

青藏高原中汞的分布特征及影响因素

——以典型海洋性冰川小流域为例

吴飞¹,张福栋¹,王训²,李秋华^{1*},江帆¹ (1.贵州师范大学,贵州省山地环境信息系统和生态环境保护重点实验室,贵州 贵阳 550001; 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,贵州 贵阳 550082)

摘要: 本研究以青藏高原典型海洋性冰川的雪冰-径流水为研究对象,分析讨论了雪冰-径流水中汞浓度变化趋势及控制因素。结果表明,贡嘎山冰川中雪、冰样品的 THg 浓度略高于全球背景值,而明永冰川以及米堆冰川的雪、冰、水样品均处于全球背景水平。3 个冰川所有雪样、冰样、水样的 THg 浓度平均值分别为(4.78±5.99) ng/L、(1.72±1.15) ng/L、(1.31±0.91) ng/L。不同的环境介质中 THg 浓度变化总体表现为:雪>冰>水,其主要受颗粒汞沉淀作用及气态单质 Hg 挥发作用的控制。贡嘎山的径流水中 THg 浓度表现为六月最高(7.48±2.22) ng/L,十一月最低(1.39±0.27) ng/L。所有雪冰-径流水体系中 HgP 与 THg 存在显著的正相关关系,雪中 HgP/THg 最高,其次为冰,最低为径流水。贡嘎山径流水中的 HgP/THg 及月均 THg 输出变化趋势受径流量和降雨量的影响。主成分分析表明了本研究区域雪冰中 THg 浓度主要受大气颗粒物沉降及季风传输的影响。此外,相比于其他 2 个冰川,贡嘎山冰川由于更加靠近人类活动密集区域,更易受到人类活动的影响。

关键词: 海洋性冰川; 颗粒汞; 雪-冰-径流; 季风

中图分类号: X820 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2019)11-4776-09

DOI:10.19674/j.cnki.issn1000-6923.2019.0557

Distribution characteristics and influencing factors of mercury in Tibetan Plateau-Examples from typical marine glacial small watersheds. WU Fei¹, ZHANG Fu-dong¹, WANG Xun², LI Qiu-hua^{1*}, JIANG Fan¹ (1.Key Laboratory for Information System of Mountainous Area and Protection of Ecological Environment of Guizhou Province, Guizhou Normal University, Guiyang 550001, China; 2.State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550082, China). *China Environmental Science*, 2019,39(11): 4776~4784

Abstract: In this study, Hg and its speciation in snow, ice and streamflow in three typical tibetan marine glaciers were investigated to understand the controlling factors during Hg transport processes. Results show that THg (total Hg) concentrations of snow and ice samples in Gongga Glacier were slightly higher than the values of global background, while values in Mingyong Glacier and Midui Glacier were at the global background levels. The average THg concentrations of all snow, ice and water samples of three glaciers were (4.78±5.99) ng/L, (1.72±1.15) ng/L, (1.31±0.91) ng/L, respectively. The variation of THg concentration was in snow > in ice > in water. Such trend was mainly controlled by the processes of sedimentation of particulate Hg and the volatilization of gaseous elemental Hg. The THg concentration in the streamflow of Gongga was the highest in June (7.48±2.22) ng/L and the lowest in November (1.39±0.27) ng/L. The HgP was significantly correlated to the THg, and HgP/THg was the highest in snow, followed by ice, and the lowest in streamflow. The variation of HgP/THg and monthly average THg output in the streamflow of Gongga Mountain were controlled by streamflow and rainfall intensities. Principal component analysis further indicates that the THg concentration in snow and ice was mainly affected by atmospheric particulate deposition and monsoon transport. Compared with the other two glaciers, Gongga Glacier was more susceptible to influence by human activities because of much closer to the intensive populated areas.

Key words: marine glaciers; particulate mercury; snow-ice-streamflow; monsoon

汞(Hg)是一种可通过食物链积累与放大对生态系统产生毒害效应的全球性污染物^[1-3]。正是由于发现北欧与美洲偏远湖泊中鱼汞浓度超过食用安全标准及北极地区观察到的大气汞的损耗事件,引起了研究人员对偏远地区 Hg 的迁移转化、归趋及环境毒害作用的广泛关注^[4-7]。青藏高原是中低纬度地区最大的高山冰川汇集区^[8-9],也是众多大江大河的发源地,同时还是 Hg 及其他全球性污染物影响的敏感区域^[10]。全球气候变暖加速高山冰川的消融,增加

河流的径流量,同时可能释放出原本固封在冰川中的 Hg。雪冰-径流体系中汞的迁移、富集与转化,关系到青藏高原及其下游水生生态系统汞污染的环境生态风险。

雪、冰作为大气和水生生态系统之间的过渡介

收稿日期: 2019-04-30

基金项目: 国家自然科学基金项目(41563012),黔科合平台人才([2018]5805),黔教合 KY 字([2017]032)

* 责任作者, 教授, qihua2002@126.com

质,在 Hg 的生物地球化学循环中有着至关重要的作用.目前对于 Hg 在北欧与北美的极地区域雪-冰-径流水中的分布及迁移转化认识最为清楚^[11-12],近年来对青藏高原腹地冰川小流域的汞分布特征与影响因素的认识也取得较大进展,Sun 等^[13]、Paudyal 等^[14]和 Huang 等^[15]在青藏高原区域的研究表明冰川融水释放的汞是下游流域和湖泊一个重要来源,但对青藏高原东部与东南部的海洋性冰川小流域的迁移和转化关注度仍不够.在暖湿气流的影响下,青藏高原东部与东南部的海洋性冰川小流域的水热条件,显然有别于青藏高原腹地冰川小流域^[16-17],且特殊地理位置使其更容易受到中国中西

部与东南亚、南亚等区域人为源汞排放的多重影响.本研究选取了水热条件逐渐递减与地理位置向青藏高原腹地靠近的 3 个典型的海洋性冰川的雪冰-径流水体系为研究对象,详细分析了汞在贡嘎山冰川小流域的月变化并比较不同区域冰川雪冰-径流水中汞形态分布特征差异及其影响因素,为未来进一步认识全球变暖下青藏高原冰冻圈汞生物地球化学循环与潜在的生态风险研究提供基础数据与理论依据.

1 材料与方法

1.1 研究区域概况

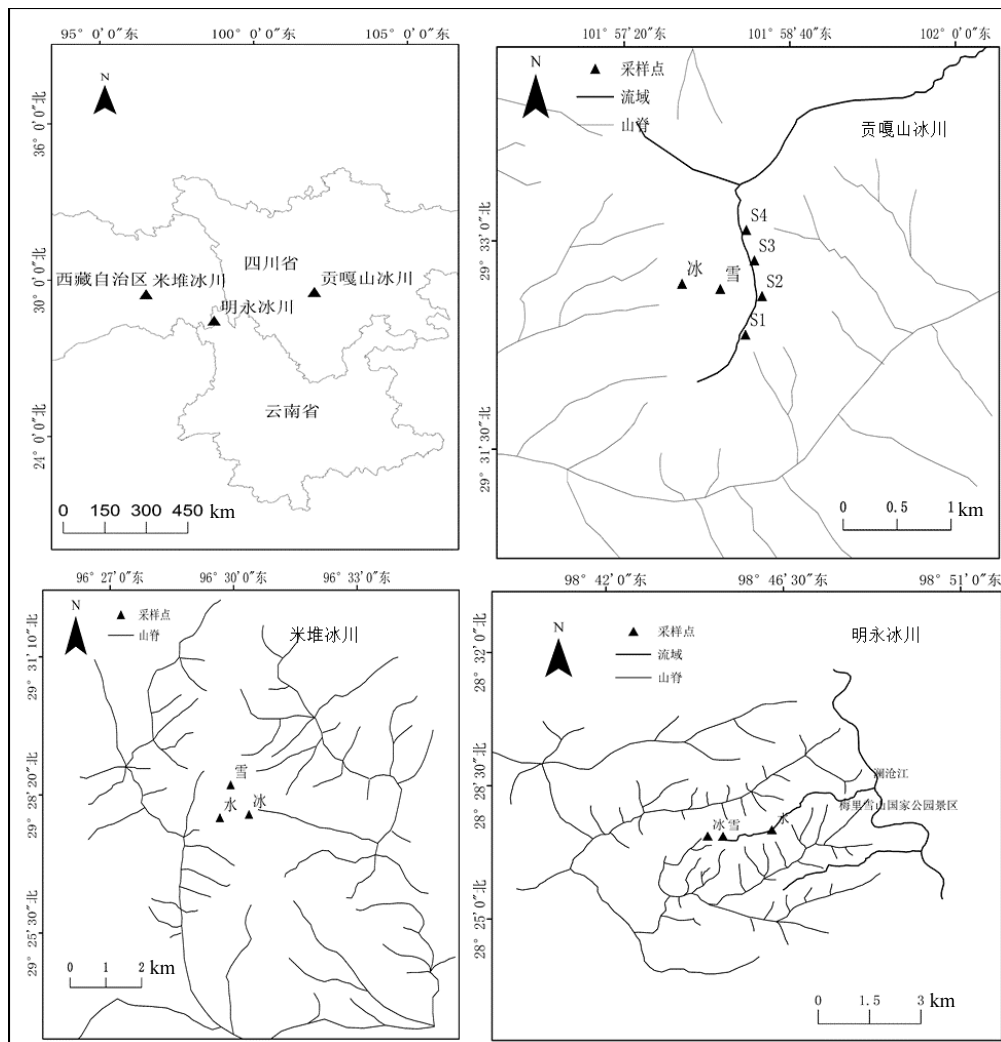


图 1 采样点的位置分布

Fig.1 Descriptions of sampling sites

本研究选取贡嘎山冰川、明永冰川和米堆冰川为研究对象,其相应的地理位置与各自冰川区域采

样点的分布如图 1 所示.青藏高原的海洋性冰川主要分布在西藏东南部与横断山脉等海洋性气候区.

上述区域的贡嘎山冰川、明永冰川与米堆冰川的冰川面积、冰川发育程度与冰的储量在中国的海洋性冰川中都具有典型的代表性^[18].与前人在青藏高原腹地的冰川小流域进行的研究相比^[13-15],本研究选取的冰川更容易受到海洋性季风与人为源排放的多重影响.

贡嘎山冰川位于青藏高原与四川盆地的交界地区,其主峰海拔高 7556m.本研究的采样点位于贡嘎山东坡的海螺沟内(29°20'N,101°30'E),海螺沟年均气温随海拔增加而递减,在 1600m 处为 13℃,而 3000m 处为 4℃;降雨多集中在 5~10 月,海拔 1600m 处年降水为 1000mm,海拔 3000m 处为 1900mm,属于典型的亚热带季风气候区.

明永冰川位于云南迪庆的香格里拉(28°27'N, 98°45'E)梅里雪山区域.其中梅里雪山超过海拔 6000m 的山峰 3 座,雪线海拔 4800~5200m 处的年平均气温-3~5℃,年降雨量约为 1500mm.明永冰川是云南省最大,最长,末端海拔最低的山谷冰川^[19].

米堆冰川位于波密县玉普乡境内(29°28'N, 96°30'E),其主峰海拔 6800m,雪线海拔 4600m,年均降雨量 835mm,其中 4~9 月降水量约占全年降雨量的 74.9%.全年平均气温为 8.7℃,其中 1 月最低月平均气温为 0.2℃,7 月最高月平均气温为 16.6℃^[20].

1.2 样品的采集

本研究于 2018 年 5 月对贡嘎山冰川,于 12 月对明永以及米堆冰川进行系统的采样.样品的采集主要包括表层雪、表层冰及径流水.其中贡嘎山冰川在海拔 3600m 处设置了 S1、S2、S3、S4 等 4 个径流水样点,并在 2018 年 6~11 月进行每月一次的固定径流水样的采集.

样品采集过程中全程佩戴一次性手套,每采集一个样品更换一次手套.采集表层雪样时先用特氟龙勺子铲去表层有明显污染的雪样,再收集 0~5cm 雪样于 500mL 的特氟龙瓶子中.进行表层冰样的采集时,将采样锤使用一次性保鲜膜包裹 3 层之后,除去表层有明显污染的冰样,再收集 0~5cm 的冰样保存于 500mL 的特氟龙瓶子中.对径流水样采集时,首先用径流水对特氟龙采样瓶进行润洗 2~3 次后,再收集水样.将径流水样品分为 2 份,一份经 0.45 μ m 的滤膜过滤,另一份无过滤操作,然后向 2 份样品中各加入 0.4% 工艺超纯盐酸,并保存于 4℃ 的收纳箱中;

雪冰样品待其融化,将雪冰水同样分为 2 份,一份经 0.45 μ m 的滤膜过滤,另一份无过滤操作,向 2 份样品中各加入 0.4% 工艺超纯盐酸,并保存于 4℃ 的收纳箱中.所有的雪冰样品均采集 3 个平行样品.

1.3 样品的处理及分析

样品的总汞(THg),溶解态汞(HgD)的测定采用 BrCl 氧化-SnCl₂ 还原-金管富集-两次金汞齐冷原子荧光光谱法进行测定^[21-22],样品在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使用 CVAFS、Tekran 2500 完成测试,该方法的最低检测限为 0.02ng/L.为了保证数据的准确性,测试过程中每 5 个样品加入一个总汞质量浓度为 1ng/L 的标准溶液,结果测得其回收率在 95%~105%.同时测试了仪器的空白样<0.2ng/L,野外空白样<0.1ng/L,以及容器空白样<0.1ng/L,其中颗粒态汞(HgP=THg-HgD)为总汞与溶解态汞的差值.微量金属元素的测定也在中国科学院环境地球化学研究所环境地球化学国家重点实验室完成.采用美国 PE 公司的 NexION 300X 型号 ICP-MS,以 Ce²⁺作为激发离子源,仪器精误差小于 3%.每次微量元素测定的过程中,须采用 1%的 HNO₃ 清洗,以保证测样时空白信号残余低于 0.1%.另外,汞及其微量元素的测定过程中,每 10 次测样,均加标 1 次,加标的回收率控制在 95%~105%.数据的分析作图通过 EceL2016、SPSS24.0、ArcMap10.2 与 Origin9.0 完成.

2 结果与讨论

2.1 雪-冰-径水体系中汞及其形态分布特征

由图 2a 可知,贡嘎山冰川的所有雪、冰、水样品 THg 浓度在 2.33~11.69ng/L 之间,最大值和最小值分别出现在雪样和水样中,其浓度分别为(11.69 \pm 1.00)和(2.33 \pm 0.29)ng/L,THg 浓度总体表现为雪>冰>水,且雪与冰、雪与水、冰和水之间存在显著性差异($P<0.05$).明永冰川的雪、冰、水样品 THg 浓度在 0.58~1.73ng/L 之间,最大值和最小值分别出现在表层雪样和水样中,其浓度分别为(1.73 \pm 0.07)和(0.58 \pm 0.21) ng/L,THg 浓度表现出雪>冰>水,且雪与冰、雪与水、冰和水之间存在显著性差异($P<0.05$).米堆冰川的雪、冰、水样品 THg 浓度在 0.88~1.08ng/L 之间,最大值和最小值分别出现在冰样和水样中,其浓度分别是(1.08 \pm 0.15)和(0.88 \pm 0.16) ng/L,

THg 浓度在冰、水、雪中无显著差异。

3 个冰川所有的表层雪样 THg 浓度在 0.88~11.69ng/L($n=9$)之间,平均值为(4.78±5.99) ng/L.所有的冰样 THg 浓度在 1.03~3.05ng/L($n=9$)之间,平均值为(1.72±1.15)ng/L.所有的水样浓度在 0.58~2.33ng/L($n=25$),平均值为(1.31±0.91) ng/L.在雪、冰、水等不同的环境介质中样品的 THg 浓度表现为表层雪>冰>水.与孙学军等^[23]在扎当冰川-曲嘎切流域所研究结果相似,即:雪坑样品 THg>流域内水体 THg.这可能与雪冰融化形成径流的过程中,HgP 发生沉淀作用以及雪、冰、水中气态单质 Hg 再释放作用(即沉降越久的汞,再释放的气态单质 Hg 也就越多)^[13,24]相关。

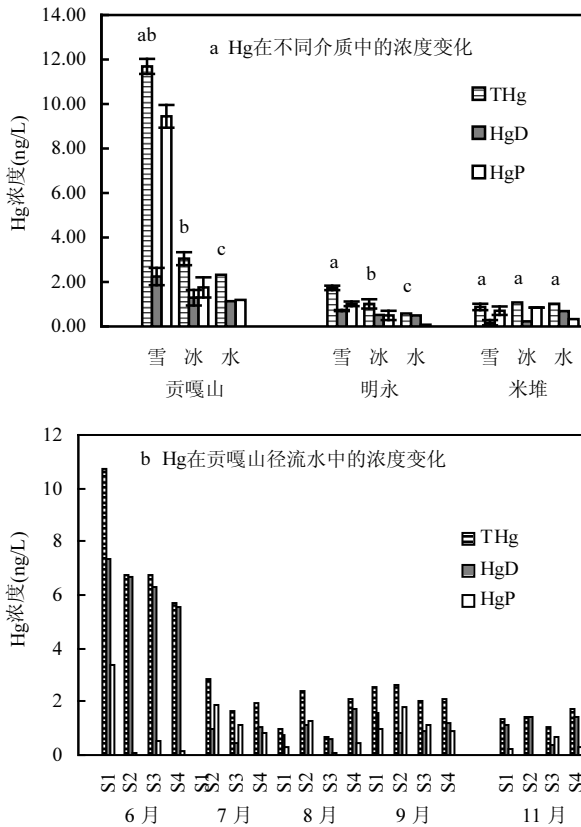


图 2 雪冰-径流水中 Hg 浓度分布。

Fig 2 The Hg concentration variations in snow-ice-streamflow

每个地区雪冰水 THg 浓度之间的统计差异由字母 a,b,c 表示

2018 年 6~11 月期间贡嘎山冰川的径流水分析结果如图 2b 所示,径流水样品的 THg 浓度在 0.71~10.72ng/L 之间,平均值为(3.03±2.77)ng/L.在已采集到的样品中,径流水月均 THg 浓度表现为 6 月最高

(平均浓度为(7.48±2.22)ng/L),而 11 月最低(平均浓度为(1.39±0.27)ng/L).其中 6 月径流水中 THg 浓度平均值是其他月份平均值(1.86±0.45)ng/L 的 4 倍,这可能是由于 12 月~次年 5 月份,该流域由于结冰发生断流导致的 Hg 浓度的富集,而 6 月径流解封,其 THg 浓度也相应增加。

2.2 本研究与其他地区的研究结果对比

表 1 本研究雪冰-径流水的 THg 浓度与其他地区研究结果的对比

Table 1 Comparison of THg Concentration of snow-ice-streamflow in this study compared with results of other regions

采样点	位置	THg 浓度(ng/L)	描述
贡嘎山	29°20'N 101°30'E	2.8~3.4	0~5cm 冰
明永	28°27'N 98°45'E	0.92~1.11	0~5cm 冰
米堆	29°28'N 96°30'E	0.98~1.19	0~5cm 冰
洛根山 ^[25]	60°29'N 140°24'W	0.9~1.7	表层冰
Belukha 冰川 ^[26]	49°48'N 86°34'E	(1.9±0.5)	表层冰
郭曲冰川 ^[27]	33°30'N 91°12'E	1.8~9.8	表层冰
上弗里蒙特冰川 ^[28]	43°07'N 109°36'W	12~15	表层冰
格陵兰岛中部 ^[29]	72°34'N 37°37'W	0.6~0.7	表层冰
格陵兰岛西北部 ^[30]	80°07'N 73°01'W	(0.77±0.34)	表层冰
加拿大北极 ^[31]	-	0.9~1.4	表层冰
Col Du Dome 冰川 ^[32]	45°50'N 6°50'W	(0.86±0.3)	表层冰
贡嘎山	29°20'N 101°30'E	5.53~9.26	表层雪
明永	28°27'N 98°45'E	1.50~2.09	表层雪
米堆	29°28'N 96°30'E	0.77~0.99	表层雪
南极 Dome A ^[33]	69°42'S 76°28'E	(0.32±0.39)	表层雪
加拿大北极 ^[34]	75°69'N 93°53'E	1.25~3.31	表层雪
小冬克玛底冰川 ^[14]	33°04'N 92°05'E	(0.47±0.05)	表层雪
老虎沟冰川 ^[15]	39°10'N 96°10'E	(5.1±8.8)	表层雪
强永冰川 ^[35]	28°51'N 90°13'E	(8.8±0.5)	表层雪
贡嘎山	29°20'N 101°30'E	2.03~2.60	径流水
明永	28°27'N 98°45'E	0.38~0.80	径流水
米堆	29°28'N 96°30'E	0.95~1.05	径流水
乌江流域 ^[6]	-	10.9~329.6(44.4)	径流水
雅鲁藏布江 ^[7]	29.34°N 88.83°E	1.46~4.99(2.79)	径流水
海螺沟 ^[8]	29°20'N 101°30'E	1.9~5.7(3.5)	径流水

表 1 重点比较了本研究中雪冰-径流水的 Hg 浓度与其他地区的研究结果.从对比数据可知,贡嘎山冰川研究区的表层雪样 THg 浓度略高于远离人为源的背景区域的冰川流域,如高于 Rukumesh Paudyal 等^[14]在青藏高原中部、Huang 等^[15]在青藏高原北部的老虎沟冰川和 Sun 等^[35]在青藏高原南部的强永冰川的研究结果,亦高于南极 Dome A 表层雪浓度^[33]和加拿大北极表层雪的观测值^[34],而明永冰川、米堆冰川则与这些地区的观测值相当.贡嘎山冰

川的0~5cm冰样的THg浓度高于前人^[25-26,29-32]在北极和亚北极地区采集的表层冰芯样品的浓度,而明永冰川、米堆冰川则与前人的研究结果相一致,本研究选取的三个冰川的0~5cm冰样均低于Kang等^[27]在青藏高原的郭曲冰川以及Schuster等^[28]在上弗里蒙特冰川的表层观测值.贡嘎山冰川径流水的THg浓度与Fu等^[38]在贡嘎山的海螺沟地区的研究结果(3.5ng/L),以及Zheng等^[37]在雅鲁藏布江的研究结果(2.79ng/L)表现出较好的一致性,而明永冰川及米堆冰川的径流水汞监测值低于上述区域.而本研究选取的三个冰川径流水均明显低于受到人为源污染的区域,如Jiang等^[36]在乌江流域的检测值.因此可以得出本研究选取的贡嘎山区域THg略高于全球背景值,而明永冰川和米堆冰川则处于全球背景值状态.

2.3 雪-冰-径流水体系中HgP的分布及影响因素

2.3.1 HgP/THg在雪-冰-径流水体系中的变化趋势 贡嘎山、明永、米堆冰川所有的雪冰-径流水的HgP浓度的变化范围为0.09~9.44ng/L(图2a),最大值与最小值分别出现在贡嘎山的雪样(9.44±1.09)ng/L和明永冰川的水样(0.09±0.21)ng/L中.雪冰-径流水样品HgP与THg具有极显著的正相关关系($R^2=0.980$, $P<0.01$, $n=24$,图3a).这与梅露等^[24]在贡嘎山地区观测得到的雪样、冰样和水样中THg和HgP的研究结果($R^2=0.998$, $P<0.01$),及孙学军等^[23]在扎当冰川雪坑中的研究结果($R^2=0.99$, $P<0.05$, $n=43$)均表现出高度的一致性.

所有的雪、冰、水样品中HgP/THg的最大值出现在贡嘎山和米堆冰川的雪样中,最大可达81%;最小值出现在明永冰川的水样中,最小值为14%.其中米堆冰川雪、冰与水的HgP/THg的平均值可达64%、贡嘎山次之(63%)、明永最低(41%),并且3个冰川所有样品的HgP/THg的平均比值为(56%±23%).3个冰川HgP/THg的变化趋势均表现为雪>冰>水(如图3b所示),这可能与雪-冰-水的相变过程中,HgP逐渐发生了沉淀作用,导致雪冰水体系中HgP逐渐减少相关^[24],这表明汞在冰川流域的迁移、富集受到雪冰颗粒物的迁移沉淀控制.

2.3.2 HgP/THg在贡嘎山径流水中的变化趋势 图4a展示了贡嘎山径流水逐月的采样分析中

HgP/THg的变化趋势.基于已有的样品,HgP/THg的变化总体表现为7月S3点的HgP/THg达到最大,最大比值为71%;11月的S1点最低,最低比值为16%;HgP/THg的月平均值表现为7月最高(60%±14%),11月最低(18%±2%).由图4b可以看出,径流量和降雨量(径流量数据来源于国家地球系统科学数据共享服务平台;月均降雨量数据来源于贡嘎山森林生态系统国家野外科学观测研究站)在6月逐渐增加,8-9月达到峰值,其后逐渐降低.值得注意的是8月HgP/THg却显著低于邻近其他月份比值,这可能与降雨中颗粒Hg含量低于冰雪中颗粒Hg含量而导致的稀释作用相关.

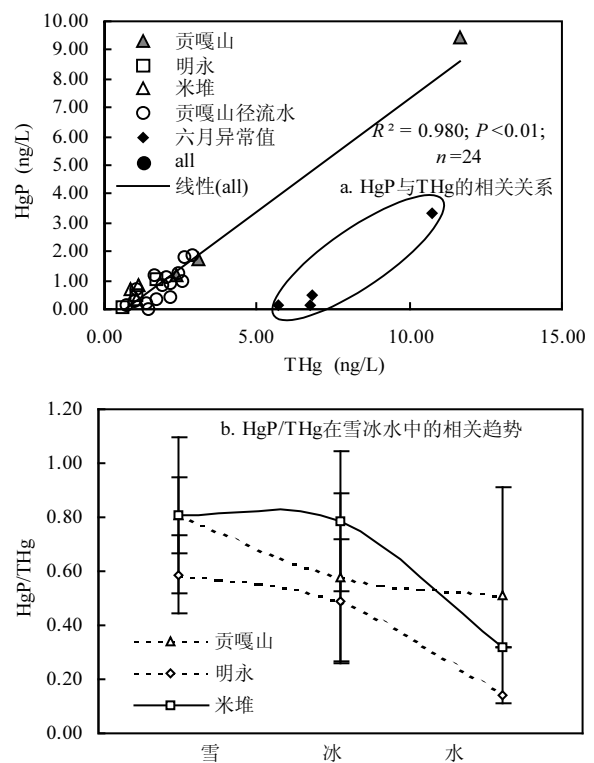


图3 HgP和THg在雪冰水体系中的变化趋势
Fig.3 Trends of HgP and THg in snow ice water systems

6~11月间贡嘎山径流水中月均THg输出的变化趋势与径流量具有显著正相关关系($R^2=0.920$; $P=0.05$),与Sun等^[13]在曲嘎切流域的上游监测点研究THg浓度与径流量的正相关关系($R^2=0.455$; $P=0.01$)一致.值得注意的是,由于10月份径流汞数据的缺失使得统计分析中的P值为0.05,但高达0.920的 R^2 表明了月均THg输出与径流量的正相关关系具有较高的可信度.6月降水尚少,径流水主要来源于

冰雪融水的补给,且在 2017 年 12 月~2018 年 5 月该流域由于冰封断流导致 Hg 浓度在表层冰雪中的富集,6 月气温上升,积累在冰川表层的冰雪融化释放出其中的 Hg,造成径流水中月均 THg 输出量偏大 [$17.8\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{月})$].根据贡嘎山观景台沟的流域面积 (1.05km^2),可估算出该流域的年均 THg 输出为 $97.5\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{a})$,低于 Sun 等^[13]在曲嘎切流域上游监测点的估算值 [$0.99\text{mg}/(\text{m}^2\cdot\text{a})$]

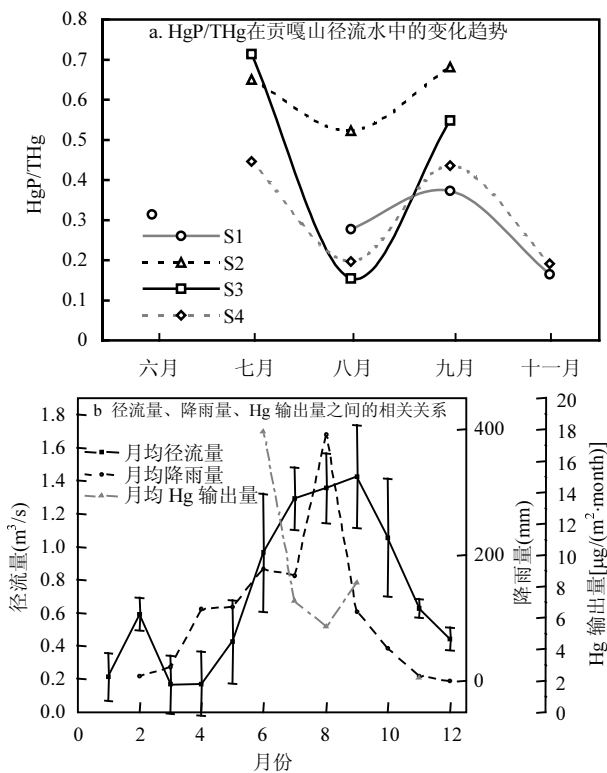


图 4 贡嘎山径流水体系的变化趋势及影响因素

Fig.4 Trends and Influencing Factors of streamflow System in Gongga Mountain

2.4 雪-冰-径流水体系中 Hg 来源判定

青藏高原受西风与东亚季风、西南季风影响显著,且毗邻中国东部、东南亚与南亚等人为源汞显著排放区域.据报道,来自南亚的 Hg 排放可以通过西南季风与西风的作用输送到青藏高原,并沉积在冰川上,这导致了积雪中 Hg 浓度的升高^[39-40],东南亚生物质燃烧产生的 Hg 排放也是一个重要的来源^[41],生物质燃烧排放的汞可通过西南季风与西风的南支绕流输送至青藏高原地区.中国是当前世界上最大的 Hg 排放国,近年来中国一直在制定相关环境政策,减少人为源 Hg 的排放^[42-43].我国人为源 Hg 排放

清单^[44]表明青藏高原人为源 Hg 的排放为 $0.1\sim 0.5\text{kg}/(\text{km}^2\cdot\text{a})$,而东部发达地区人为源 Hg 的排放可达 $20\sim 65\text{kg}/(\text{km}^2\cdot\text{a})$,来自于四川、重庆等中国中西部区域的人为源汞排放可经东亚夏季风的作用传输至青藏高原东部边缘区域,如贡嘎山区域^[45-46].Zhang 等^[43]与 Yin 等^[47]的研究指出青藏高原的气态总汞浓度分别为 2.55 和 $0.23\sim 3.14\text{ng}/\text{m}^3$,略高于北半球大气背景值 $1.5\sim 1.7\text{ng}/\text{m}^3$.因此,青藏高原受局地人为活动影响较小,主要受周边 Hg 污染源排放传输沉降的影响,因而推测越靠近上述污染源的地区表现出越高的 THg 浓度,即贡嘎山>明永>米堆.这与贡嘎山冰川、明永冰川与米堆冰川监测的雪、冰与水中的汞浓度变化趋势一致.

本研究对雪、冰与水相关数据进行了相关性矩阵分析与主成分分析,并根据微量重金属元素的不同来源依据判别 Hg 的来源途径.相关分析结果表明(表 2),Hg 与 Cr、V、Mn、Ni、Cu、Rb、Ba、Li 具有显著的正相关关系 ($0.5 < r < 0.8, p < 0.05$),而 Hg 与 Sr、Mo 呈微弱的负相关 ($r = -0.007, r = -0.018$).主成分分析前的预检验表明 KMO 和 Bartlett 检验值为 0.767 ,这说明本研究所获得的雪、冰、水的相关数据十分适合主成分分析.主成分分析结果表明(表 3),本研究共提取两个主因子,其解释了整个数据 89% 的变化.主因子 1 解释了整个数据 75% 的变化,其中 Hg、Pb、Cr、V、Mn、Ni、Cu、Rb、Ba、Li 等元素具有较高的载荷值,且这几种元素与 Hg 的相关性分析都表现出较高的相关系数,表明具有同源性.值得注意的是,V、Mn、Ni、Cu、Rb、Ba、Li 是典型的“亲石”元素.结合采样点的周边环境分析可知,主因子 1 代表了成土母质等的颗粒物在大气中长距离迁移沉降,故主因子 1 主要代表大气颗粒物迁移沉降对该区域汞沉降的影响.主因子 2 解释了整个数据 14% 的变化,其中 Pb、Mn、Zn、As 等元素具有较高的载荷值.Pb、Zn、As 主要来源于工业活动过程中产生的废气和粉尘等,这表明主因子 2 主要代表人为活动的影响.上述统计分析结果表明,贡嘎山、明永与米堆冰川的雪、冰与水中 Hg 浓度在整体上主要受到大气颗粒物沉降的控制.但贡嘎山冰川由于更靠近人类活动密集区域,其受到人类活动的影响相比于其他 2 个冰川更为显著.例如,Fu 等^[48]对贡嘎山区域的研究结果也表明较高的气态汞与

我国中东部煤炭业、冶炼工业、水泥生产、生物质燃烧等行业活动汞排放相关.因而,相比于其他 2 个

冰川,贡嘎山冰川流域汞及其形态均显著高于其他 2 个冰川($P<0.05$, T-test).

表 2 贡嘎山、明永、米堆冰川的雪、冰、水中 THg 与微量重金属元素的相关性矩阵

Table 2 Correlation matrix between THg and trace heavy metal elements in snow, ice and streamflow of Gongga Mountain, Mingyong and Midui Glacier

重金属	Hg	Pb	Cr	V	Mn	Ni	Cu	Zn	As	Rb	Sr	Mo	Ba	Li
Hg	1													
Pb	0.406*	1												
Cr	0.764**	0.710**	1											
V	0.736**	0.550**	0.894**	1										
Mn	0.638**	0.883**	0.939**	0.791**	1									
Ni	0.706**	0.669**	0.913**	0.970**	0.845**	1								
Cu	0.712**	0.758**	0.975**	0.876**	0.972**	0.894**	1							
Zn	0.177	0.698**	0.376	0.283	0.503**	0.370	0.392*	1						
As	0.105	0.849**	0.334	0.265	0.543**	0.422*	0.367	0.592**	1					
Rb	0.731**	0.778**	0.984**	0.842**	0.967**	0.867**	0.979**	0.433*	0.403*	1				
Sr	-0.007	0.004	0.046	-0.031	0.046	0.008	0.053	-0.141	0.021	0.119	1			
Mo	-0.018	-0.096	-0.037	-0.042	-0.072	-0.078	-0.039	-0.185	-0.038	0.047	0.524**	1		
Ba	0.726**	0.708**	0.971**	0.835**	0.947**	0.841**	0.980**	0.339	0.304	0.985**	0.164	0.081	1	
Li	0.704**	0.759**	0.962**	0.862**	0.941**	0.898**	0.958**	0.400*	0.434*	0.976**	0.272	0.102	0.968**	1

注*:在0.05级别(双尾),相关性显著; **:在0.01级别(双尾),相关性显著.

表 3 THg 与雪、冰、水中微量重金属元素的 SPSS 主成分分析结果

Table 3 The result of PCA of THg and trace heavy metal elements in snow, ice and streamflow

重金属	1(75.350%)	2(14.042%)
Hg	0.836	-0.037
Pb	0.509	0.842
Cr	0.953	0.267
V	0.919	0.133
Mn	0.835	0.511
Ni	0.890	0.287
Cu	0.931	0.319
Zn	0.145	0.818
As	0.110	0.911
Rb	0.918	0.364
Ba	0.939	0.260
Li	0.911	0.360

3 结论

3.1 贡嘎山、明永、米堆冰川不同介质中 THg 浓度趋势变化表现为雪>冰>水,且 3 个冰川中 THg 的变化趋势为贡嘎山>明永>米堆.

3.2 贡嘎山、明永、米堆冰川区域主要受到大气颗粒物沉降(HgP/THg 的平均比值为(56%±23%))的影响,贡嘎山冰川受到人类活动影响显著高于明永与米堆.

3.3 贡嘎山径流水中 THg 的输出主要受到冰川河的径流量及降雨作用的影响,月均 THg 输出通量与月均径流量表现出强烈的正相关性($R^2=0.920$; $P=0.05$).

参考文献:

- [1] Krabbenhoft D P, Sunderland E M. Global Change and Mercury [J]. Science, 2013,341(6153):1457458.
- [2] Canário J, Branco V, Vale C. Seasonal variation of monomethylmercury concentrations in surface sediments of the Tagus Estuary (Portugal) [J]. Environmental Pollution, 2007,148(1):0-383.
- [3] Gorski P R, Armstrong D E, Hurley J P, et al. Influence of natural dissolved organic carbon on the bioavailability of mercury to a freshwater alga [J]. Environmental Pollution, 2008,154(1):0-123.
- [4] Berg T, Sekkes?Ter S, Steinnes E, et al. Springtime depletion of mercury in the European Arctic as observed at Svalbard [J]. Science of the Total Environment, 2003,304(1-3):43-51.
- [5] Brooks S B, Saiz-Lopez A, Skov H, et al. The mass balance of mercury in the springtime arctic environment [J]. Geophysical Research Letters, 2006,33(13):L13812.
- [6] Schroeder W H, Anlauf K G, Barrie L A, et al. Arctic springtime depletion of mercury [J]. Nature, 1998,394(6691):331-332.
- [7] Steffen A, Lehnher I, Cole A, et al. Atmospheric mercury in the Canadian Arctic. Part I: A review of recent field measurements [J]. Science of The Total Environment, 2015,509-510:35.
- [8] Grinsted, A. An estimate of global glacier volume [J]. The Cryosphere, 2013,7(1):141-151.
- [9] Yao T, Thompson L G, Mosbrugger V, et al. Third pole environment

- (TPE) [J]. *Environmental Development*, 2012,3(1):52-64.
- [10] Beniston M. Climatic change in mountain regions: A review of possible impacts [J]. *Climatic Change*, 2003,59(1/2):5-31.
- [11] Sondergaard J, Tamstorf M, Elberling B, et al. Mercury exports from a High-Arctic river basin in Northeast Greenland (74°N) largely controlled by glacial Lake outburst floods [J]. *Science of The Total Environment*, 2015,514:83-91.
- [12] Fisher J A, Jacob D J, Soerensen A L, et al. Riverine source of Arctic Ocean mercury inferred from atmospheric observations [J]. *Nature Geoscience*. 5:499-504.
- [13] Sun X, Wang K, Kang S, et al. The role of melting alpine glaciers in mercury export and transport: An intensive sampling campaign in the Qugaqie Basin, inland Tibetan Plateau [J]. *Environmental Pollution*, 2017,220:936-945.
- [14] Paudyal R, Kang S, Huang J. Insights into mercury deposition and spatiotemporal variation in the glacier and melt water from the central Tibetan Plateau. [J]. *Science of the Total Environment*, 2017,599-600: 2046.
- [15] Huang J, Kang S, Guo J, et al. Mercury distribution and variation on a high-elevation mountain glacier on the northern boundary of the Tibetan Plateau [J]. *Atmospheric Environment*, 2014,96:27-36.
- [16] 秦大河, 效存德, 丁永建, 等. 国际冰冻圈研究动态和我国冰冻圈研究的现状与展望. *应用气象学报*, 2006,17(6):649-656.
- Qin Dahe, Xiao Cunde, Ding Yongjian, et al. Progress on cryospheric studies by international and Chinese communities and perspectives [J]. *Journal of Applied Meteorology*, 2006,17(6):649-656.
- [17] 姚檀栋, 朱立平. 青藏高原环境变化对全球变化的响应及其适应对策 [J]. *地球科学进展*, 2006,21(5):459-464.
- Yao Tandong, Zhu Liping. The response of environmental changes on Tibetan Plateau to global changes and adaptation strategy [J]. *Advances in Earth Science*, 2006,21(5):459-464.
- [18] 刘宗香, 苏 珍, 姚檀栋, 等. 青藏高原冰川资源及其分布特征 [J]. *资源科学*, 2000,22(5):49-52.
- Liu Zongxiang, Su Zhen, Yao Tandong, et al. Resources and distribution of glaciers on the Tibetan plateau [J]. *Resources Science*, 2000,22(5):49-52.
- [19] 郑本兴, 赵希涛, 李铁松, 等. 梅里雪山明永冰川的特征与变化 [J]. *冰川冻土*, 1999,21(2):14550.
- Zheng Benxing, Zhao Xitao, Li Tiesong, et al. Characteristics and changes of Mingyong Glacier in Meili Snow Mountain [J]. *Journal of glaciology and geocryology*, 1999,21(2):14550.
- [20] Xu P, Zhu H F, Shao X M, et al. Tree ring-dated fluctuation history of Midui glacier since the little ice age in the southeastern Tibetan plateau [J]. *Science China: Earth Sciences*, 2012,55(4):521-529.
- [21] US EPA. Method 1631: Mercury in water by oxidation, purge and trap, and cold vapor atomic fluorescence spectrometry [M]. Revision E. Office of Water, Washington, DC (EPA-821-R-02-19), 2002.
- [22] 阎海鱼, 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):103.
- Yan Haiyu, Feng Xinbin, Shang Lihai, et al. Study on Speciation Analysis Method of Trace Mercury in Natural Water [J]. *Journal of Instrumental Analysis*, 2003,22(5):103.
- [23] 孙学军, 王 康, 郭军明, 等. 青藏高原内陆典型冰川区“冰川-径流”汞传输过程 [J]. *环境科学*, 2016,37(2):482-489.
- Sun Xue-jun, WANG Kang, GUO Jun-ming, et al. Mercury Transport from Glacier to Runoff in Typical Inland Glacial Area in the Tibetan Plateau [J]. *Environmental Science*, 2016,37(2):482-489.
- [24] 梅 露, 王 训, 冯新斌, 等. 青藏高原贡嘎山冰川区水体中 Hg 的空间分布及其源汇特征 [J]. *环境化学*, 2016,35(8).
- Mei Lu, Wang Xun, Feng Xinbin, et al. Spatial distribution and source/sink characteristic of mercury in the water samples from the Mt.Gongga area in the Tibetan Plateau [J]. *Environmental Chemistry*, 2016,35(8).
- [25] Beal S A, Osterberg E C, Zdanowicz C M, et al. Ice core perspective on mercury pollution during the Past 600 Years [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015,49(13):7641-7647.
- [26] Eyrikh S, Eichler A, Tobler L, et al. A 320-year ice-core record of atmospheric Hg pollution in the Altai, Central Asia [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017,51:115971606.
- [27] Kang S, Huang J, Wang F, et al. Atmospheric mercury depositional chronology reconstructed from Lake sediment and ice cores in the Himalayas and Tibetan Plateau [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016,50:2859-2869.
- [28] Schuster P F, Krabbenhoft D P, Naftz D L, et al. Atmospheric mercury Deposition during the Last 270 Years: A Glacial Ice Core Record of Natural and Anthropogenic Sources [J]. *Environmental Science and Technology*, 2002,36(11):2303-2310.
- [29] Bourtron C F, Vandal G M, Fitzgerald W F, et al. A forty year record of mercury in central Greenland snow [J]. *Geophysical Research Letters*, 1998,25(17):3315-3318.
- [30] Zheng, Jiancheng. Archives of total mercury reconstructed with ice and snow from Greenland and the Canadian High Arctic [J]. *Science of The Total Environment*, 2015,509-510:13344.
- [31] Zdanowicz C M, Krümmel E M, Poulain A J, et al. Historical variations of mercury stable isotope ratios in arctic glacier firm and ice cores. [J]. *Global Biogeochemical Cycles*, 2016,30:1324347.
- [32] Jitaru P, Infante H G, Ferrari C P, et al. Present century record of mercury species pollution in high altitude alpine snow and ice [J]. *Journal de Physique IV (Proceedings)*, 2003,107:683-686.
- [33] Li C, Kang S, Shi G, et al. Spatial and temporal variations of total mercury in Antarctic snow along the transect from Zhongshan Station to Dome A [J]. *Tellus B*, 2014:66.
- [34] Lahoutifard N, Sparling M, Lean D. Total and methyl mercury patterns in Arctic snow during springtime at Resolute, Nunavut, Canada [J]. *Atmospheric Environment*, 2005,39(39):7597-7606.
- [35] Sun S, Kang S, Huang J, et al. Distribution and transportation of mercury from glacier to Lake in the Qiangyong Glacier Basin, southern Tibetan Plateau, China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2016:S1001074216000127.
- [36] Jiang H, Feng X, Dai Q, et al. The distribution and speciation of mercury in Wujiang river [J]. *Journal de Physique IV (Proceedings)*, 2003,107:679-682.
- [37] Zheng W, Kang S C, Feng, et al. Mercury speciation and spatial distribution in surface waters of the Yarlung Zangbo River, Tibet [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2010,55(24):2697-2703.
- [38] Fu X, Feng X, Zhu W, et al. Elevated atmospheric deposition and

- dynamics of mercury in a remote upland forest of southwestern China [J]. *Environmental Pollution*, 2010,158(6):2324–2333.
- [39] Loewen M, Kang S, Armstrong D, et al. Atmospheric transport of mercury to the Tibetan Plateau [J]. *Environmental Science & Technology*, 2007,41(22):7632–7638.
- [40] Zhang Q, Huang J, Wang F, et al. Mercury distribution and deposition in glacier snow over Western China [J]. *Environmental Science & Technology*, 2012,46(10):5404–5413.
- [41] Pirrone N, Cinnirella S, Feng X, et al. Global mercury emissions to the atmosphere from natural and anthropogenic sources [M]. *Mercury Fate and Transport in the Global Atmosphere*. Springer US, 2009.
- [42] Streets D G, Hao J, Wu Y, et al. Anthropogenic mercury emissions in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2005,39(40):7789–7806.
- [43] Pacyna E G, Pacyna J M, Steenhuisen F, et al. Global anthropogenic mercury emission inventory for 2000 [J]. *Atmospheric Environment*, 2006,40(22):4048–4063.
- [44] Wang S, Zhang L, Li G, et al. Mercury emission and speciation of coal-fired power plants in China [J]. *Atmospheric Chemistry & Physics Discussions*, 2009,10(3):1183192.
- [45] Fu X, Feng X, Zhu W, et al. Total particulate and reactive gaseous mercury in ambient air on the eastern slope of the Mt. Gongga area, China [J]. *Applied Geochemistry*, 2008,23(3):0–418.
- [46] Fu X, Feng X, Wang S, et al. Temporal and spatial distributions of total gaseous mercury concentrations in ambient air in a mountainous area in southwestern China: Implications for industrial and domestic mercury emissions in remote areas in China [J]. *Science of the Total Environment*, 2009,407(7):2306–2314.
- [47] Yin X, Kang S, Foy B D, et al. Multi-year monitoring of atmospheric total gaseous mercury at a remote high-altitude site (Nam Co, 4730m a.s.l.) in the inland Tibetan Plateau region [J]. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 2018,18(14):1–44.
- [48] Fu X, Feng X, Zhu W, et al. Total gaseous mercury concentrations in ambient air in the eastern slope of Mt. Gongga, South-Eastern fringe of the Tibetan plateau, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(5):970–979.

致谢: 感谢国家地球系统科学数据共享服务平台及四川贡嘎山森林生态系统国家野外科学观测研究站提供的数据支持。

作者简介: 吴 飞(1994-),男,贵州遵义人,贵州师范大学硕士研究生,主要从事汞的地球化学循环研究。