

贵州东风水库沉积物间隙水中溶解态汞及甲基汞的分布特征及界面交换

潘鲁生^{1,2}, 冯新斌^{2,*}, 刘秀伟¹

(1. 贵州省地质环境监测院, 贵阳 550002; 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)

摘要:为弄清水库沉积物间隙水中汞及甲基汞的分布及扩散特征,于2009年春、夏两季对东风水库进行了采样,分别采用两次金汞齐-CVAFS法和蒸馏-乙基化结合GC-CVAFS法测定沉积物间隙水中溶解态(DHg)和甲基汞(DMeHg)浓度。结果表明夏季沉积物间隙水DHg浓度远高于春季,而DMeHg浓度却略低于春季;沉积物间隙水中DHg和DMeHg均有向上覆水体扩散的趋势,其夏季扩散通量高于春季;间隙水中DMeHg对上覆水体的贡献率大于DHg,最高可达30%,再次证明了沉积物间隙水中的DMeHg是其上覆水体的重要来源。

关键词:东风水库;沉积物间隙水;溶解态汞;溶解态甲基汞

中图分类号:X524 文献标识码:A 文章编号:1672-9250(2015)05-0483-07 doi:10.14050/j.cnki.1672-9250.2015.05.001

在水库、湖泊系统中,水体中各种物质可与颗粒物吸附、整合,再通过颗粒物的沉积作用进入沉积物中,也可以通过沉积物的再悬浮、解吸以及间隙水的扩散作用进入水体。因此,沉积物既可能是上覆水体的汇也可能是潜在的源^[1]。各种地球化学过程在沉积物/水界面附近造成重金属元素“源/汇”关系的转化,日益受到人们的重视^[2-5]。

水库、湖泊沉积物的再悬浮以及孔隙水中汞向上覆水体的扩散一直被认为是上覆水体中汞污染的一个重要原因^[6],通过对湖泊沉积物孔隙水与上覆水体中汞的浓度差,可以估算出沉积物对上覆水体的汞释放通量,从而评价其对整个湖泊汞污染的贡献率^[6-7]。本研究选择东风水库为研究对象,测定了其沉积物间隙水和上覆水体溶解态汞(DHg)和甲基汞(DMeHg)的含量,通过其浓度分布(梯度)计算出沉积物间隙水对上覆水体无机汞和有机汞的扩散通量,判断沉积物对上覆水体汞及甲基汞的贡献。

1 材料与方法

1.1 采样点的布设

东风水库位于乌江干流鸭池河河段,始建于

1994年,总库容为 $10.25 \times 10^8 \text{ m}^3$,年径流量为 $108.8 \times 10^8 \text{ m}^3$,正常蓄水位时容量为 $4.91 \times 10^8 \text{ m}^3$,正常蓄水位时水库面积为 19.25 km^2 ,属季节性调节水库^[8]。

根据水库的流域特征,在其上游、中游及下游(大坝)选取3个采样点(图1)。上游采样点位于引子渡水库大坝之后,为水库下泄河流;中游采样点位于引子渡和洪家渡水库下泄水(支流)交汇处;下游采样点距东风水库大坝约300m,3个采样点在水库流域上均有各自的典型特征,具有一定的代表性。

1.2 样品的采集

为分析水库沉积物间隙水中溶解态汞DHg和溶解态甲基汞DMeHg分布及扩散的季节性差异,分别于2009年2月和6月对东风水库进行了2次采样和分析工作。

上覆水体水样采用5L Niskin采水器(型号1010,美国)在不同采样点分层采集,每个采样点分6层进行水样采集,并采用 $0.45 \mu\text{m}$ (Millipore)滤膜现场过滤,过滤后的水样装入100mL硼硅玻璃瓶中^[9-10];沉积物间隙水采用SWB-1型便携式不扰动湖泊沉积物采样器采集沉积物柱^[11],并现场分

收稿日期:2015-01-28;改回日期:2015-04-03

基金项目:国家自然科学基金项目(40532014,40873085,40973083,41273099)。

第一作者简介:潘鲁生(1984-),男,硕士研究生,主要研究方向为环境地球化学。E-mail: plsh840501@163.com.

*通讯作者:冯新斌(1968-),男,博士,研究员,主要研究方向为环境地球化学。E-mail: fengxinbin@vip.skleg.cn.

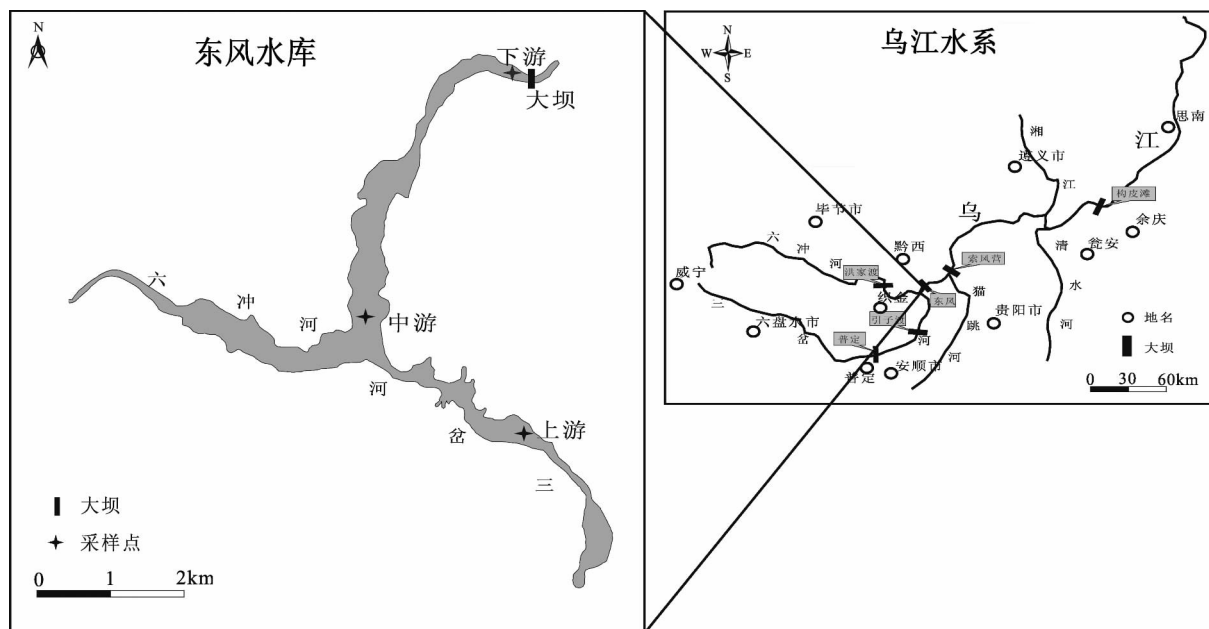


图1 东风水库采样点分布图(据文献[8])

Fig. 1 Location of the sampling sites in Dongfeng Reservoir(from ref. [8])

割,分割方法为0~10 cm沉积物柱按1 cm间距分割一个样品,10 cm以下部分按3 cm间距分割一个样品(用于测定间隙水甲基汞的沉积物柱在厌氧条件下分割),并在48 h内采用离心方式提取沉积物间隙水(4℃恒温、3 000 r/min,离心30 min),间隙水在厌氧条件下(氮气氛围中)用一次性注射器吸取,并以0.45 μm(Millipore)滤膜头过滤后,装入经过预处理的10 mL比色管中;上覆水体水样和沉积物间隙水样均加入4%(V/V)的超纯盐酸进行酸化固定,然后用parafilm密封,放入冰箱在4℃以下保存,并在28天内测定完毕。

1.3 样品的分析方法

DHg采用两次金汞齐-冷原子荧光光谱法(CVAFS)^[9]测定,所用仪器为加拿大生产的测汞仪(Tekran model 2500),该方法最低检出限为0.01 ng/L。DHg标准品来源于Cebarn Analytical Inc。

DMeHg采用蒸馏-乙基化结合GC-CVAFS法^[10]测定,所用仪器为加拿大生产的测汞仪(Tekran model 2500),该方法最低检出限为0.009 ng/L。DMeHg标准品来源于Cebarn Analytical Inc。

2 结果与讨论

2.1 水库沉积物间隙水及上覆水体中DHg的分布特征

图2为2009年春、夏季节东风水库沉积物间

隙水及上覆水体中DHg分布图。如图所示,春季,东风水库沉积物间隙水DHg浓度为0.93~5.79 ng/L,平均为2.41 ng/L。其中上游采样点沉积物间隙水DHg浓度为0.93~4.45 ng/L,平均为1.86 ng/L;中游采样点沉积物间隙水DHg浓度为1.45~5.79 ng/L,平均为3.22 ng/L;下游采样点沉积物间隙水DHg浓度为1.31~2.95 ng/L,平均为2.06 ng/L。数据显示,东风水库中游采样点沉积物间隙水DHg显著高于上游和下游采样点。且从图可看出,上游和下游采样点沉积物间隙水的DHg在垂直剖面上分布较为均匀,随沉积物深度的变化无明显波动;而中游采样点沉积物间隙水在整个垂直剖面上波动较大。该种情况的出现可能与中游采样点的流域位置有一定的关系,中游采样点位于引子渡下泄河流(干流)和洪家渡水库下泄河流(支流)的交汇处,两条河流汇入的颗粒物未经混合均匀而沉降,造成了该处沉积物具有不均匀性,沉积物的不均匀性导致了该处沉积物在垂直剖面上各种物理、化学、及生物特性的差异。这些差异导致了沉积物对汞的吸附和解吸过程及效果的差异,最终导致了沉积物间隙水中DHg分布的不均匀性。

夏季,东风水库沉积物间隙水DHg浓度为1.79~13.56 ng/L,平均为4.56 ng/L。其中上游采样点沉积物间隙水DHg浓度为2.19~4.99 ng/L,平

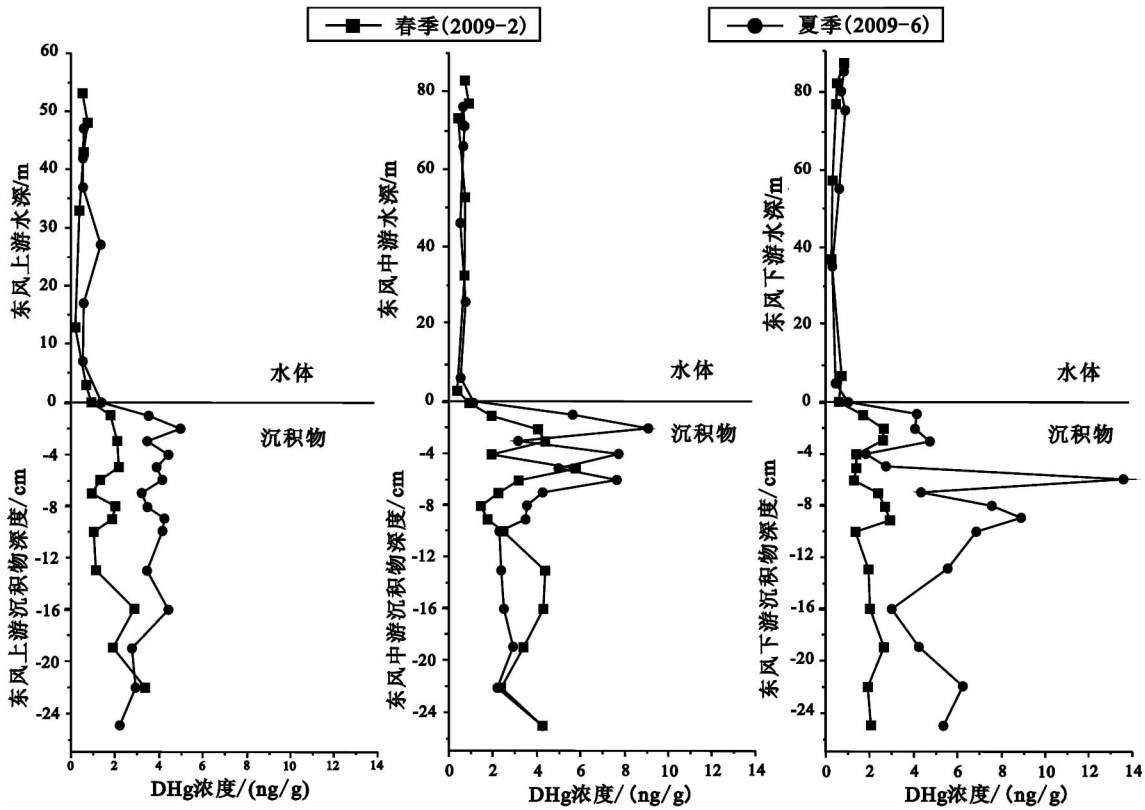


图 2 2009 年春、夏季节东风水库沉积物间隙水及上覆水体中 DHg 分布图

Fig. 2 Profile distribution of DHg in sediment-water and overlying water of the Dongfeng Reservoir in spring and summer of 2009

均为 3.69 ng/L; 中游采样点沉积物间隙水 DHg 浓度为 2.26~9.11 ng/L, 平均为 4.43 ng/L; 下游采样点沉积物间隙水 DHg 浓度为 1.79~13.56 ng/L, 平均为 5.54 ng/L。数据显示, 春、夏季节沉积物间隙水 DHg 浓度差异较大, 夏季远高于春季, 是春季的 1.9 倍。

水库沉积物间隙水 DHg 浓度季节性变化可能是由于温度、氧化还原电位、有机质等的变化而引起^[12]。沉积物中有机质的矿化降解是这些过程的原始驱动力。有氧沉积物中, 沉积有机质被复杂的微生物群落代谢利用, 包括细菌、放线菌、真菌等, 能完全矿化有机质分子, 直接产生 CO₂。无氧条件下, 不同的厌氧菌群落分阶段降解有机质^[13-14]。有机质的矿化降解导致沉积物环境的 pH、氧化还原电位等发生变化, 使固相沉积重金属还原、溶解, 同时吸附在铁锰颗粒上的汞得以解吸, 转化为溶解态进入沉积物间隙水, 在浓度梯度的驱动下向沉积物上覆水体迁移^[15-16]。由于夏季水体温度高于春季, 导致了沉积物有机质降解等过程的差异, 使得春、夏季节沉积物间隙水 DHg 浓度呈现出以上季

节性差异。

2.2 水库沉积物间隙水及上覆水体中 DMeHg 的分布特征

图 3 为 2009 年春、夏季节东风水库沉积物间隙水及上覆水体 DMeHg 分布图。如图所示, 春季, 东风水库沉积物间隙水 DMeHg 浓度为 0.105~0.590 ng/L, 平均为 0.261 ng/L。其中上游采样点沉积物间隙水 DMeHg 浓度为 0.105~0.590 ng/L, 平均为 0.293 ng/L; 中游采样点沉积物间隙水 DMeHg 浓度为 0.134~0.356 ng/L, 平均为 0.226 ng/L; 下游采样点沉积物间隙水 DMeHg 浓度为 0.124~0.416 ng/L, 平均为 0.266 ng/L。在垂直剖面上, 三个采样点沉积物间隙水 DMeHg 浓度随沉积物深度的变化具有不同的变化趋势, 上游采样点沉积物间隙水 DMeHg 浓度在沉积物柱剖面上呈现出随沉积物深度的增加先升高后下降的变化趋势, 在 7 cm 处出现峰值; 中游采样点沉积物间隙水 DMeHg 浓度在沉积物柱剖面上也呈现出随沉积物深度的增加先升高后下降的变化趋势, 峰值出现在 10 cm 左右, 在 10 cm 之后浓度又处于一个相对较

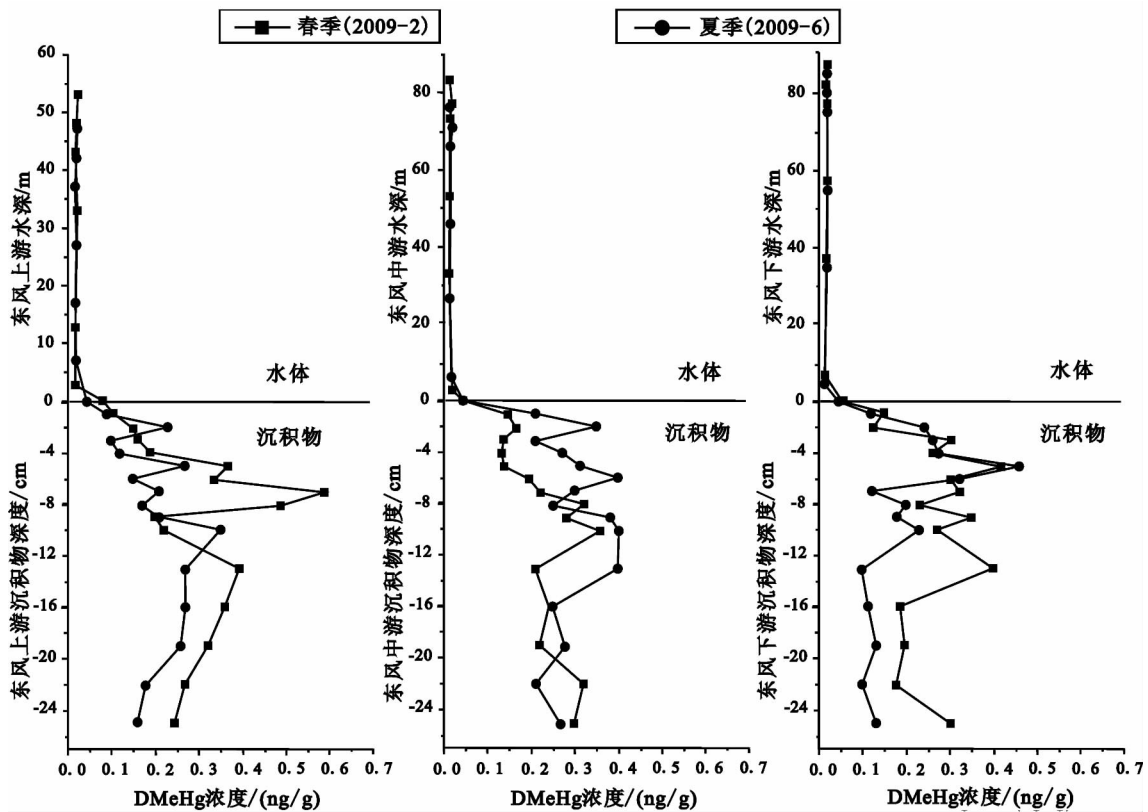


图3 2009年春、夏季节东风水库沉积物间隙水及上覆水体中DMeHg分布图

Fig. 3 Profile distributions of DMeHg in sediment-water and overlying water of the Dongfeng Reservoir in spring and summer of 2009

稳定的状态;下游采样点沉积物柱剖面间隙水DMeHg浓度变化较为复杂,出现两个峰值,分别在5 cm和13 cm处。虽然各采样点沉积物间隙水DMeHg浓度变化特征各有不同,但也有一致的地方,三个采样点沉积物间隙水浓度在沉积物中上层(0~10 cm)左右均是随沉积物深度的增加而增加。

夏季,东风水库沉积物间隙水DMeHg浓度为0.091~0.459 ng/L,平均为0.233 ng/L。其中上游采样点沉积物间隙水DMeHg浓度为0.091~0.346 ng/L,平均为0.202 ng/L;中游采样点沉积物间隙水DMeHg浓度为0.205~0.399 ng/L,平均为0.298 ng/L;下游采样点沉积物间隙水DMeHg浓度为0.103~0.459 ng/L,平均为0.199 ng/L。数据显示,夏季沉积物间隙水DMeHg浓度平均值略低于春季。如图所示,在表层和次表层沉积物间隙水DMeHg浓度与张军方^[6]、刘凯^[15]研究结果一致,均是夏季高于春季,在中游采样点表现得尤为明显。结果表明东风水库表层和次表层沉积物夏季比春季有更强的甲基化作用。水库表层和次表层沉积物甲基化作用的季节性差异可能与水库底部沉

积物温度有一定关系。夏季,水库水体温度随着气温的升高而升高,导致夏季水库表层和次表层沉积物温度也高于春季。有相关研究表明较高的温度有利于无机汞的甲基化。此外,溶解氧的季节性变化可能也是导致水库沉积物甲基化作用季节性差异的原因之一。春、夏季节对比发现,夏季水库底部水体溶解氧处于一个相对厌氧的状态^[17]。有相关研究表明,汞的甲基化作用主要是靠微生物为媒介的过程,在好氧和厌氧条件下均可进行,厌氧条件更有利于甲基化的进行^[17-18]。

在垂直分布上,夏季三个采样点沉积物间隙水DMeHg浓度变化趋势与春季相差不大。上游采样点沉积物间隙水DMeHg浓度在沉积物柱剖面上呈现出随沉积物深度的增加先升高后下降的变化趋势,最大峰值出现在10 cm左右;中游采样点沉积物间隙水DMeHg浓度在沉积物柱剖面上波动较大,沉积物柱中上部(0~13 cm)间隙水DMeHg浓度高于沉积物下部间隙水DMeHg浓度。13 cm之后间隙水DMeHg浓度处于一个相对较稳定的状态;下游采样点沉积物柱剖面间隙水DMeHg浓度变化趋

势和上游采样点较为相似, 随沉积物深度的增加先升高后下降, 峰值出现在 5 cm 处。

2009 年春季东风水库沉积物间隙水 DMeHg 占溶解态总汞的比例为 2.4%~63.4%, 平均为 14.1%。2009 年夏季东风水库沉积物间隙水 DMeHg 占溶解态总汞的比例为 1.7%~16.9%, 平均为 6.2%。数据显示, 东风水库春、夏季节沉积物间隙水 DMeHg 占溶解态总汞的比例存在明显的差异, 而沉积物中甲基汞占总汞的比例却没有显著的季节性差异^[17]。结果表明, 水库沉积物和沉积物间隙水中汞的甲基化率所受环境影响的敏感程度不一样, 沉积物间隙水中汞的甲基化率比沉积物中汞的甲基化率更易受到环境的影响。其主要原因是: 一方面, 沉积物中可利用的活性二价汞都存在于间隙水(液相)中, 而活性二价汞是容易发生甲基化的形态, 故间隙水中汞的甲基化过程比沉积物表现得更为敏感^[12,19]; 另一方面, 沉积物间隙水容易与上覆水体进行能量和物质的交换, 而沉积物(固相)中的能量和物质相对稳定; 此外, 2009 年春、夏季节沉积物间隙水中 DMeHg 占总汞的比例(春季 14.1%, 夏季 6.2%)远高于沉积物中甲基汞占总汞的比例(春季 1.00%, 夏季 1.02%)。该结论再次论证了张军芳^[6]、蒋红梅^[20]的研究结果。

2.3 沉积物/水界面汞及甲基汞的扩散通量估算

汞在沉积物/水界面的迁移转化十分复杂。汞可以通过颗粒物的沉降作用进入沉积物, 又可以通过沉积物的再悬浮以及分子的扩散作用进入水体。对于深水水库而言, 由浓度梯度所引起的分子扩散作用是沉积物与上覆水体之间进行物质迁移的主要形式。在此, 文章对东风水库沉积物/水界面有机汞及无机汞的扩散通量进行估算, 以判断沉积物通过扩散作用对上覆水体汞的贡献。

从理论上说, 在浓度差的驱动下, 会发生溶解组分由高浓度体系向低浓度体系迁移的“分子扩散”运动^[6,15]。如图 2 和图 3 所示, 东风水库沉积物间隙水中无机汞和甲基汞的浓度均高于上覆水体, 这样在沉积物间隙水与上覆水体之间就存在一个浓度差。因此, 间隙水中无机汞和甲基汞会从沉积物向上覆水体扩散, 进而影响上覆水体中无机汞和甲基汞的含量。本研究通过实测浓度梯度和菲克第一定律, 估算沉积物/水界面溶解态无机汞和甲基汞的扩散通量, 从而估计沉积物中无机汞和甲基汞对上覆水体贡献程度。

根据菲克第一定律(Fick's First Law)可以用式(1)估算溶质的扩散通量(F_d)^[21]:

$$F_d = -\Phi D_w d_c / d_z \quad (1)$$

式中, Φ 为沉积物孔隙度, 根据万国江等^[22]对同流域红枫湖沉积物的研究, 0~4 cm 沉积物孔隙度为 93.0%, 4~7 cm 沉积物孔隙度为 92.4%, 7~10 cm 沉积物孔隙度为 90.5%; d_c/d_z 为溶质的最大浓度梯度, 2009 年春、夏季节东风水库各采样点沉积物间隙水最大浓度梯度见表 1; $D_w = D_0 \Phi^2$, D_w 和 D_0 分别为实际和理想溶液中溶质的分子扩散系数; 无机汞的 D_0 值取 $9.5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$, 甲基汞的 D_0 值取 $1.3 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ ^[23]。

表 1 2009 年春、夏季节东风水库沉积物间隙水无机汞、有机汞扩散通量

Table 1 Diffusion flux of mercury and methylmercury in sediment-water of the Dongfeng Reservoir in spring and summer of 2009

采样点	通量计算	无机汞		甲基汞	
		春季	夏季	春季	夏季
上游	d_c/d_z	0.86	2.18	0.073	0.093
	Φ 值	93.0	93.0	92.4	93.0
	层位	0~1	0~1	0~7	0~2
	扩散通量	5.68	14.39	0.65	0.84
中游	d_c/d_z	1.56	4.63	0.106	0.165
	Φ 值	93.0	93.0	93.0	93.0
	层位	0~2	0~1	0~1	0~1
	扩散通量	10.30	30.56	0.96	1.49
下游	d_c/d_z	1.12	3.16	0.093	0.100
	Φ 值	93.0	93.0	93.0	93.0
	层位	0~1	0~1	0~1	0~2
	扩散通量	7.39	20.86	0.84	0.90

注: 表中数据单位 Φ 值/%, 层位/cm, 扩散通量/[ng/(m²·d)]

表 1 显示了 2009 年春、夏季节东风水库沉积物间隙水无机汞、有机汞向上覆水体的扩散通量。从表可以看出, 夏季沉积物间隙水无机汞向上覆水体的扩散通量高于春季, 约是春季的 3 倍。夏季间隙水无机汞的扩散通量高于春季, 主要是由于夏季沉积物间隙水无机汞的浓度高于春季所造成。从表 1 还可看出, 沉积物间隙水甲基汞向上覆水体的扩散通量也是夏季高于春季, 其季节性变化主要由于表层沉积物间隙水 DMeHg 浓度的季节性变化所致。

2.4 沉积物间隙水汞及甲基汞的扩散作用对上覆水体汞的贡献

尽管本研究仅考虑了沉积物中静态介质的分子

扩散,但所得数据对于讨论沉积物与上覆水体界面间的物质循环以及沉积物对上覆水体水化学条件的影响仍然十分有效。如果认为分子扩散是沉积物无机汞和甲基汞迁移的唯一途径,并假设水库水体充分混匀,可以估算出沉积物中溶解态无机汞和甲基汞向上覆水体扩散迁移对水质的影响程度 α ^[20,24]:

$$\alpha = F_D \times t_w / hC \quad (2)$$

式中, F_D 为溶质自底部沉积物向上覆水体扩散的流量, h 为湖水深度, t_w 为水库水力停留时间, C 为上覆水体中溶质的平均浓度。

从公式可知,间隙水中无机汞和甲基汞对上覆水的贡献主要与该物质的扩散流量,水库水力停留时间、水体中相应物质的含量及水体深度有关。

根据电站运行年报,东风水库2009年春季(2月份)月均入库流量为268 m³/s,夏季(7月份)月均入库流量为389 m³/s,根据水库的总库容为10.25 × 10⁸ m³,可计算出2009年春季(2月份)东风水库的水力停留时间为44.3天,2009年夏季(7月份)份东风水库的水力停留时间为30.6天。再根据公式(2)和采样时各采样点的实测水深可计算出个采样点的 α 值(见表2)。

表2显示了2009年春、夏季节东风水库沉积物间隙水无机汞及甲基汞扩散迁移对水体的贡献率。数据显示,2009年夏季东风水库沉积物间隙水无机汞的扩散迁移对水体的贡献率明显大于春季。主要是由于夏季沉积物间隙水无机汞含量比春季高,使得夏季无机汞的扩散流量大于春季所致。此外,还可以看出,水库沉积物间隙水甲基汞的扩散迁移对水体的贡献明显大于无机汞,最高可高达30%,再次证明了水库沉积物是水库水体甲基汞的重要来源。

表2 2009年春、夏季节东风水库沉积物间隙水无机汞及甲基汞扩散对水体的贡献率

Table 2 Contribution rates of mercury and methylmercury diffusion in sediment-water to overlying water of the Dongfeng Reservoir in spring and summer of 2009 %

类别	季节	上游	中游	下游
汞	春季	8.3	7.7	7.2
	夏季	12.0	17.5	11.2
甲基汞	春季	19.4	26.3	19.9
	夏季	23.8	30.0	15.4

3 结论

1)东风水库沉积物间隙水DHg浓度季节性差异较大,夏季远高于春季,是春季的1.9倍。春季,东风水库沉积物间隙水溶解态总汞浓度为0.93~5.79 ng/L,平均为2.41 ng/L;夏季浓度为1.79~13.56 ng/L,平均为4.56 ng/L。

2)东风水库沉积物间隙水DMeHg浓度平均值略低于春季。春季,东风水库沉积物间隙水DMeHg浓度为0.105~0.590 ng/L,平均为0.261 ng/L;夏季浓度为0.091~0.459 ng/L,平均为0.233 ng/L。

3)东风水库沉积物间隙水中无机汞和甲基汞浓度均高于上覆水体,均有向上覆水体扩散的趋势;沉积物间隙水中无机汞和甲基汞向上覆水体的扩散流量均是夏季大于春季。

4)水库沉积物间隙水甲基汞的扩散迁移对水体的贡献率高达30%,明显大于无机汞,再次证明了水库沉积物间隙水甲基汞向上覆水体扩散是水体甲基汞的重要来源。

参 考 文 献

- [1] Covelli S, Faganeli J, Horvat M, *et al.* Porewater distribution and benthic flux measurements of mercury and methylmercury in the Gulf of Trieste (northern Adriatic Sea)[J]. *Estuar Coast Shelf Sci*, 1999, 48: 415-428.
- [2] Ronco A, Camilion C, Manassero M. Geochemistry of heavy metals in bottom sediments from streams of the western coast of the Rio de la Plata estuary, Argentina [J]. *Environmental Geochemistry and Health*, 2001, 23: 89-103.
- [3] Van den Berg G A, Gustav Loch J P, Van der Heijden L M, *et al.* Mobilization of heavy metals in contaminated sediments in the river Meuse, the Netherlands[J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 1999, 116: 567-586.
- [4] 汪福顺, 刘丛强, 梁小兵, 等. 铁锰在贵州阿哈湖沉积物中的分离[J]. *环境科学*, 2005, 26(1): 135-140.
- [5] 马英军, 万国江, 刘丛强, 等. 泸沽湖氧化还原边界层的季节性迁移及其对水质的影响[J]. *环境科学学报*, 2000, 20(1): 27-32.
- [6] 张军方. 乌江流域普定、东风水库汞的分布与质量平衡研究[D]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 2009.
- [7] Kotnik J. Modeling of mercury and its compounds in Lake Velenje[J]. *The Doctoral Thesis of Politechnic Nova Gorica School of Environmental Sciences*, 2000, 97-119.
- [8] 潘鲁生, 商立海, 冯新斌, 等. 乌江流域东风水库水体中不同形态汞的时空分布特征[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2010, 29(3): 256-263.

- [9] 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,2003,22(5):10-13.
- [10] 蒋红梅,冯新斌,梁琰,等.蒸馏-乙基化结合 GC-CVAFS 测定天然水体中的甲基汞[J].中国环境科学,2004,24(5):568-571.
- [11] 王雨春,黄荣贵,万国江. 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,1998,(01):94-96.
- [12] 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.
- [13] Fujiki M, and Tajima S. The pollution of Minamata Bay by mercury[J]. Water Science and Technology, 1992,25:133-140.
- [14] Ravichandran M, Aiken G R, Reddy M M, *et al.* Enhanced dissolution of innabar (mercury sulfide) by dissolved organic matter isolated from the Florida Everglades[J]. Environmental Science & Technology, 1998,32:3305-3311.
- [15] 刘凯. 贵州东风水库中不同形态汞迁移转化规律的初步探讨[D]. 贵阳:中国科学院地球化学研究所,2009.
- [16] 赵馨. 普定水库中不同形态汞迁移转化规律的初步探讨[D]. 贵阳:西南大学,2009.
- [17] 潘鲁生,刘秀伟,石春梅,等. 乌江流域东风水库沉积物中汞及甲基汞的时空分部特征[J]. 地球与环境,2012,40(2):201-207.
- [18] 刘金铃,丁振华. 汞的甲基化研究进展[J]. 地球与环境,2007,35(3):215-222.
- [19] 王雨春. 贵州红枫湖、百花湖沉积物-水界面营元素(磷、氮、碳)的生物地球化学作用[D]. 贵阳:中国科学院地球化学研究所,2001.
- [20] 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.
- [21] Berner R A. Early diagenesis. A theoretical approach [M]. Princeton Univ. Press, Princeton, NJ. 1980.
- [22] 万国江,林文祝,黄荣贵,等. 红枫湖沉积物¹³⁷Cs 垂直剖面的计年特征及侵蚀示踪[J]. 科学通报,1990,19:1487-1490.
- [23] Gill G A, Bloom N S, Cappellino S, *et al.* Sediment-water fluxes of mercury in Lavaca Bay, Texas [J]. Environmental Science & Technology, 1999,33: 663-669.
- [24] 万国江. 环境质量的地球化学原理[M]. 北京:中国环境科学出版社,1988.

Distribution and Sediment-water Exchange Flux of Dissolved Mercury and Methylmercury in Sediment Pore Waters in Dongfeng Reservoir, Guizhou Province, China

PAN Lusheng^{1, 2}, FENG Xinbin², LIU Xiuwei¹

(1. Institute of Geological Environment Monitoring of Guizhou Province, Guiyang 550004, China;

2. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550180, China)

Abstract: To understand the distribution and diffusion flux of dissolved mercury (DHg) and methylmercury (DMeHg), sediment pore water samples were collected from Dongfeng Reservoir (Guizhou Province, SW China) in spring and summer in 2009. The collected samples were analyzed for DHg and MeHg concentrations. According to our data, the DHg concentrations in sediment pore waters collected in summer are significantly higher than that collected in spring, while the DMeHg showed opposite patterns with the DHg. Our study indicates the great potentials of emission of both DHg and DMeHg from the sediment pore waters to the reservoir, with much higher emission flux in summer compared that in spring. Compared with DHg, much larger proportion (up to 30%) of DMeHg can be emitted to the reservoir, indicating that sediment pore waters are important sources of MeHg to the reservoir.

Key words: Dongfeng reservoir; sediment pore water; dissolved mercury; dissolved methylmercury