.05$), 溶解态甲基汞与总甲基汞呈显著相关(丰水期 $P<0.01$; 枯水期 $P<0.05$), 表明溶解态甲基汞控制总甲基汞的分布。沉积物间隙水溶解态汞与溶解态甲基汞浓度明显高于上覆水体, 表明沉积物为草海湖水中汞的一个重要来源。

关键词: 汞形态; 表层水; 间隙水; 含量分布; 草海

Concentrations and distributions of mercury species in surface water and porewater of Lake Caohai, Guizhou Province

QIAN Xiaoli^{1,2}, FENG Xinbin², BI Xiangyang^{2,3}, HE Tianrong^{2,3}, GUO Yanna^{2,3}, FU Xuewu^{2,3} & LI Ping^{2,3}

(1: *College of Resources and Environment, Guizhou University, Guiyang 550003, P.R.China*)

(2: *State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, P.R.China*)

(3: *Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, P.R.China*)

Abstract: Concentrations and distributions of various mercury (Hg) species, including total Hg (HgT), dissolved Hg (HgD), reactive Hg (HgR), particulate Hg (HgP), total methylmercury (MeHgT), dissolved methylmercury (MeHgD), and particulate methylmercury (MeHgP) in surface water and porewater of the sediment collected from Lake Caohai during the flood and dry seasons were analyzed by using CVAFS and GC techniques. The concentrations of HgT ranged from 1.7 to 9.0ng/L, HgR from 0.06 to 1.4ng/L, and MeHgT from 0.11 to 0.67ng/L in surface water, respectively. In the sediment porewater, the concentrations of HgD varied from 8.6 to 39.6ng/L, and MeHgD ranged from 0.11 to 4.9ng/L. The Hg species in surface water was mostly dominated with dissolved forms with an average of 87% of HgT in dry flow period and 51% of HgT in flood flow period, respectively. The HgD and HgP forms were significantly correlated with HgT. The MeHgD were positively correlated to MeHgT, showing that distributions of MeHgT were controlled by MeHgD. Concentrations of HgD and MeHgD in porewater were higher than that obtained in the underlying water, which suggested that the sediment was a dominant Hg source to the lake.

Keywords: Mercury species; surface water; porewater; concentrations and distributions; Lake Caohai

* 国家自然科学基金重点项目(40532014)资助。2007-07-16 收稿; 2007-10-12 收修改稿。钱晓莉, 女, 1978 年生, 硕士, 讲师; E-mail: xiaoliroap2000@163.com.

** 通讯作者; E-mail: fengxinbin@vip.skleg.cn.

汞是人体的有毒、非必需元素,甲基汞是不同形态汞中毒性最强的一种形态.20世纪50年代举世震惊的日本“水俣病”事件就是由于甲基汞中毒造成的.水生生态系统是发生汞甲基化和生物累积效应的重要场所.20世纪80-90年代,人们陆续在北美和北欧的偏远湖泊中发现,甲基汞在食物链中能产生强烈的生物累积效应^[1-3],在这些湖泊鱼体中甲基汞含量显著升高.因此,对湖泊水体中汞污染的研究成为环境领域关注的焦点之一.

草海高原湿地属于长江水系,位于贵阳以西约350km,是贵州省境内最大的天然岩溶堰塞淡水湖,湖水补给主要以大气降水^[4],因此大气沉降输入是草海高原湿地系统中重金属污染物的一个重要途径.由于贵州赫章县著名的土法炼锌集中区距草海仅十多千米,土法炼锌排放大量的 Hg^0 可随大气环流进行迁移并经干湿沉降进入水生生态系统,从而对水体造成严重的汞污染^[5],这无疑对草海水生生态系统产生重要影响.本文以草海为研究对象,分析了不同水文季节湖水及沉积物间隙水中汞的赋存状态及其时空分布,尤其是甲基汞的含量变化特征,初步探讨了周围土法炼锌及其它人为活动对草海水体汞分布的影响,对深入了解草海湖泊汞的生物地球化学行为及环境效应具有重要的指导意义,同时可以为我国其它湖泊系统中汞的研究提供基础数据.

1 样品的采集与分析

1.1 样品的采集

从草海进水口到出水口,共设置了11个水样采集点.枯水期采样于2005年10月进行,从上游到下游设5个采样点;丰水期采样于2006年6月进行,从上游到下游采集11个点;另外,同时在入湖区和湖心区进行沉积物及间隙水的采集(图1).

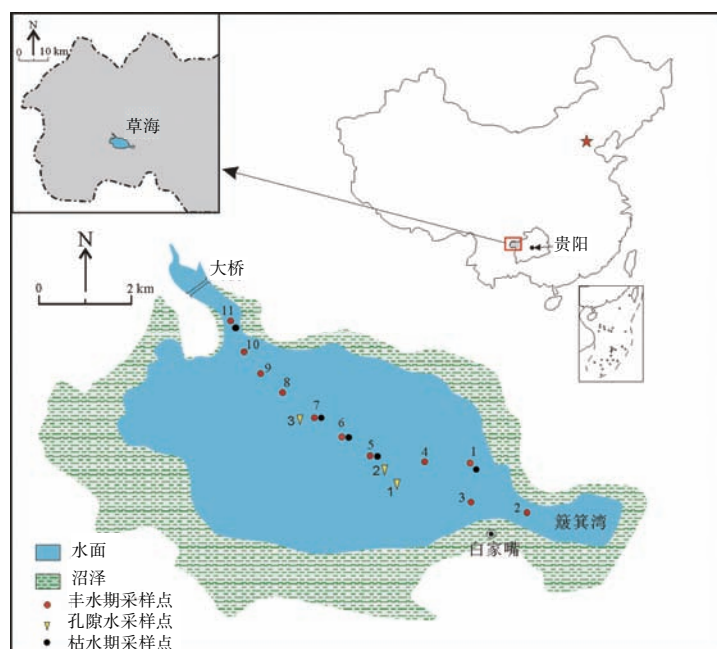


图1 草海湖泊采样点分布

Fig.1 Sampling sites in Lake Caohai

1.1.1 水样的采集 采集时面向水流方向,在船上方采样.样品采于水面以下约20cm.使用硼硅玻璃瓶或聚四氟乙烯瓶采集水样.采样前所有器皿和滤膜(0.45 μm 尼龙滤膜)均经过超净处理,按10%的比例随机抽取测定空白,确定空白合格后方可带至野外使用.不过滤样品直接装入100ml 硼硅玻璃瓶内,装样前,用

少量样品洗涤3次。采集的水样按0.5%(V/V)的比例24h内加入亚沸蒸馏的12mol/L HCl, 双层塑料袋包装后放入木箱运回实验室4℃下保存。过滤样品现场用0.45μm滤膜过滤后和未过滤水一样处理保存。为避免人为污染, 所有操作过程均使用一次性聚乙烯手套。

1.1.2 沉积物间隙水的采集 采用SWB-1型便携式、不扰动湖泊沉积物采样器采集沉积物柱。采样过程中, 需要保证沉积物柱界面水清澈、表层沉积物完好、整个沉积物松散均匀^[6]。沉积物采集后抽取界面水(保存方法与湖水相同), 然后进行分割。沉积物样品在现场通过氮气厌氧条件下10cm以上按1cm间距分割, 10cm以下按2cm间隔分割, 将样品封存入经酸处理的50ml塑料离心管, 用Parafilm密封, 低温4℃保存, 48h内用离心方式提取间隙水(4℃恒温、转速3000r/min、离心30min), 间隙水经0.45μm滤膜过滤并装入事先处理好的硼硅比色管, 加0.5%盐酸密封保存于冰箱中待测定^[7]。

1.2 样品的分析

总汞形态测定: 总汞和溶解态汞, 分别取未过滤水样和过滤水样各50ml, 经浓度为9.0mol/L的氯化溴500μl氧化后, 用浓度为3.6mol/L的盐酸羟胺200μl除去其中游离的卤素, 用浓度为2.0mol/L的氯化亚锡100μl将所有的 Hg^{2+} 还原为 Hg^0 , 再由氮气将 Hg^0 吹扫捕集于金管上, 用冷原子荧光光谱法(Tekran 2500测汞仪)进行测定。活性汞用浓度为2.0mol/L的氯化亚锡100μl, 直接还原未过滤水样后, 用冷原子荧光光谱法进行测定^[8]。颗粒态汞为总汞与溶解态汞的差值。实验方法的最低检测限为0.02ng/L, 样品加标回收率平均为93.0%–110.1%。

甲基汞测定: 总甲基汞和溶解态甲基汞分别取未过滤和过滤的水样, 采用蒸馏-乙基化GC-CVAFS法测定^[7]。颗粒态甲基汞为总甲基汞与溶解态甲基汞的差值。该方法的最低检测限为0.009ng/L, 加标回收率为88.2%–108.4%。

2 结果

2.1 表层水中不同形态汞分布

2.1.1 表层水体总汞、溶解态汞、颗粒态汞与活性汞的分布 图2显示了草海表层水体总汞、颗粒态汞及溶解态汞的分布。草海表层水体总汞浓度为1.7–9.0ng/L, 平均浓度为5.3ng/L, 明显高于世界其它天然水体一倍甚至几倍^[9–16](表1), 这可能与以下区域背景和人为活动有关: 近年来贵州省燃煤导致了严重的大气污染, 进入大气的汞通过干湿沉降可造成湖泊水体汞浓度偏高^[17–18]; 另外, 在离草海10km的赫章县妈姑镇有大量的土法炼锌活动, 从1989–2001年间, 土法炼锌活动向妈姑镇(150km²范围内)大气中释放汞就达46t^[19]。大气汞会通过长距离输送至数百公里范围, 经大气干湿沉降周围湖泊水体而造成严重的汞污染^[5]。这可能是导致草海湖泊水体汞含量高于世界其它天然湖泊的重要因素之一。但是, 与贵州省的红枫湖、百花湖、啊哈水库等研究结果相比较(表1), 草海总汞含量比同区域背景的几个湖泊低。原因是相同区域背景条件下, 其它湖泊均具有直接的、多途径的汞污染源^[9–11]。

丰水期草海表层水体总汞浓度变化为1.6–6.7ng/L, 平均值为3.5ng/L($n=11$), 枯水期浓度变化为5.9–9.0ng/L, 平均值为7.1ng/L($n=5$)。不同季节表现为枯水期>丰水期。分析原因是: 丰水期大量的水生植物对重金属有净化作用^[20], 因此降低了水体中汞含量; 此外, 丰水期水体温度较高, 光照较强, 水体表面汞释放强度增大, 从而降低了水体汞的负荷^[21–22]。相对而言, 枯水期采样属于取暖季, 取暖活动造成的化石燃料使用量的增加以及冷季不利于大气汞扩散的气候背景, 导致大气中不同形态汞含量的显著升高, 而高含量的大气汞通过干湿沉降向湖泊水体的输入是造成枯水期水体总汞浓度升高的一个主要原因。另外, 枯水期水体生物大量死亡, 微生物活动降低, 降低了水生植物对水体的净化作用, 从而导致枯水期水体汞含量上升。

对比草海水体总汞空间分布特征发现, 进出口处水体汞含量高, 湖心相对低。主要原因是进出口处受人为活动影响(如生活生产废水等大量排放和周围农田种植)所致。其中采样点1、2等曾经遭受炼锌废水和电厂废水的污染, 尽管已经停止排放, 但是汞含量仍相对较高, 因此, 潜在污染源(汞矿、煤矿等)对水体存在一定影响。此外, 草海丰富水生植物的自净作用使水中汞含量从上游到下游出现降低的趋势, 尤其在丰水期表现更为明显。

草海表层水体颗粒态汞浓度为 0.40–3.1ng/L, 平均值 1.4ng/L. 丰水期颗粒态汞浓度变化为 0.83–3.1ng/L, 平均为 1.7ng/L, 占总汞的比例变化为 25%–74%, 平均为 48%($n=11$), 并与总汞存在极显著相关性($P<0.01$). 枯水期颗粒态汞浓度变化为 0.4–2.3ng/L, 平均值为 1.0ng/L, 占总汞的比例变化为 6%–25%, 平均值为 13%($n=5$)(图 2). 在枯水期颗粒态汞对总汞贡献率明显下降, 说明季节的变化会显著影响水体中颗粒态汞含量变化, 进而影响颗粒态汞对总汞的贡献率. 在丰水期, 地表径流携带陆地的微细颗粒进入湖泊, 颗粒物对汞的强烈吸附作用使湖泊颗粒态汞含量明显增高; 同时草海较浅, 丰水期湖水动力增强, 扰动河底沉积物, 使湖泊表层沉积物再悬浮, 将沉积物中的汞转变为悬浮态汞. 这两种作用共同提高了水体中颗粒态汞的含量^[22]. 颗粒态汞含量的空间变化特征为: 进出口高(最大值为 3.1ng/L), 湖心、下游相对较低. 主要是进出口人为活动较大, 颗粒物主要来源于生活污水、农田污水等排放, 水体颗粒物含量较高, 而远离人为活动频繁区域后, 湖水动力条件随着环境条件改变而发生变化, 湖水流速逐渐平稳, 导致水中悬浮颗粒物在湖泊沿途沉降于河床底层, 使表层水体颗粒态汞含量降低, 因此, 湖心和下游区域颗粒态汞含量明显降低.

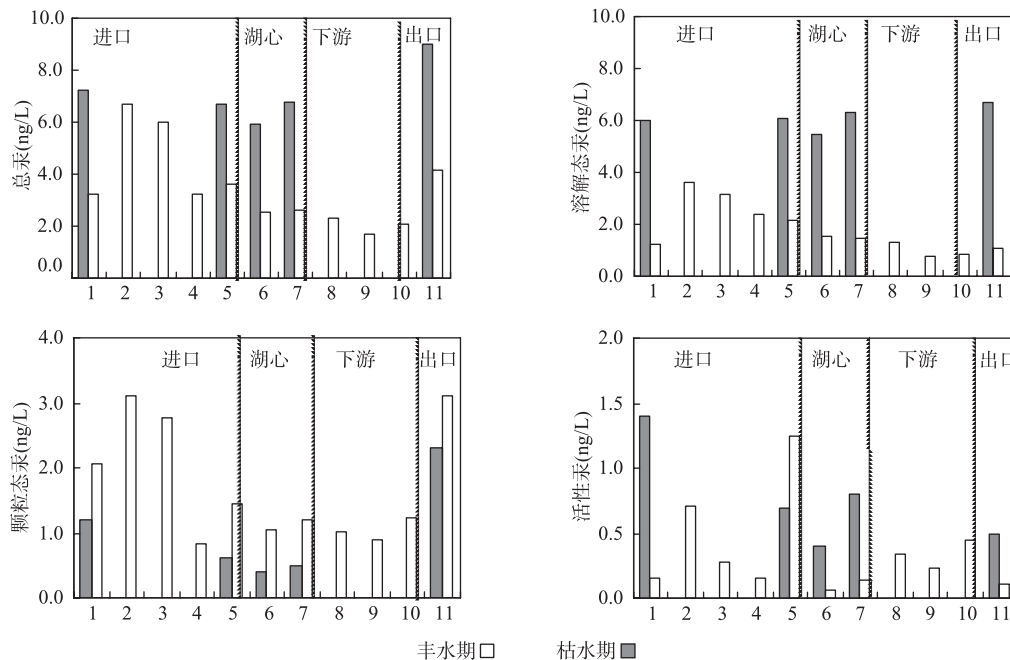


图 2 草海表层水体总汞、溶解态汞、颗粒态汞与活性汞的分布
Fig.2 Distributions of HgT, HgD, HgP and HgR in surface water in Lake Caohai

草海表层水体溶解态汞含量介于 0.80–6.7ng/L 之间, 平均值为 3.9ng/L. 丰水期溶解态汞的浓度范围为 0.8–3.6ng/L, 平均为 1.8ng/L($n=11$); 枯水期浓度范围为 5.2–6.7ng/L, 平均为 6.1ng/L($n=5$). 不同季节表现为枯水期>丰水期, 与总汞的分布趋势一致. 草海溶解态汞占总汞的比例较大, 丰水期溶解态汞/总汞为 25%–74%, 平均为 51%, 溶解态汞与总汞的相关性达极显著水平($P<0.01$); 而枯水期水质清澈, 悬浮物浓度降低, 对汞的吸附作用也降低, 因此, 溶解态汞占总汞的比例上升, 溶解态汞/总汞为 74%–93%, 平均为 87%, 枯水期溶解态汞与总汞含量之间达到显著相关($P<0.05$).

草海表层水体活性汞含量介于 0.06–1.4ng/L 范围, 平均值为 0.58ng/L. 丰水期活性汞浓度范围为 0.05–1.23ng/L, 平均值为 0.35ng/L, HgR/HgT 的范围为 2%–3.4%($n=11$). 枯水期活性汞对总汞的贡献率有所上升, 为 6%–19%. 枯水期活性汞浓度为 0.4–1.4ng/L, 平均值为 0.80ng/L($n=5$)(图 2). 不同季节活性汞的浓度为枯水期约高于丰水期, 与总汞分布趋势一致, 主要受冬季取暖活动、夏季水生微生物活动等共同因素影响.

表 1 草海水体中不同形态汞含量与其他地区水体的比较(单位: ng/L)
Tab.1 Comparison of different speciation of Hg in Lake Caohai and the other water worldwide

水体	总汞 (HgT)	颗粒态汞 (HgP)	溶解态汞 (HgD)	水体	总汞 (HgT)	颗粒态汞 (HgP)	溶解态汞 (HgD)
草海	1.7-9.0	0.4-3.1	0.80-6.7	天然淡水 ^[13]	<5		
红枫湖 ^[9]	2.5-13.9	1.3-5.9	1.2-8.0	南极天然湖泊 ^[14]	0.4-1.9		0.1-0.4
阿哈湖 ^[10]	2.1-19.2	0.3-14.8	1.7-9.9	Wisconsin 湖泊 ^[15]	0.4-4.8	0.1-1.3	0.3-4.5
百花湖 ^[11]	6.9-110.6	0.9-105.7	2.7-8.2	Beverly 沼泽 ^[16]	2.0		
叶尼塞河 ^[12]		0.2-1.2	0.8-2.1	鄂毕河 ^[12]	0.9-6.8	2.4-3.2	

2.1.2 表层水体总甲基汞、溶解态甲基汞与颗粒态甲基汞的分布 草海表层水体总甲基汞浓度变化为 0.11–0.67ng/L, 平均为 0.25ng/L; 溶解态甲基汞浓度范围为 0.07–0.48ng/L, 平均为 0.23ng/L; 颗粒态甲基汞浓度变化为 0.02–0.26ng/L, 平均为 0.05ng/L(图 3)。丰水期表层水总甲基汞浓度范围为 0.11–0.67 ng/L, 平均为 0.25ng/L($n=11$); 枯水期表层水总甲基汞浓度范围为 0.36–0.65ng/L, 平均值为 0.45ng/L($n=5$)。

丰水期甲基汞含量低于枯水期, 这可能是由于表层水体甲基汞浓度受光辐射影响所致^[23]。由于丰水期水温较高(22.4℃), 光照条件充分, 光辐射强度比枯水期大, 因此表层水体中的甲基汞容易被光分解还原为二价汞和零价汞, 从而降低了湖泊水体中甲基汞的含量。无论在丰水期还是枯水期, 湖泊总甲基汞含量均表现为进口处高, 主要原因可能是进口处受人为活动等影响, 导致该区域汞的净甲基化作用高于其它水域而造成了水体高甲基汞含量的特点。

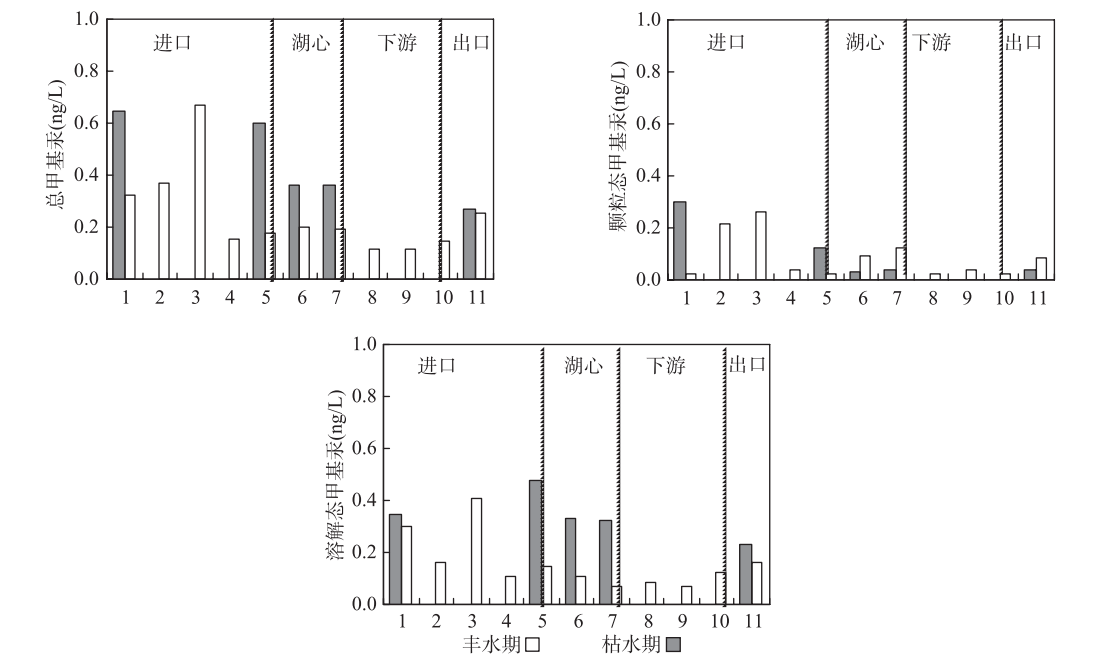


图 3 草海表层水体总甲基汞、溶解态甲基汞与颗粒态甲基汞的分布
Fig.3 Distributions of MeHgT, MeHgD and MeHgP in surface water in Lake Caohai

草海表层水体甲基汞占总汞的比例分别为: 丰水期 3%–9%, 均值 6.7%; 枯水期 4%–11%, 均值 7.6%。总甲基汞与总汞含量之间无相关关系(丰水期 $r=0.592$, $n=11$; 枯水期 $r=-0.380$, $n=5$)。活性汞在水体中可

以转化为甲基汞, 活性汞的甲基化会大大增加汞对生物的毒害程度. 草海表层湖水总甲基汞与活性汞无明显的相关关系(丰水期 $r=-0.002$, $n=11$; 枯水期 $r=-0.746$, $n=5$), 这可能暗示草海浅型湖泊的湖水中汞的甲基化作用不是很活跃, 从而降低了其对湖泊生态系统的潜在危害.

丰水期溶解态甲基汞浓度变化为 $0.07\sim0.41\text{ng/L}$, 平均为 0.16ng/L ($n=11$); 枯水期溶解态甲基汞浓度变化为 $0.23\sim0.48\text{ng/L}$, 平均为 0.30ng/L ($n=5$)(图 3). 草海水温与水体溶解态甲基汞相关性表明, 丰水期呈正相关关系($P<0.05$), 枯水期无相关性($r=0.520$, $n=5$); 而溶解氧(DO)与溶解态甲基汞在不同季节均达到显著负相关, 其中, 丰水期($P<0.01$); 枯水期($P<0.05$). 因此, 草海不同季节表层水体溶解态甲基汞分布特征, 可能受降雨量、水温、溶解氧、水生植物等共同影响结果^[24-25].

溶解态甲基汞是湖水中总甲基汞的重要部分, 它的浓度很大程度上影响着甲基汞的分布. 不同季节草海表层水体溶解态甲基汞占总甲基汞的比例分别为: 丰水期 $36\%\sim92\%$, 平均为 67% ; 枯水期 $56\%\sim81\%$, 平均为 66% . 丰水期水体溶解态甲基汞与总甲基汞之间呈极显著相关(丰水期, $P<0.01$; 枯水期 $P<0.05$). 由此可见, 湖泊水体中的甲基汞的产生和迁移与溶解态甲基汞有密切的关系^[26], 即草海表层湖水中总甲基汞的分布受溶解态甲基汞的控制.

不同季节颗粒态甲基汞含量均在进口处高(图 3). 主要是进口处受人为排污干扰影响, 悬浮物质等增加, 对汞的吸附能力增强而导致颗粒态甲基汞含量相对较高. 丰水期颗粒态甲基汞均值为 0.09ng/L , 占总甲基汞的比例范围为 $7\%\sim92\%$, 平均为 34% ; 枯水期为 0.10ng/L , 占总甲基汞的比例范围为 $20\%\sim44\%$, 平均为 20% . 其中, 总甲基汞与颗粒态甲基汞在丰水期达显著相关($P<0.01$); 而枯水期却无相关性($r=0.322$, $n=5$). 主要丰水期受强降雨量、悬浮颗粒物数量等共同因素影响.

2.2 沉积物间隙水中不同形态汞分布

在枯水期, 入湖区沉积物间隙水溶解态总汞浓度变化为 $8.6\sim16.5\text{ng/L}$, 平均为 11.4ng/L . 在沉积物表层下 4cm 处溶解态汞具有峰值 16.5ng/L (图 4). 湖心区沉积物间隙水溶解态总汞浓度变化为 $10.5\sim17.3\text{ng/L}$,

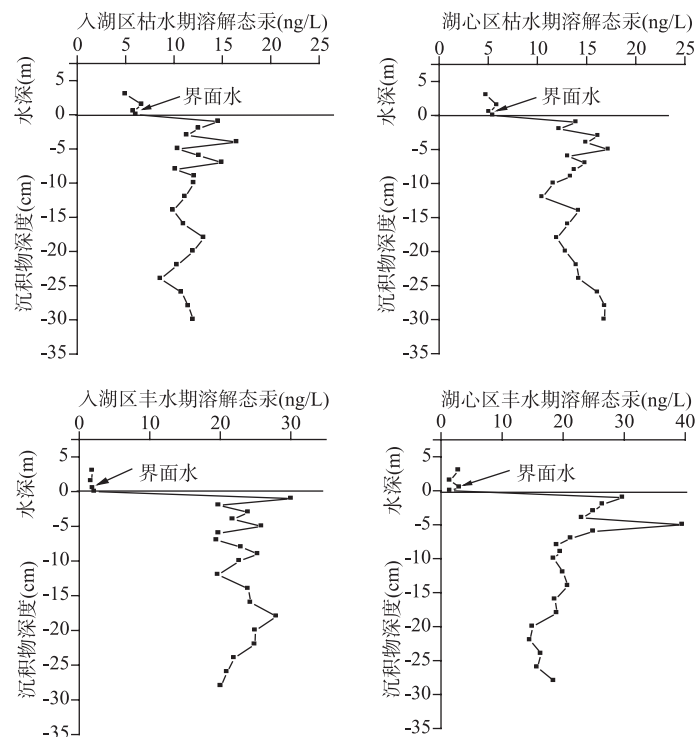


图 4 草海沉积物间隙水溶解态汞的剖面分布

Fig.4 Distributions of HgD in sediment porewater profile in Lake Caohai

平均为 13.5ng/L, 溶解态汞最大值出现在沉积物下 5cm 处; 在丰水期, 入湖区溶解态总汞在 19.5–30.1ng/L 之间, 平均为 23.0ng/L; 湖心区溶解态总汞在 14.6–39.6ng/L, 平均为 21.2ng/L. 入湖区溶解态汞最大值出现在沉积物下 1cm 处, 随沉积深度逐渐降低. 而湖心区在沉积物 5cm 处出现峰值 39.6ng/L, 随后逐渐降低并趋于稳定. 总体而言, 沉积物间隙水溶解态汞浓度(8.6–39.6ng/L, 平均为 17.8ng/L, $n=39$)远高于上覆水体中溶解态汞浓度(0.8–6.7ng/L, 平均为 3.9ng/L, $n=16$), 沉积物与上覆水体间存在浓度梯度, 溶解态汞将从沉积物间隙水中向湖泊水体扩散.

草海沉积物间隙水溶解态甲基汞剖面分布(图 5)可知, 在枯水期, 入湖区沉积物间隙水溶解态甲基汞浓度变化为 0.11–0.58ng/L 之间, 平均为 0.29ng/L, 湖心区变化范围为 0.20–0.65ng/L, 平均为 0.34ng/L. 在丰水期, 入湖区沉积物间隙水溶解态甲基汞变化为 2.2–4.9ng/L, 平均为 3.1ng/L; 湖心区在 2.4–4.8ng/L 范围之间, 平均为 3.4ng/L.

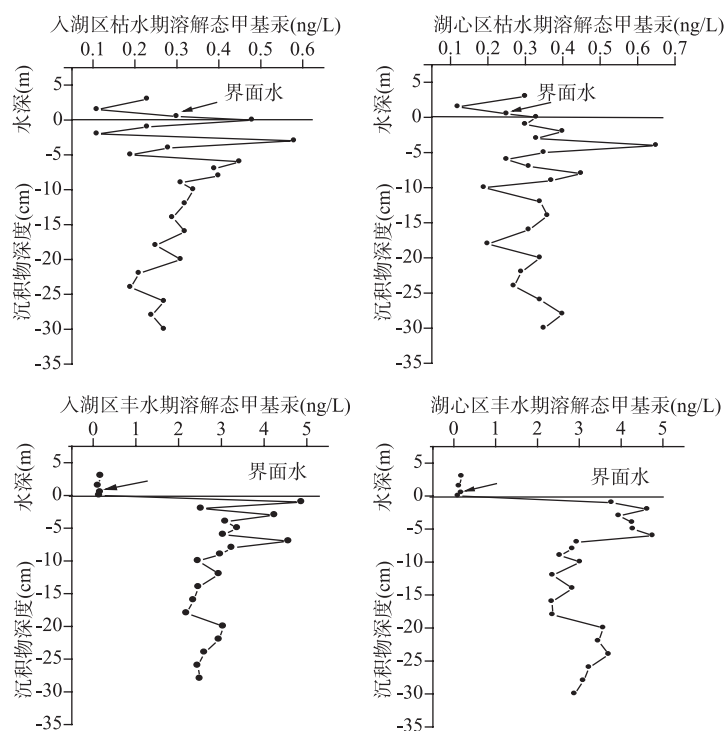


图 5 草海沉积物间隙水溶解态甲基汞的剖面分布

Fig.5 Distributions of MeHgD in sediment porewater profile in Lake Caohai

沉积物间隙水中溶解态甲基汞浓度明显高于上覆水体中溶解态甲基汞浓度, 即沉积物与上覆水体之间存在浓度梯度, 随着季节变化, 夏季湖泊水体分层时, 氧化还原边界层上移, 间隙水中溶解态甲基汞会从沉积物向上覆水体扩散, 从而影响上覆水体甲基汞的浓度^[27-28].

3 结论

(1) 草海表层水体总汞浓度为 1.7–9.0ng/L, 活性汞浓度为 0.06–1.4ng/L, 甲基汞浓度为 0.11–0.67ng/L. 总汞浓度高于世界天然淡水湖泊, 存在一定程度汞污染.

(2) 草海表层水体以溶解态汞为主, 溶解态汞占总汞的比例为枯水期 87%, 丰水期 51%. 溶解态汞、颗粒态汞与总汞均呈显著相关; 表层水体溶解态甲基汞与总甲基汞呈显著相关, 溶解态甲基汞控制总甲基汞的分布.

(3) 草海沉积物间隙水溶解态汞浓度为 8.6–39.6ng/L, 溶解态甲基汞浓度为 0.11–4.9ng/L, 沉积物间隙水溶解态汞与溶解态甲基汞浓度远远高于上覆水体, 成为草海湖水主要汞来源之一.

4 参考文献

- [1] Lindqvist O, Johansson K, Bringmark L *et al.* Mercury in the Swedish environment—Recent research on causes, consequences and corrective methods. *Water Air and Soil Pollut*, 1991, **55**(1-2): xi-261.
- [2] Watras CJ, Frost TM. Little rock lake (Wisconsin): Perspectives on an experimental ecosystem approach to seepage lake acidification. *Arch Environ Contam Toxicol*, 1989, **18**(1-2): 157-165.
- [3] Huggett DB, Steevens JA, Allgood JC *et al.* Mercury in sediment and fish from North Mississippi Lakes. *Chemosphere*, 2001, **42**(8): 923-929.
- [4] 喻元秀. 草海高原湿地区域环境承载力研究[硕士论文]. 贵阳: 贵州师范大学, 2005.
- [5] Feng X, Li G, Qiu G. A preliminary study on mercury contamination to the environment from artisanal zinc smelting using indigenous methods in Hezhang county, Guizhou, China-part1: mercury emission from zinc smelting and its influences on the surface waters. *Atoms Environ*, 2004, **38**: 6223-6230.
- [6] 王雨春, 黄荣贵. SWB-1 型便携式沉积物—界面水取样器的研制. *地球化学*, 1998, **1**: 94-96.
- [7] 蒋红梅, 冯新斌, 梁 琰等. 蒸馏—乙基化 GC-CVAFS 法测定天然水体中的甲基汞. *中国环境科学*, 2004, **24**(5): 568-571.
- [8] 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. *分析测试学报*, 2003, **22**(5): 10-13.
- [9] 何天容. 红枫湖汞的地球化学循环研究[博士论文]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 2007.
- [10] 白薇扬. 阿哈水库中不同形态汞迁移转化研究[硕士论文]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 2006.
- [11] 闫海鱼. 贵州百花湖汞的生物地球化学循环特征的初步研究[博士论文]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 2005.
- [12] Coquery M, Cossa D, Martin JM. The distribution of dissolved and particulate mercury in three Siberian estuaries and adjacent Arctic coastal waters. *Water Air and Soil Pollut*, 1995, **80**(1-4): 653-664.
- [13] Bloom N. Determination of picogram levels of methylmercury by aqueous phase ethylation, followed by cryogenic gas chromatography with cold vapour atomic fluorescence detection. *Can J Fish Aquat Sci*, 1989, **46**(7): 1131-1140.
- [14] Watras CJ, Bloom NS, Claas SA *et al.* Methylmercury production in the anoxic hypolimnion of a dimictic seepage lake. *Water Air Soil Pollut*, 1995, **80**(1-4): 735-745.
- [15] Benoit JM, Mason RP, Gilmour CC *et al.* Constants for mercury binding by dissolved organic matter isolates from the Florida Everglades. *Geochim Cosmochim Acta*, 2001, **65**(24): 4445-4451.
- [16] Galloway ME, Branfireun BA. Mercury dynamics of a temperate forested wetland. *Sci Total Environ*, 2004, **325**(1-3): 239-254.
- [17] Feng X, Hong Y. Modes of occurrence of mercury in coals from Guizhou, People's Republic of China. *Fuel*, 1999, **78**(10): 1181-1188.
- [18] 冯新斌. 环境样品中微量汞的分析方法及贵州省二叠纪龙潭组煤炭中汞的分布规律、赋存状态[博士论文]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 1997.
- [19] 李广辉, 冯新斌, 仇广乐. 贵州省赫章县土法炼锌过程中汞的释放量的初步研究. *环境科学学报*, 2005, **25**(6): 836-839.
- [20] Guimaraes JRD, Meili M, Malm O *et al.* Hg methylation in sediments and floating meadows of a tropical lake in the Pantanal floodplain, Brazil. *Sci Total Environ*, 1998, **213**(1): 165-175.
- [21] Lindberg SE, Zhang H. Air/water exchange of mercury in the Everglades II: measuring and modeling evasion of mercury from surface waters in the Everglades Nutrient Removal Project. *Sci Total Environ*, 2000, **259**(1-3): 135-143.
- [22] Ullrich SM, Tanton TW, Abdrashitova SA. Mercury in the aquatic environment: a review of factors affecting methylation. *Crit Rev Environ Sci Technol*, 2001, **31**(3): 241-293.
- [23] Sella P, Kelly CA, Rudd JWM *et al.* Photodegradation of methylmercury in lakes. *Nature*, 1996, **380**: 694-697.
- [24] Bisogni JJ Jr, Lawrence AW. Kinetics of mercury methylation in aerobic and anaerobic aquatic environments. *J Water Pollut Control Fed*, 1975, **47**(1): 135-152.
- [25] Kotnik J, Horvat M, Fajon V *et al.* Mercury in small freshwater lakes: a case study: Lake Velenje, Slovenia. *Water Air Soil Pollut*, 2002, **134**(1-4): 317-337.
- [26] Gilmour CC, Henry EA. Mercury methylation in aquatic systems affected by acid deposition. *Environ Pollut*, 1991, **71**(2-4): 131-169.
- [27] 万 曦, 万国江, 黄荣贵等. 阿哈湖 Fe, Mn 沉积后在迁移的生物地球化学机理. *湖泊科学*, 1997, **9**(2): 9-14.
- [28] 白薇扬, 冯新斌, 孙 力等. 贵阳市阿哈湖水体和沉积物间隙水中汞的含量和形态分布初步研究. *环境科学学报*, 2006, **26**(1): 91-98.