

白薇扬,冯新斌,孙力,等. 2006. 贵阳市阿哈湖水体和沉积物间隙水中汞的含量和形态分布初步研究[J]. 环境科学学报, 26(1): 91-98
 Bai W Y, Feng X B, Sun L, et al. 2006. The concentration and distribution of different mercury species in the water columns and sediment porewater of Aha Lake[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 26(1): 91-98

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

白薇扬^{1,2}, 冯新斌^{1,*}, 孙力^{1,2}, 何天荣^{1,2}, 付学吾^{1,2}, 蒋红梅^{1,2}

1. 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

2. 中国科学院研究生院, 北京 100039

收稿日期: 2005-07-15 修回日期: 2005-11-02 录用日期: 2005-11-15

摘要: 为了弄清楚酸性矿井废水的排放是否对阿哈湖造成了汞污染, 研究了阿哈湖中汞的各种赋存形态(包括溶解气态汞、活性汞、颗粒态汞、溶解态汞、溶解态甲基汞、颗粒态甲基汞以及沉积物间隙水体的溶解态汞、溶解态甲基汞)及其在水体和沉积物间隙水中的剖面分布。结果显示, 阿哈湖水体中溶解气态汞的浓度为 $0.04 \sim 0.09 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 活性汞浓度为 $0.2 \sim 1.1 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 总汞浓度为 $2.08 \sim 19.14 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 甲基汞浓度为 $0.002 \sim 0.43 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$; 在沉积物间隙水体中溶解态汞浓度为 $1.72 \sim 19.12 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 溶解态甲基汞浓度为 $0.03 \sim 1.57 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。实验数据表明, 溶解态甲基汞浓度在沉积物下 2~5 cm 处最高, 随着深度增加而逐渐降低, 其与硫酸盐还原菌(SRB)分布呈现较好的吻合, 说明水体-沉积物界面是甲基汞的产生地点; 并且在沉积物中高浓度硫酸根浓度高达 $1100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 的条件下, 硫酸根浓度与甲基汞浓度依然一致。

关键词: 阿哈湖; 不同形态汞; 分布; 硫酸盐还原菌(SRB)

文章编号: 0253-2468(2006)01-0091-08 中图分类号: X142 文献标识码: A

The concentration and distribution of different mercury species in the water columns and sediment porewater of Aha Lake

BAI Weiyang^{1,2}, FENG Xinbin^{1,*}, SUN Li^{1,2}, HE Tianrong^{1,2}, FU Xuewu^{1,2}, JANG Hongmei^{1,2}

1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002

2. Graduate School of the Chinese Academy Sciences, Beijing 100039

Received 15 July 2005; received in revised form 2 November 2005; accepted 15 November 2005

Abstract: In order to find out whether Aha Lake was polluted by the acid wasted mining water or not, the concentration and distribution of different mercury species in the water columns and sediment porewater collected from the Aha Lake were investigated. The concentrations of HgT ranged from 2.08 to 19.14 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, DGM ranged from 0.04 to 0.09 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, HgR ranged from 0.2 to 1.1 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ and MeHgT ranged from 0.002 to 0.43 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ in the Aha Lake water columns. In the sediment porewater, however, the concentrations of HgD varied from 1.72 to 19.12 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, and MeHgD ranged from 0.03 to 1.57 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$. The results indicated that highly elevated MeHgD concentrations in the porewater were obtained at the depths from 2 to 5 cm in the sediment profile, and decreased sharply with depth. A positive correlation has been found between MeHgD formation and sulfate-reducing bacterial activity. These highly elevated concentrations of MeHgD obtained in the intersurface between waters and sediments suggesting a favorable methylation conditions. Moreover, even under the conditions of high SO_4^{2-} concentrations, reaching up to $1100 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$, a strong correlation between MeHgD and SO_4^{2-} was observed as well.

Keywords: Aha Lake; mercury species; distribution; sulfate-reducing bacterial(SRB)

自从 20 世纪 50 年代日本熊本县水俣湾附近的渔村发生严重的甲基汞中毒事件以来, 汞作为一种特殊的有毒元素, 备受人们的关注。汞对生态环境的影响及毒性很大程度上依赖于其化学存在形式

(Clarkson, 1998), 其中甲基汞(MeHg)的毒性最强, 能通过血脑屏障和胎盘引起中枢神经系统的永久性损伤和胎儿水俣病。在北美和斯堪的纳维亚半岛, 人们陆续发现甲基汞能在偏远的、尚未开发的

基金项目: 中国科学院知识创新工程(No. KZCX3-SW-443)

作者简介: 白薇扬(1980—), 女, 硕士研究生, E-mail: baiweiy@ mails. gscas. ac. cn; * 通信作者(责任作者), E-mail: fengxinbin@ vip. skleg. cn

Foundation item: Chinese Academy of Sciences and CAS Innovation Project(No. KZCX3-SW-443)

Biography: BAI Weiyang(1980—), female, Master candidate, E-mail: baiweiy@ mails. gscas. ac. cn; * Corresponding author, E-mail: fengxinbin@ vip. skleg. cn

湖泊食物链中产生强烈的生物累积效应(阎海鱼等,2003a;Lindqvist, 1991),因此,对水环境汞污染的研究成为环境领域关注的热点之一(侯亚敏等,2004).

阿哈湖位于贵阳市西南郊8 km,是南明河支流——小车河上游的游鱼河、白岩河、沙河、烂泥河及蔡冲河的汇合处,是一底层滞水带季节性缺氧的中型人工湖,兼具蓄水、供水和防洪功能(万曦,1997).该湖于1958年建坝修库,1982年扩大蓄水面,并开发为城市饮用水源,日供水量 2.3×10^5 t.阿哈湖水库历经多次扩建加高,现校核洪水位1116.13 m,总库容 8.66×10^8 m³;正常蓄水位1110 m,相应库容 5.42×10^8 m³,水面面积4.5 km²,平均水深13 m,最大水深24 m,水输送通量 1.04×10^8 m³·a⁻¹,湖水寄宿时间0.44 a(王雨春等,1998).

阿哈湖汇水区域分布有中小型煤窑200余个.煤窑开采排放的铁、锰酸性矿坑废水和雨水冲刷煤矸石堆形成的淋溶液进入水库,造成湖底沉积物中

铁、锰的持续性蓄积,水体中硫酸根浓度高达 $303.08 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$.由于贵州煤中的汞主要赋存于黄铁矿(Feng *et al.*, 2000),因此,从煤矿排放的酸性矿井水中可能含有大量的汞.为了弄清楚酸性矿井废水的排放是否对阿哈湖造成了汞污染这一问题,进行了阿哈湖湖泊水中汞的不同形态和浓度的研究.

1 采样和样品分析 (Collection and samples analysis)

1.1 样品采集

2005年3月对阿哈湖水库进行样品采集.在湖泊的入湖区和湖心区分别选取了2个采样点(见图1),分别采集不同深度水体样品和不同深度沉积物间隙水样,同时监测相应的水质参数.对湖水水样进行溶解气态汞、活性汞、溶解态汞、颗粒态汞、总汞和溶解态甲基汞、颗粒态甲基汞、总甲基汞的形态及其浓度的测定.对沉积物间隙水进行溶解态汞和溶解态甲基汞的形态和浓度的测定.

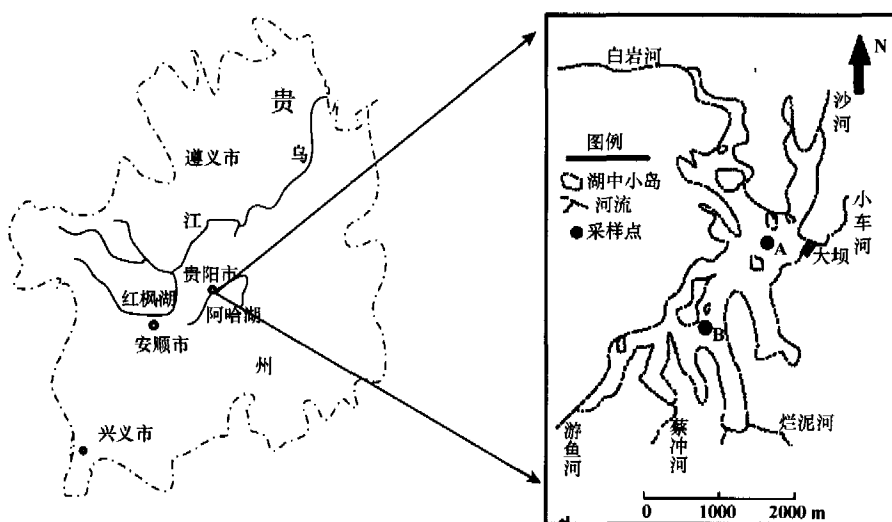


图1 阿哈湖采样点分布图

Fig. 1 Sampling location of Aha Lake

1.1.1 水样采集 水样用低汞的硼硅玻璃瓶盛装,采样前所有器皿都按严格的清洗程序处理(阎海鱼等,2003b).采样点从湖水表层到底层每4 m深度用10 L Nisiki采样器采集水样,水样在现场用0.45 μm (Millipore)滤膜过滤后,装入100 mL的硼硅玻璃瓶内,装样品前,先用少量样品水将样品瓶洗涤3次,同时采集相应深度未过滤水样(蒋红梅等,2004),采集的过滤及未过滤的水样均按0.5%的比

例立即加入经过亚沸蒸馏的 $12 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ HCl溶液,并用双层塑料袋包装后放入木箱中黑暗保存.在所有操作过程中使用一次性聚乙烯手套(蒋红梅等,2004).

所有水样带回实验室后放入冰箱中4℃低温保存,28 d之内分析完毕.

1.1.2 沉积物间隙水的采集 用SWB-1型便携式不扰动湖泊沉积物采样器采集沉积物柱,确保界面

水清澈,沉积物未被扰动(王雨春等,1998).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.界面以下 10 cm 按 1 cm 间距分割,其后的 20 cm 按 2 cm 间距分割,将样品封存入经过酸预处理的 50 mL 塑料离心管,用 parafilm® 密封,低温 4℃ 保存.在 48 h 内用离心方式提取间隙水,提取条件为 4℃ 恒温,转速为 3 000 r·min⁻¹,离心 30 min.离心分离出的间隙水用经过 12 mol·L⁻¹ HCl 处理的注射式过滤器,以 0.45 μm (Millipore) 滤膜过滤(蒋红梅等,2004).

1.2 样品分析

湖水溶解气态汞(GDM)测定:将湖水未过滤水样按 300 mL·min⁻¹ 速率通入无汞高纯氦气 30 min,将溶解气态汞预富集到金管上,用冷原子荧光光谱法进行测定(阎海鱼等,2003b).活性汞(HgR)、溶解态汞(HgD)、总汞(HgT)测定:总汞和溶解态汞分别取未过滤水样和过滤水样各 50 mL 经浓度为 9.0 mol·L⁻¹ 氯化溴 500 μL 氧化后,用浓度为 3.6 mol·L⁻¹ 盐酸羟胺 200 μL 除去其中游离的卤素,用浓度为 2.0 mol·L⁻¹ 氯化亚锡 100 μL 将所有的二价汞还原为 Hg⁰,再由氮气将 Hg⁰ 吹扫捕集于金管上用冷原子荧光光谱法(测汞仪 Tekran2500)进行测定(阎海鱼等,2003b).活性汞用浓度为 2.0 mol·L⁻¹ 氯化亚锡 100 μL 直接还原未过滤水样后,用冷原子荧光法进行测定(阎海鱼等,2003b).

颗粒态汞(HgP)为总汞与溶解态汞的差值.

溶解态甲基汞(MeHgD)和总甲基汞(MeHgT)测定:总甲基汞和溶解态甲基汞分别用未过滤水样和过滤水样经蒸馏-乙基化 GC-AFS 法测定(蒋红梅等,2004).

颗粒态甲基汞(MeHgP)为总甲基汞与溶解态甲基汞的差值.

1.3 其它水质参数

现场用水质参数仪(Hanna 法国)测定了阿哈湖水温,pH 和溶解氧(DO)值(表 1).由表 1 可见春季阿哈湖水体并未出现明显分层,湖水呈弱碱性.

2 结果(Results)

2.1 湖水中不同形态汞分布

图 2 为阿哈湖水体总汞、颗粒态汞及溶解态汞剖面分布.从图中可知阿哈湖水体中总汞浓度变化

表 1 阿哈湖水体水质参数
Table 1 Water quality parameter in Aaha lake

湖心区 A					
水深/m	DO /(mg·L ⁻¹)	pH	θ/℃	TDS /(mg·L ⁻¹)	盐度
0	9.64	7.41	0.7	383	0.4‰
4	8.70	7.7	10.6	383	0.4‰
8	8.50	7.7	10.5	382	0.4‰
12	8.65	7.7	9.2	381	0.4‰
16	8.04	7.7	9.0	382	0.4‰
20	7.86	8.0	8.9	385	0.4‰
24	6.42	7.8	8.9	383	0.4‰
湖心区 B					
水深/m	DO /(mg·L ⁻¹)	pH	θ/℃	TDS /(mg·L ⁻¹)	盐度
0	9.43	7.5	10.7	389	0.4‰
4	9.69	8.0	10.4	384	0.4‰
8	9.55	7.9	10.1	380	0.4‰
12	7.77	7.6	9.6	381	0.4‰
16	7.85	7.5	8.9	381	0.4‰

范围为 2.08 ~ 19.14 ng·L⁻¹,平均为 5.70 ng·L⁻¹;其中,湖心区水体中的总汞浓度变化范围为 2.14 ~ 19.14 ng·L⁻¹,平均为 7.00 ng·L⁻¹,随着水体深度的增加先增加后降低,在 20m 处达到最小值.入湖区总汞浓度变化范围为 2.08 ~ 8.36 ng·L⁻¹,平均为 3.68 ng·L⁻¹;总汞浓度在整个水体上下层变化不大.将阿哈湖水体中总汞浓度与世界上其它天然湖泊相比较(见表 2),可以发现阿哈湖水体中总汞、颗粒态汞及溶解态汞的浓度明显高于其它未受污染的天然湖泊.这主要是因为贵州燃煤导致严重的区域大气污染,大气汞的干、湿沉降造成湖泊内河流汞浓度偏高(Feng *et al.*, 2000),同时,阿哈湖又受到其上游煤窑开采废液和生活污水两方面因素的控制.

从图 2 可知,阿哈湖颗粒态汞浓度为 0.28 ~ 14.80 ng·L⁻¹,平均值为 3.06 ng·L⁻¹.湖心区水体中颗粒态汞的浓度随着水体深度的增加而降低,在水深 12m 处升高,可能是由于汞吸附在该生物活动层的藻类生物颗粒而引起,在接近湖底处达到最大值 14.80 ng·L⁻¹.而入湖区的颗粒态汞的浓度随着水体深度的增加变化不大,与湖心区类似的在湖底处增加达到最大值 4.97 ng·L⁻¹.这种湖底汞浓度增大的现象其原因一方面可能是由于湖底生物扰动使

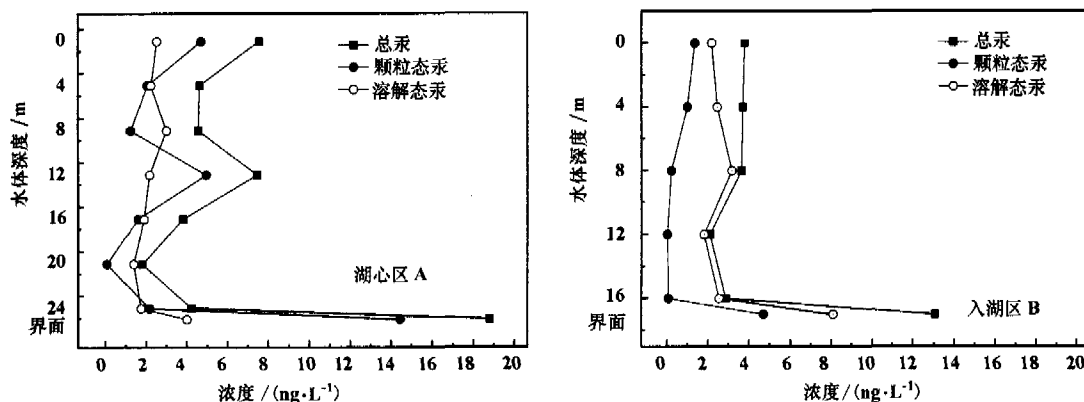


图 2 阿哈湖水体总汞、颗粒态汞及溶解态汞剖面分布
Fig. 2 The distribution of HgT, HgP and HgD in water columns

表 2 阿哈湖水体中不同形态汞浓度与其它天然水体的比较

Table 2 Comparison of Hg concentrations and speciation in the Aha Lake with other nature aquatic systems reported in recent literature

地点	HgT	HgTD	HgP	MeHgT	MeHgD	MeHgP	参考文献
Wisconsin lakes	0.43 ~ 4.79	0.27 ~ 0.45	0.06 ~ 1.27	0.04 ~ 2.2	0.02 ~ 1.95	0.02 ~ 0.19	Watras <i>et al.</i> (1995)
Lake Balaton	1.45 ~ 6.48	1.42 ~ 4.68	0.23 ~ 3.85	0.08 ~ 0.44	0.05 ~ 0.37	0.004 ~ 0.23	Nguyen <i>et al.</i> (2004)
Pettaquamscutt (USA)		0.20 ~ 3.00	0.20 ~ 3.00		0.01 ~ 0.40		Mason <i>et al.</i> (1993)
Belgian coast	0.13 ~ 16.1	0.13 ~ 1.42					Leermakers <i>et al.</i> (2001)
Dover Strait		0.12 ~ 1.34	0.06 ~ 5.36		0.032 ~ 0.188	< 0.038	Cossa <i>et al.</i> (1994)
English Channel	0.15 ~ 0.87			0.015 ~ 0.065			Leermakers <i>et al.</i> (2001)
Baikal (Siberia)	0.14 ~ 0.77			0.002 ~ 0.038			Meuleman <i>et al.</i> (1995)
阿哈湖	2.08 ~ 19.14	2.08 ~ 8.36	0.28 ~ 14.80	0.002 ~ 0.43	0.03 ~ 0.39	0.001 ~ 0.27	本研究

注: HgT 为总汞; HgTD 为溶解态汞; HgP 为颗粒态汞; MeHgT 为总甲基汞; MeHgD 为溶解态甲基汞; MeHgP 为颗粒态甲基汞。

沉积物表层微粒再悬浮(徐毓荣, 1999), 将沉积态汞转变为悬浮态汞, 提高了水体底部颗粒态汞的浓度(蒋红梅, 2004); 另一方面可能是藻类在繁殖过程中, 因群体中细胞数量不断增加而使子体增大而趋于下沉, 在湖底形成累积。

春季阿哈湖水体汞的主要成分为颗粒态汞, 颗粒态汞与总汞浓度比为 12% ~ 77%, 平均为 44%, 颗粒态汞与总汞浓度显著相关 ($R = 0.996, p < 0.05$)。

入湖区的溶解态汞浓度变化范围为 2.08 ~ 8.36 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均为 3.83 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$; 随着水体深度的增加而增加, 在接近湖底处升高达到 8.36 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。而湖心区水体中溶解态汞浓度变化范围为 1.72 ~ 4.35 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均为 2.70 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$; 上下水层浓度基本变化不大, 在接近湖底处增加达到峰值 4.35 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。溶解态汞在接近湖底处达到峰值的现

象主要可能是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, 使间隙水中的可溶性汞向上覆水体释放(徐毓荣等, 1999)。

图 3 为阿哈湖水体溶解性气态汞、活性汞浓度的剖面分布, 从图中可知, 阿哈湖湖心区春季溶解性气态汞的变化范围为 0.042 ~ 0.085 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均 0.062 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$; 入湖区溶解性气态汞的变化范围为 0.038 ~ 0.062 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均 0.049 $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。湖泊中湖心区与入湖区溶解气态汞的分布趋势一致, 均随着水体深度的增加而逐渐下降, 这是由于阳光对于湖表层水溶解气态汞的产生有着直接的重要作用(Feng *et al.*, 2002; Feng *et al.*, 2003)。这一作用主要是在 UV_A 的诱导下产生的生物或光化学过程促成的, 其反应机理可能是在藻类的作用下汞的细胞表面酶的还原作用。 UV_B 只促成 25% 以下的溶解气态汞的产生(张金香, 1996)。

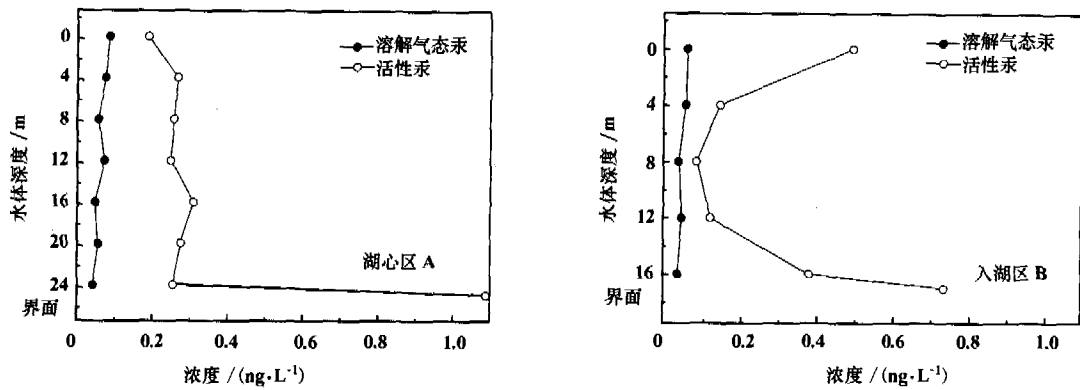


图3 阿哈湖水体溶解气态汞、活性汞浓度的剖面分布
Fig. 3 The distribution of DGM and HgR in water columns

由图3还可以知道,湖心区活性汞变化范围为0.2 ~ 1.1 ng·L⁻¹,均值0.4 ng·L⁻¹,水体中活性汞呈混匀状态,没有明显的差异,但底层水体活性汞有明显增加的趋势.入湖区活性汞变化范围为0.1 ~ 0.7 ng·L⁻¹,均值0.3 ng·L⁻¹,其剖面分布随着深度的增加而逐渐降低后又逐渐递增.由于入湖区地表径流等外源性输入比湖心区要多,换水频率要高,其活性汞浓度略比湖心区低.

解态甲基汞浓度的剖面分布.从图中可知,阿哈湖总甲基汞浓度为0.002 ~ 0.43 ng·L⁻¹,平均值为0.23 ng·L⁻¹.该湖总甲基汞浓度与其它部分天然湖泊甲基汞浓度(见表2)相当.湖心区水体中的甲基汞浓度变化范围为0.002 ~ 0.43 ng·L⁻¹,平均为0.20 ng·L⁻¹,在接近湖底处达到最大值0.43 ng·L⁻¹.入湖区的总汞浓度变化范围为0.06 ~ 0.39 ng·L⁻¹,平均为0.26 ng·L⁻¹.

图4为阿哈湖水体甲基汞、颗粒态甲基汞及溶

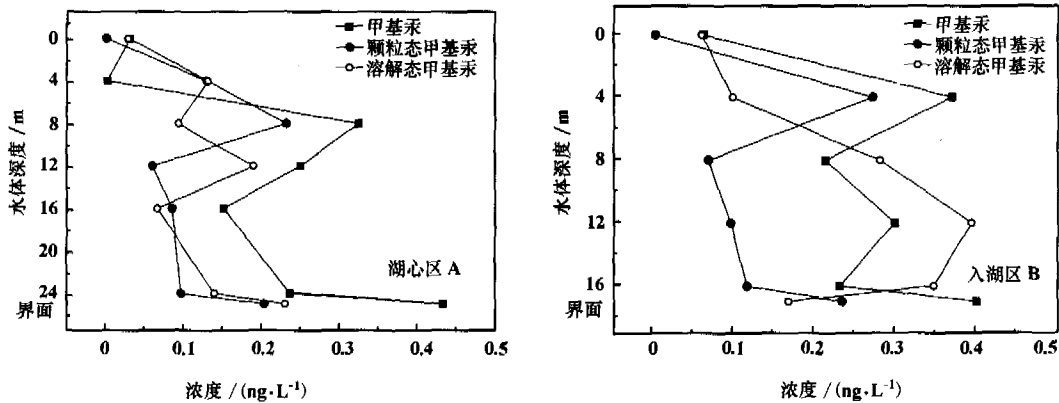


图4 阿哈湖水体甲基汞、颗粒态甲基汞及溶解态甲基汞浓度的剖面分布
Fig. 4 The distribution of MeHg, MeHgP and MeHgD in water columns

湖心区和入湖区水体中颗粒态甲基汞浓度随着水体深度的加深而增加,分别在8m和4m处达到最高浓度0.23 ng·L⁻¹和0.27 ng·L⁻¹.这可能是由于5~10m深处生物活动层中的藻类生物吸附了颗粒态甲基汞,导致该水深段的颗粒态甲基汞浓度均达到最高浓度.而后颗粒态甲基汞浓度随深度增加而逐渐降低,反映了颗粒物在沉降中的溶解.但两采样点颗粒态甲基汞浓度均在接近湖底处再次升

高,归因于湖底沉积物的再悬浮.颗粒态汞由无机态颗粒汞和有机态颗粒态汞以及源于生物(如细菌,海藻和浮游生物)的颗粒态汞所组成.无机态颗粒汞主要是与矿物微粒和岩屑组织物所结合的汞,但是甲基汞主要吸附于源于生物的颗粒物质(Kudom *et al.*, 1976).在淡水湖中,汞和甲基汞的分布主要被水体中颗粒物吸附或解吸以及在水体-沉积物边界的氧化还原环境所控制.因此,在淡

水系统中颗粒态悬浮物对甲基汞的移动起重要的作用(Lawson, 2001; Mason, 1998; Mason, 1999).

由水质参数表可见,两采样点深度方向上溶解态甲基汞的浓度变化不大.湖心区在水体中的溶解态甲基汞平均浓度为 $0.13 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,其变化趋势随着水体深度的加深逐渐升高,在底部达到最高浓度 $0.23 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$.入湖区在水体中的溶解态甲基汞平均浓度为 $0.22 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,其变化趋势类似湖心区随水体深度加深逐渐增加,在 12 m 处达到最高浓度 $0.39 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$.

2.2 沉积物间隙水中不同形态汞的分布

图 5 为阿哈湖沉积物间隙水溶解态汞浓度的剖面分布.

从图中可知,阿哈湖湖心区沉积物间隙水中溶解态汞浓度变化为 $2.70 \sim 11.55 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均为 $6.74 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,在沉积物表层下 1 cm 处溶解态甲基汞具有峰值 $11.55 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,随着沉积物的深度增加溶解态汞浓度呈现逐渐降低的趋势.入湖区沉积物间隙水中溶解态总汞浓度变化为 $3.09 \sim 19.12 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均为 $5.94 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,溶解态汞最大值 $19.12 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 出现在沉积物下 4 cm 处.总的说来,沉积物中的溶解汞浓度远远高于水体中的溶解汞浓度,沉积物与水体间存在着溶解汞浓度梯度,溶解态汞将从沉积物间隙水中向湖泊水体中扩散.

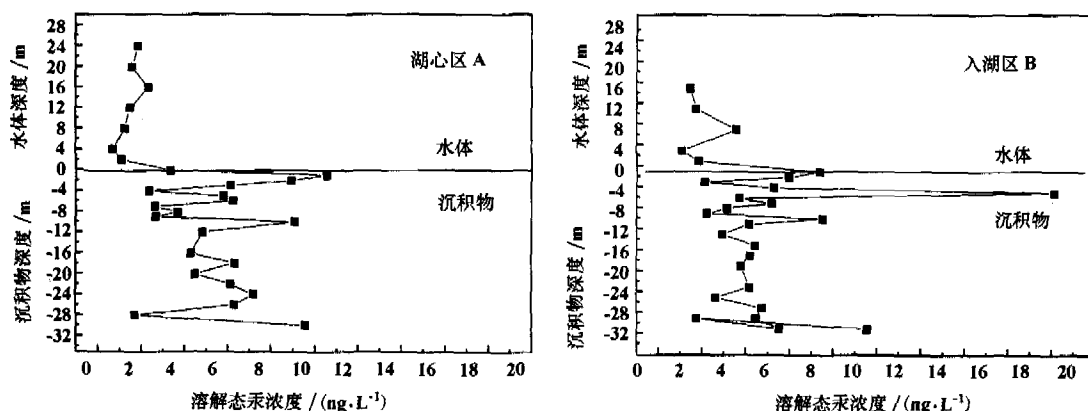


图 5 阿哈湖沉积物间隙水溶解态汞剖面分布

Fig. 5 The distribution of HgD in sediment porewater profile

图 6 为阿哈湖沉积物间隙水溶解态甲基汞剖面分布.从图中可知,春季阿哈湖湖心区沉积物间隙水中溶解态甲基汞浓度变化为 $0.07 \sim 1.29 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均为 $0.46 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$;入湖区沉积物间隙水中溶解态甲基汞浓度变化为 $0.06 \sim 1.57 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均为 $0.72 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$.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的浓度,即沉积物与上覆水体之间存在着浓度梯度.随着时间的推移,夏季将发生湖泊分层,伴随湖底缺氧,氧化还原边界层上移进入湖水中(万曦等, 1997),间隙水中溶解态甲基汞就会从沉积物向上覆水体扩散,进而影响上覆水体中甲基汞的浓度.

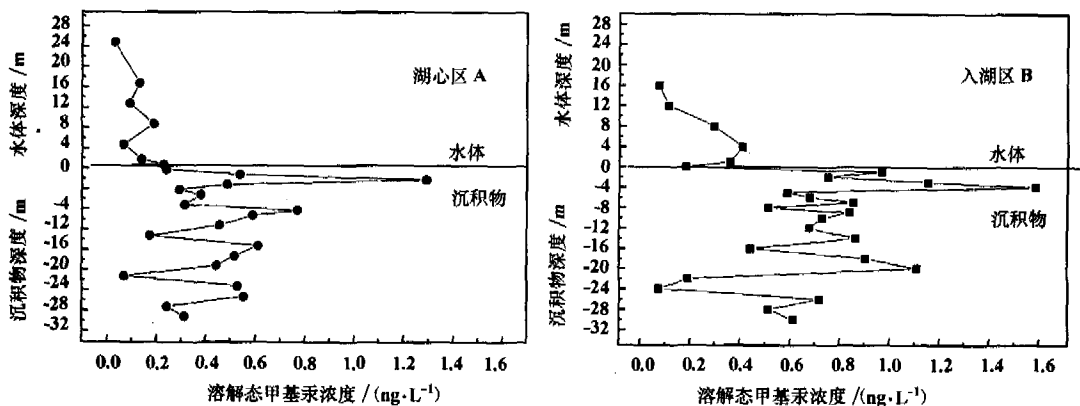


图 6 阿哈湖沉积物间隙水溶解态甲基汞剖面分布

Fig. 6 The distribution of MeHgD in sediment porewater profile

2.3 沉积物-水界面硫酸盐还原菌分布

表3为阿哈湖沉积物-水界面硫酸盐还原菌分布。从表3可以看出,硫酸盐还原菌(SRB)的分布在水界面下2 cm附近活性最强,硫酸盐的还原速率达到最大,随着深度的增加,硫酸盐还原菌数量减少,还原速率也逐渐减小。受硫酸盐还原菌分布的控制,阿哈湖沉积物-水界面硫酸盐还原作用发生在沉积物表层以下几厘米范围内(汪福顺等,2003),湖心区沉积物间隙水的溶解态甲基汞在表层沉积物下3 cm处具有峰值 $1.29 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,与入湖区沉积物间隙水中溶解态甲基汞峰值 $1.57 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 出现在表层沉积物下4 cm处形成很好的吻合。因为春季阿哈湖的氧化还原层在沉积物以下几厘米(万国江等,2001;徐毓荣等,1998),许多种类的硫酸盐还原菌能在适度厌氧环境下将汞甲基化(Benoit, 1999; King *et al.*, 1997),这些峰值表明了硫酸盐还原菌产生甲基汞地点,硫酸盐还原菌是甲基化进程的主要贡献者。

表3 阿哈湖沉积物-水界面硫酸盐还原菌分布(汪福顺等,2003)

Table 3 Distribution of SRB in the sediment-water interface of Aha lake

深度/cm	SRB (10^4 个 g^{-1})	SO_4^{2-} / ($\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)
0	2.2	
1	22	1200.0
2	103	
4	5	1100.0
6	8	890.8
8	<1	469.9
10	<1	515.7
12	<1	402.0
14	4	451.3
16	<1	500.0

Gilmour 提出了沉积物中无机汞被硫酸盐还原菌(SRB)甲基化时的合适硫酸根(SO_4^{2-})浓度为 $0.2 \sim 0.5 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$,高于该值时甲基化进程将被抑制。由表3所见,阿哈湖中的硫酸根浓度远远大于 Gilmour 等人所提出的适宜浓度,但是其甲基汞发生层与硫酸盐还原菌和硫酸根浓度分布依然大致相同,然而,由于沉积物表层以下几厘米是生物的分解还原层,并且很多重金属元素在此层富集,所以淡水湖泊中硫酸根对与甲基汞形成的适宜浓度范围扩大的可能性有待于进一步的研究证实。

3 结论(Conclusions)

1)阿哈湖水体中溶解气态汞的浓度为 $0.04 \sim 0.09 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,活性汞浓度为 $0.2 \sim 1.1 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,总汞浓度为 $2.08 \sim 19.14 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,甲基汞浓度为 $0.002 \sim 0.43 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

2)阿哈湖沉积物间隙水体中溶解态汞浓度为 $1.72 \sim 19.12 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$,溶解态甲基汞浓度为 $0.03 \sim 1.57 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 。

3)阿哈湖溶解态甲基汞浓度在沉积物下2~5 cm处最高,随着深度增加逐渐降低,与硫酸盐还原菌(SRB)分布呈现较好吻合。

4)沉积物间隙水中的总汞和甲基汞浓度远远高于水体,为季节性缺氧湖向库水释放溶解态汞和甲基汞提供了物质源,已成为二次污染源。

5)研究发现淡水湖泊中硫酸根对与甲基汞形成的适宜浓度范围扩大存在着可能性,有待于今后进一步的研究证实。

References:

- Alberts J J, Schindler J E, Miller R W. 1974. Elemental mercury evolution mediated by humic acid[J]. *Science*, 184: 895
- Benoit J M., Gilmour C C, Mason R P. 1999. Sulfide controls on mercury speciation and bioavailability to methylating bacteria in sediment pore waters[J]. *Environ Sci Technol*, 33:951
- Clarkson T W. 1998. Human toxicology of mercury[J]. *Trace Elem Exp Med*, 11:303
- Cossa D, Sayman J, Noel J. 1994. Mercury transport in the waters of the Straight of Dover[J]. *Mar Pollut Bull*, 28:381
- Feng X B, Hong Y T, Hong B. 2000. Mobility of some Potentially Toxic Trace Elements in the Coal of Guizhou, China[J]. *Environmental Geology*, 39(3-4):372-377
- Feng X B, Shang L H. 2003. Total gaseous mercury in the air of Guiyang PR China[J]. *The Science of the Total Environment*, 304:61-72
- Feng X B, Sommar J, Lindqvist O. 2002. Occurrence, emissions and deposition of mercury during coal combustion in the province Guizhou, China[J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 139:311-324
- Feng X B, Sommar J. 2002. Exchange flux of total gaseous mercury between air and natural water surfaces in summer season [J]. *Science in China Series D*, 45(3):211-220
- Fitzgerald W F, Mason R P, Vandal G M, *et al.* 1994. Air-water cycling of mercury in lakes [J]. *Mercury Pollution Integration and Synthesis*, 3:203-220
- Gilmour C C., Henry E A. 1991. Mercury methylation in aquatic systems affected by acid deposition[J]. *Environ Pollut*, 71: 131
- Nguyen H L. 2004. Mercury distribution and speciation in Lake Balaton [J]. *Hungary Science of the Total Environment*, 35:421-454
- Hou Y M, Feng X B, Qiu G L, *et al.* 2004. Distribution of Different

- Species of Mercury in Baihua Lake, Guizhou Province[J]. *Journal of Lake Sciences*, 16(2):125—132(in Chinese)
- Jiang H M, Feng X B, Dai Q J, *et al.* 2004. Preliminary Study on Speciation And Distribution Of Mercury In Wujiang River [J]. *Environmental Chemistry*, 23(5):556—561 (in Chinese)
- Jiang H M, Feng X B, Liang L, *et al.* 2004. Determination of methyl mercury in waters by distillation-GC-CVAFS technique[J]. *China Environmental Science*, 24(5):568—571(in Chinese)
- King J K, Kostka J E, Frischer M E, *et al.* 1997. Sulfate-reducing bacteria methylate mercury at variable rates in pure culture and in marine sediments[J]. *Appl Environ Microbiol*, 66:2430
- Kudom A, Miller D R, Townsend D R, *et al.* 1976. Laboratory investigation of mercury transport through bed sediment movement [J]. *Environmental Biogeochemistry*, 31: 499—511
- Lawson N M, Mason R P, Laporte J M. 2001. The fate and transport of mercury, methylmercury, and other trace metals in Chesapeake Bay Tributaries[J]. *Water Res*, 35: 501
- Leermakers M, Galletti S, De Galan S, *et al.* 2001. Mercury in the southern North Sea and Scheldt Estuary[J]. *Mar Chem*, 75:22—48
- Lindqvist O (Ed). 1991. Mercury in the Swedish environment-recent research on cause, consequence and corrective methods[J]. *Water, Air and Soil pollution*, 55:1—25
- Mason R P, Sullivan K A. 1999. The distribution and speciation of mercury in the South and equatorial Atlantic [J]. *Deep-Sea Res*, 46:937
- Mason R P, Sullivan K A. 1998. Mercury and methylmercury transport through an urban watershed [J]. *Water Res*, 32: 321
- Mason R, Fitzferald W Hurlley J, Donaghay P, *et al.* 1993. Mercury biogeochemical cycling in a stratified estuary[J]. *Limnol Oceanogr*, 38(6):1227—1233
- Meuleman C, Leermakers M, Baeyens W. 1995. Mercury speciation in Lake Baika[J]. *Water Air Soil Pollut*, 80:539
- WAN G J, HU Q L, CAO L, *et al.* 2001. Resource Exploitation-Environmental Disaster-Geochemistry: An Example From Fe and Mn Pollution in Lake Aha, Guizhou Province [J]. *Earth Science Frontiers*, 4(8):353—358(in Chinese)
- Wan X, Wan G J, Huang R G, *et al.* 1997. Biogeochemical Effect on Postdepositional Remobilization of Fe-Mn in Lake Aha, Guizhou Province[J]. *Journal of Lake Sciences*, 9(2):9—14(in Chinese)
- Wang F S, Liu C Q. 2003. A Study on Sulphate redox Microorganism and Its Isotope Near the Lacustrine Sediment-Water Interface in Lake Aha [J]. *Quaternary Sciences*, 23(5):43(in Chinese)
- Wang Y C, Huang R G, Wan G J. 1998. A Newly Developed Sampler for Collecting Samples Near the Lacustrine Sediment-Water Interface [J]. *Geology-Geochemistry*, (1):94—96 (in Chinese)
- Watras C J, Morrison K A, Host J S, *et al.* 1995. Concentration of mercury species in relationship to other site-specific factors in the surface waters of Northern Wisconsin Lakes[J]. *Limnol Oceanogr*, 40:556—650
- Xu Y R, Xu Z J, Xiang S. 1999. Vertical distribution of Fe and Mn and optimal pumping depth in a seasonal oxygen shortage reservoir[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 19(2):147—152 (in Chinese)
- Yan H Y, Feng X B, Shang L H, *et al.* 2003a. Speciation Analysis of Ultra Trace Levels of Mercury in Natural Waters [J]. *Journal of Instrumental Analysis*, 22(5): 10—13 (in Chinese)
- Yan H Y, Feng X B, Shang L H, *et al.* 2003b. Biogeochemical Cycling of Mercury in Alkaline Lakes in Acid Deposition Areas and Its Biogeochemical Significance [J]. *Geology-Geochemistry*, 31(3): 58—62(in Chinese)
- Zhang J X. 1996. The Photosynthesis Formation of Dissolution Gaseous Mercury in Lake[J]. *Environmental Science Technique*, (2):16—22(in Chinese)
- 中文参考文献:**
- 侯亚敏,冯新斌,仇广乐,等. 2004. 贵州百花湖表层水中不同形态汞的分布规律[J]. *湖泊科学*, 16(2):125—132
- 蒋红梅,冯新斌,戴前进,等. 2004. 乌江流域水体中不同形态汞分布特征的初步研究[J]. *环境化学*, 23(5):556—561
- 蒋红梅,冯新斌,梁珺,等. 2004. 蒸馏-乙基化 GC-CVAFS 法测定天然水体中的甲基汞[J]. *中国环境科学*, 24(5):568—571
- 万国江,胡其乐,曹龙,等. 2001. 资源开发环境灾害地球化学——以贵州阿哈湖铁、锰污染为例[J]. *地学前缘*, 4(8):353—358
- 万曦,万国江,黄荣贵,等. 1997. 阿哈湖 Fe, Mn 沉积后在迁移的生物地球化学机理[J]. *湖泊科学*, 9(2):9—14
- 汪福顺,刘从强. 2003. 阿哈湖沉积物-水界面硫酸盐还原作用的微生物及其同位素研究[J]. *第四纪研究*, 23(5):43
- 王雨春,黄荣贵,万国江. 1998. SWB-1 型便携式沉积物-界面水取样器的研制[J]. *地质地球化学*, (1):94—96
- 徐毓荣,徐钟际,向申. 1999. 季节性缺氧水库铁、锰垂直份规律及优化分层取水研究[J]. *环境科学学报*, 19(2):147—152
- 阎海鱼,冯新斌,商立海,等. 2003a. 酸沉降区域碱性湖泊中汞的生物地球化学循环演化研究意义[J]. *地质地球化学*, 31(3): 58—62
- 阎海鱼,冯新斌,商立海,等. 2003b. 天然水体中痕量汞的形态分析方法研究[J]. *分析测试学报*, 22(5): 10—13
- 张金香. 1996. 湖水中溶解气态汞的光诱导形成[J]. *环境科学技术*, (2):16—22