

夜郎湖水库水体甲基汞的分布模式初步研究

张军方^{1,2,3}, 冯新斌², 阎海鱼², 李平², 郭艳娜^{2,3}, 孟博^{2,3}, 姚珩^{2,3}

(1 中国科学院地球化学研究所, 环境地球化学国家重点研究实验室, 贵阳 550002; 2 中国科学院研究生院, 北京 100039; 3 贵州省水污染控制与资源化技术研究重点实验室, 贵阳 550002)

摘要: 本文通过对贵州夜郎湖水库水体的 2006 年 7 月、2007 年 1 月及 3 月三次采样, 研究了甲基汞的时空分布模式, 并探讨影响其分布的不同控制因素。比较发现, 夏季水体所有形态甲基汞(总甲基汞、溶解态甲基汞、颗粒态甲基汞)均显著高于其他两季($p < 0.001$), 而冬春两季甲基汞浓度没有明显差异。空间分布表明, 夏季总甲基汞平均浓度从水库上游至下游大坝处呈现稳步上升的分布趋势, 大坝处总甲基汞是上游库体的 1.72 倍, 是同期监测入库河流的 2.58 倍, 这说明河流经水库蓄水后, 甲基汞浓度在夜郎湖水库库体内升高和蓄集, 并且下游水体具有更强的甲基汞蓄集能力。研究进一步发现, 水质参数悬浮颗粒物(SPM)、水温(T)和硝酸盐(NO_3^-)与各形态甲基汞之间存在显著的正相关关系, 表明这些参数对于各形态甲基汞的季节分布起着重要作用。在夏季丰水期, 河流由于雨水带进大量的农田和土壤颗粒, 而成为夜郎湖水体甲基汞的一个重要输入源, 同时夏季相对活跃的农业耕作活动带来表层土壤的扰动增加, 这可能是引起夜郎湖水体甲基汞水平升高的一个重要原因。

关键词: 夜郎湖水库; 甲基汞; 时空分布; 控制因素

中图分类号: X131.2 **文献标识码:** A **文章编号:** 1672-9250(2009)03-0293-06

甲基汞是一种可生物累积的有毒持久性污染物质^[1,2], 是汞的各种形态中生物毒性最大的一种。对普通人群而言, 鱼类的捕食是被认为人体甲基汞暴露的主要途径, 从而对人类的健康带来潜在的危害^[3,4]。虽然大量的研究^[5,6,7]已经揭示了人工湖库的建立将导致甲基汞的升高, 但是汞的环境地球化学循环的复杂性使水体中甲基汞的分布、迁移转化机制等仍然了解甚少。

水体的水质理化性质不仅和其所在流域的地质条件、植被类型和气候等有关, 而且还和流域内的人为活动的点源或非点源输入有着紧密联系^[8]。已有研究^[9,10,11]充分表明水体非点源汞的输入可以由人为活动改变地貌的农田耕作、城镇化等引起, 并且这些改变地貌的人为活动对于汞的输入显得相当重要。夜郎湖流域处于乌江流域的上游区域, 该区域系亚高原生态环境脆弱区, 其主要的陆生地貌为农业用地, 主要污染源来自于流域内的农业面源污染。由于陡坡开荒面积大, 耕作方式粗放, 加上典型的石

漠化问题, 导致水土流失问题严重, 土壤贫瘠^[12]。因此, 相比其他地区, 该区域的农业活动就会需要使用更多的化肥来平衡水土流失所带走的作物营养物质。这种特殊的区域地理环境以及农业主导的区域经济为揭示夜郎湖水库水体甲基汞的分布特征及其控制因素提供了新的思路。本文通过对夜郎湖水库四个水体采样剖面、三次不同季节的各形态甲基汞的水样分析探讨了夜郎湖水库甲基汞的分布模式及控制因素。

1 材料与方法

1.1 采样点概述及样品采集

夜郎湖水库(图 1, 表 1)位于贵州省普定县境内, 北纬 $26^{\circ}23'$, 东经 $105^{\circ}48'$, 又称普定水库, 是 1994 年蓄水人工湖库, 其上游入湖支流主要有三岔河和波玉河, 湖库运行以来主要用以发电、防洪、旅游和供水。我们选择了四个采样剖面(图 1), 分别是: (1) 入库支流三岔河与波玉河的混合处采样点

收稿日期: 2009-03-02; 改回日期: 2009-07-05

基金项目: 国家自然科学基金重点项目(40532014)

第一作者简介: 张军方(1979—), 男, 博士研究生, 研究方向为污染物环境行为及其控制研究。E-mail: z_junfang@126.com

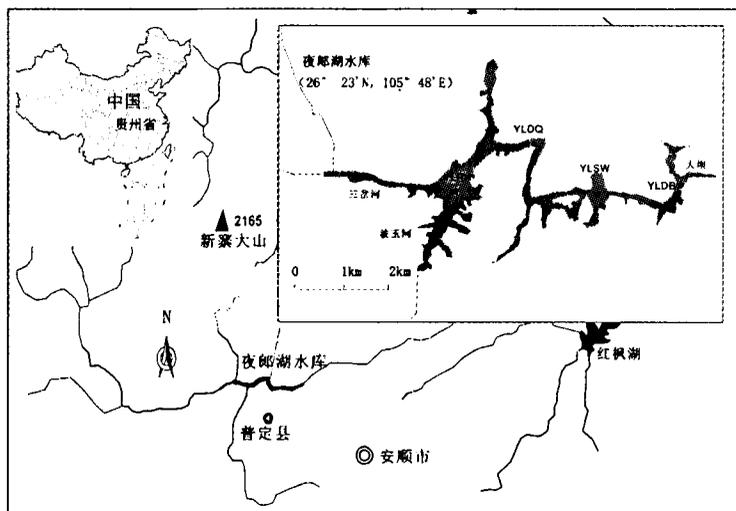


图1 夜郎湖水库地理位置图及其采样布点图

Fig. 1 Map of the Yelanghu Reservoir, China, and the sampling locations

YLRH,代表水库的上游区;(2)大桥上游方向500米处采样点YLDQ及沙湾采样点(YLSW)两个采样点代表水库中游区;(3)水库大坝上游500米处采样点YLDB代表水库下游区域。采样时间为2006年7月、2007年1月和3月分别代表夏、冬、春三季。采样点YLDB靠近大坝,该处水深的季节性波动较大,在7月份的雨季达到45 m,而在春季,降水较少,水位降为28 m。

表1 夜郎湖水库基本特征参数

Table 1 Hydrological characteristics of the Yelanghu Reservoir

参数	数值
正常蓄水位时水面面积 (km ²)	19.25
流域面积 (km ²)	5871
正常蓄水位时库容 (10 ⁶ m ³)	420
平均库容 (10 ⁶ m ³)	248
最大深度 (m)	45
平均深度 (m)	13
理论水力停留时间 (d)	27

采样时将船只停靠在水库两岸中间位置,采用Van-Dorn采样器对采样剖面的不同深度进行采样,采样的深度间隔根据采样点的水深情况一般为5~20 m,其中表层为水面下20 cm处取样。河流样在水面下10 cm处取样。每个采样点取过滤和未过滤两种水样分别用于测定总甲基汞(TMHg)和溶解态甲基汞(DMHg),颗粒态甲基汞(PMHg)定义为总甲基汞与溶解态甲基汞的差值。过滤水样用0.45 μm的微孔滤膜(Millipore)现场过滤,水样用0.5%盐酸酸化存于经过超净技术处理过的硼硅玻璃瓶

中,然后放在冰箱中冷藏避光保存。溶解有机碳(DOC)、悬浮颗粒物(SPM)及硝酸根离子(NO₃⁻)各按相应要求进行采样和保存。

1.2 样品的分析

样品总甲基汞和溶解态甲基汞的测定采用蒸馏-乙基化结合GC-CVAFS法^[13]。水样中的甲基汞首先在145℃下蒸馏以去掉有机质等干扰物质,然后和四乙基硼化钠反应生成挥发性甲基乙基汞,经氮气吹扫捕集于Tenax富集管,并将富集于Tenax管各种汞形态在80~120℃下解析出来,在恒温气相色谱中,把甲基乙基汞从其他挥发性汞形态中分离出来经900℃石英沙管分解成Hg(0)进入到冷原子荧光汞检测仪中检测。该方法的加标回收率为88.2%~108.2%,最低检测限为0.009 ng/L。水样的温度(T)、溶解氧(DO)、pH在采样时现场测定(pIONner 65便携式多参数仪),溶解有机碳(DOC)用高温燃烧法进行测定,悬浮颗粒物(SPM)重量法测定,硝酸根离子(NO₃⁻)采用离子色谱法(Dionex)测定。分析过程的质量保证和质量控制采用现场空白、系统空白及平行样控制。

2 结果与讨论

2.1 主要水质参数季节变化

图2显示了水库剖面的温度、pH、溶解氧及季节变化。从图2中可看出,各采样点夏季pH从表层至底层出现下降的趋势,而对于其他两季除春季大坝位置仍有这种下降趋势外,其余均没有明显变化趋势。冬季水温从表层至底层没有显著变化,呈现充分混匀的状态,春季随着气温的增加,水温开始增加,表层温度增加幅度大于底层,呈现从表层至底层下降的趋势,而到了夏季,这种趋势演变为5 m或10 m处有一个明显的温度跳跃,表明水体在夏季存在着明显的分层,在5 m或10 m以下为均温层。各季各点DO总体呈现出下降的趋势,而对于冬季由于处于混匀状态,各采样点除在表层与空气接触溶解氧较高外,在剖面上没有显著变化。

2.2 甲基汞的水体分布

图3显示了分别代表丰水期夏季和枯水期的冬季及春季的2006年7月、2007年1月和3月的总甲基汞、溶解态甲基汞、颗粒态甲基汞的水体剖面分布。夏季所有形态甲基汞与其他两季具有显著差异

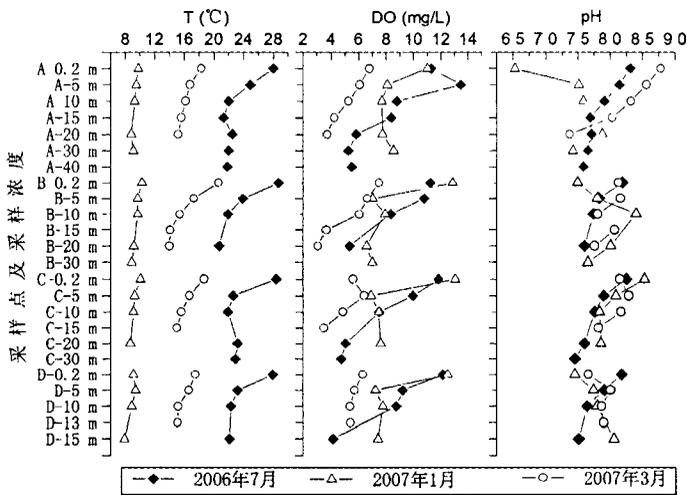


图 2 夜郎湖水库温度, pH, 溶解氧季节变化(图中 A、B、C、D 分别表示 YLDB、YLSW、YLDQ、YLRH 采样点)

Fig. 2 Seasonal distribution of DO, pH and water temperature (T) in the Yelanghu Reservoir (A, B, C and D represents YLDB, YLSW, YLDQ and YLRH sampling sites respectively)

性($p < 0.001$), 夏季总甲基汞分布在 0.19 至 0.51 ng/L 的范围内, 平均值(\pm SD) 0.32 ± 0.10 ng/L, 高于其他两季(表 2)。其中, 位于大坝的 YLDB 采

样点的最大值 0.51 ng/L 是其他两季最大值的 2.74 倍。从图 3 中的总甲基汞的分布也可以看出 7 月份均温层的总甲基汞有增加趋势, 尤其是 YLDB 采样点均温层总甲基汞的显著增加, 从表层的 0.19 ng/L 增加到均温层的 0.51 ng/L。许多研究表明在均温层的甲基汞增加趋势与加强的甲基化速率、沉降中的颗粒物的积累有关, 而不是来源于水体底部沉积物的释放^[14]。但也有些研究^[15]表明, 升高的甲基汞主要来自于沉积物的释放, 而这主要是在一些有高汞污染沉积物的水体里。本研究中大坝采样点总甲基汞和溶解态甲基汞的峰值均没有出现最底层即接近于水和沉积物界面处, 这表明水体中的甲基汞并不来源于沉积物的释放, 而来源于自身甲基化速率的增加或上层水体含甲基汞颗粒物的沉降。

从湖库上游至下游不同采样剖面的总甲基汞分布来看, 夏季水体总甲基汞平均值从湖库上游至下游呈现均匀上升趋势(图 4), 其中位于水库下游大坝处的 YLDB 的甲基汞剖面平均浓度是位于上游的 YLRH 的 1.72 倍。与 2006 年 7 月同期监测的该水库的入库河流(波玉河与三岔河表层水)总甲基汞平均值^[16]的比较来看, 入库河流浓度仅为 YLRH 的 0.67 倍和 YLDB 的 0.39 倍(图 4)。这说明, 河流经水库蓄水后, 甲基汞浓度在水库库体内升高和蓄集, 并且水库下游水体具有更强的甲基汞蓄集能力。

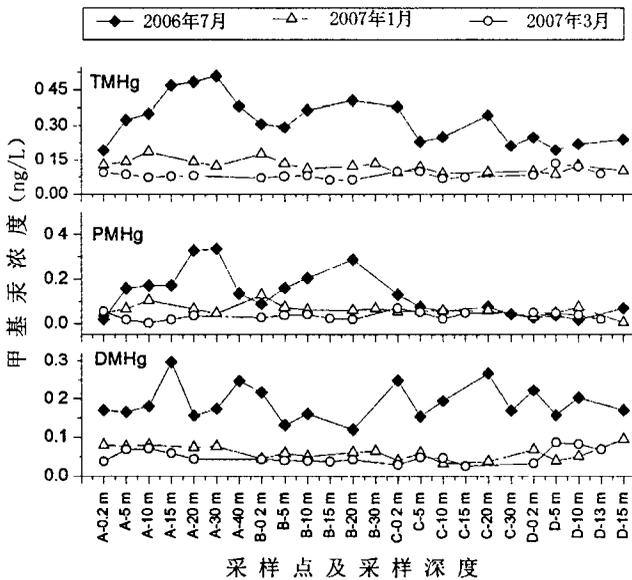


图 3 夜郎湖水库各形态甲基汞浓度分布图(图中 A、B、C、D 分别表示 YLDB、YLSW、YLDQ、YLRH 采样点)

Fig. 3 Concentrations of TMHg, PMHg and DMHg in the Yelanghu Reservoir. (A, B, C and D represents YLDB, YLSW, YLDQ and YLRH sampling sites respectively)

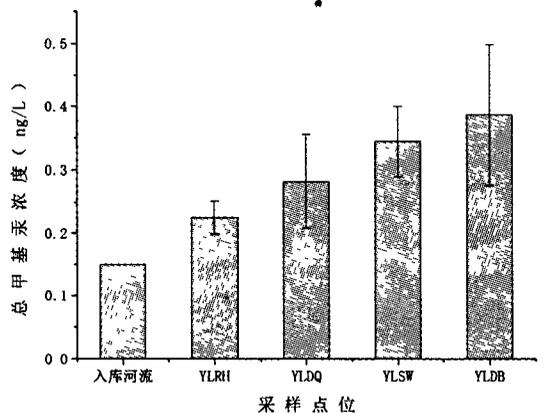


图 4 夜郎湖水库夏季总甲基汞在库体及河流的空间分布图

Fig. 4 Spatial distribution of TMHg in the Yelanghu Reservoir and the inflow rivers in summer

溶解态甲基汞的夏季浓度分布在 0.03 至 0.29 ng/L 的范围内,平均值(\pm SD)0.19 \pm 0.05 ng/L,显著高于另外两季(表 2)。相关性表明,DMHg 与 TMHg 显示了极显著的正相关关系($r=0.74, p<0.001$)。在所有三个采样期,溶解态甲基汞均主导总甲基汞的分配比例。夏季溶解态甲基汞比例平均

值达 63.8%,高于冬季的 50.4%和春季的 59.5%。总的来说,溶解态甲基汞控制了夜郎湖的总甲基汞的分布。颗粒态甲基汞在本研究中定义为总甲基汞与溶解态甲基汞的差值,同样显示了显著的季节差异性($p<0.001$)。

表 2 夜郎湖水库不同形态甲基汞与水质参数的统计浓度值

Table 2 The statistical summary of the concentrations of different methylmercury species and the ancillary parameters for the Yelanghu Reservoir

采样时间	数值类别	TMHg (ng/L)	DMHg (ng/L)	PMHg (ng/L)	SPM (mg/L)	DOC (mg/L)	T(°C)	DO (mg/L)	pH	NO ₃ ⁻ (mg/L)
2006年7月 (20个样)	均值 \pm 标准差	0.32 \pm 0.10	0.19 \pm 0.05	0.13 \pm 0.10	5.45 \pm 1.84	1.86 \pm 1.83	23.7 \pm 2.5	8.38 \pm 2.86	7.83 \pm 0.26	13.8 \pm 1.17
	最小值~最大值	0.19~0.51	0.12~0.29	0.02~0.33	1.43~8.75	0.38~8.15	20.7~28.7	4.14~13.5	7.45~8.31	12.3~17.6
2007年1月 (18个样)	均值 \pm 标准差	0.12 \pm 0.03	0.06 \pm 0.02	0.06 \pm 0.03	3.74 \pm 1.15	1.12 \pm 0.41	9.3 \pm 0.6	8.58 \pm 2.17	7.76 \pm 0.43	11.1 \pm 0.58
	最小值~最大值	0.09~0.19	0.03~0.10	0.01~0.13	1.23~5.90	0.65~2.05	7.90~10.30	6.57~13.06	6.53~8.53	9.43~12.2
2007年3月 (18个样)	均值 \pm 标准差	0.09 \pm 0.02	0.05 \pm 0.02	0.04 \pm 0.02	3.38 \pm 0.86	0.90 \pm 0.06	16.3 \pm 1.7	5.34 \pm 1.26	8.05 \pm 0.33	6.16 \pm 2.42
	最小值~最大值	0.06~0.13	0.03~0.09	0.00~0.07	2.08~4.85	0.81~1.01	14.0~20.6	3.07~7.47	7.37~8.78	2.53~8.68

2.3 甲基汞与水质参数的相关性

水环境中汞的分布被某些水质参数所主导^[17,18]。有研究^[19]表明,控制甲基汞的浓度的环境因素或水质参数主要有水温、pH、无机及有机物质。为了揭示夜郎湖中的甲基汞浓度的控制因子,我们将 3 个季节的各形态甲基汞与 6 个主要水质参数 (SPM, DOC, DO, T, pH, NO₃⁻) 进行相关矩阵分

析,相关矩阵表(表 3)显示,SPM, T 和 NO₃⁻ 和各形态甲基汞之间存在着显著的相关关系,表明 SPM, T 和 NO₃⁻ 对于各形态甲基汞的分布起着重要作用;而 DOC, DO 及 pH 在本研究中对控制各形态甲基汞的分布并不重要,没有(或很少)显示统计意义上的显著相关性。

表 3 不同参数间的 Pearson 相关矩阵表

Table 3 Pearson's correlation matrix, giving the linear correlation coefficients (r) between the variables

	TMHg	DMHg	PMHg	SPM	DOC	T	DO	pH	NO ₃ ⁻
TMHg	1								
DMHg	0.74***	1							
PMHg	0.85***	0.41**	1						
SPM	0.45***	0.27*	0.48***	1					
DOC	0.22	0.23	0.07	0.10	1				
T	0.72***	0.57***	0.33**	0.16	0.28*	1			
DO	0.18	0.29*	0.08	0.18	0.32*	0.14	1		
pH	-0.15	-0.29*	-0.21	0.05	0.07	0.18	0.06	1	
NO ₃ ⁻	0.67***	0.73***	0.46***	0.25*	0.20	0.34**	0.33**	-0.28*	1

* $P<0.05$, ** $P<0.01$, *** $P<0.001$

悬浮颗粒物 (SPM) 对水库甲基汞的分布的影响是非常明显的。夏季,高降水量带来剧烈的含甲基汞颗粒物的地表径流冲刷。表 2 显示出现在夏季的 SPM 的平均值为三季最高,达到 5.03 mg/L,与此同时,TMHg,DMHg 和 PMHg 相比其他两季均出现不程度的升高。这表明从地表径流冲刷带来的颗粒物可能对水体甲基汞的分配有着重要影响。

SPM 与 TMHg (或 PMHg) 的显著相关性 ($p<0.001$) 表明 SPM 是控制 TMHg 及 PMHg 在水库中分配的重要控制因素。

夜郎湖中硝酸盐 (NO₃⁻) 的浓度为 2.53~17.6 mg/L,其中,最大值出现在夏季。从表 3 中可以看出硝酸盐浓度和不同形态的甲基汞均存在着极显著的正相关关系。这种相关性绝不是偶然的,而是和

当地的农业活动有着紧密的联系。夏季夜郎湖流域相对活跃的农业活动大大增加了化肥使用量,在当地硝酸铵是普遍使用的化肥,同时,夏季增强的农业活动带来表层土壤的扰动增加,丰水期大量的地表径流极易冲刷含汞(甲基汞)颗粒物及硝酸盐物质至流域的接纳水体夜郎湖,导致了夏季夜郎湖水体中各形态甲基汞和硝酸盐物质的含量的显著增加。而在其他两季,各形态甲基汞浓度和硝酸盐物质可以降到较低的水平,而此时降水强度和农业活动也相对较弱(春季采样时间为3月初,农田耕作活动刚开始,降雨也较少,因此春季农业活动对水库的作用并未显现)。这暗示着夏季相对活跃的农业活动可引起夜郎湖水体甲基汞水平的增加。

水温是控制微生物汞的甲基化活动的关键因素^[20],在寒冷季节微生物甲基化活动减弱,因此水体甲基汞速率降低。在本研究中,水温与不同形态甲基汞有着显著的正相关关系(表3)。夏季与冬季、春季的气温差分别达到14.4℃及7.4℃,而相应地在冬春两季各形态甲基汞也显著地降低。虽然DO与DMHg存在显著正相关关系($r=0.29$, $p<0.05$),但这种相关性被认为是一种偶然现象,He等^[21]指出低DO有利于汞的甲基化。pH与DMHg之间存在着显著的负相关关系。DOC浓度的变化

范围为0.38~8.15 mg/L(表2),与各形态甲基汞之间没有发现显著相关性。

3 结论

本文对夜郎湖水库各形态甲基汞的时空分布及其控制因素进行了调查研究,主要得出以下结论:

1) 夏季水体所有形态甲基汞(总甲基汞、溶解态甲基汞、颗粒态甲基汞)均显著高于其他两季($p<0.001$),而冬春两季甲基汞浓度没有明显差异。

2) 空间分布表明,夏季总甲基汞平均浓度从水库上游至下游大坝处呈现稳步上升的分布趋势,大坝处总甲基汞是上游库体的1.72倍,是同期监测入库河流的2.58倍,这说明河流经水库蓄水后,甲基汞浓度在夜郎湖水库库体内升高和蓄集,并且水库下游水体具有更强的甲基汞蓄集能力。

3) 水质参数悬浮颗粒物(SPM)、水温(T)和硝酸盐(NO_3^-)与各形态甲基汞之间存在显著的正相关关系,表明这些参数对于各形态甲基汞的季节分布起着重要作用。夏季丰水期,河流由于雨水带进大量的农田和土壤颗粒,而成为夜郎湖水体甲基汞的一个重要输入源,同时夏季相对活跃的农业耕作活动可能引起夜郎湖水体甲基汞水平的升高。

参 考 文 献

- [1] U. S. EPA. Mercury Study Report to Congress [M]. 1997. <http://www.epa.gov/mercury/report.htm> (accessed July 2007).
- [2] United Nations Environment Programme (UNEP). Global Mercury Assessment Report. UNEP Chemicals, Geneva, Switzerland [M]. 2002. <http://www.chem.unep.ch/MERCURY/> (accessed July 2007).
- [3] Clarkson T W, Magos L, Myers G J. Human exposure to mercury: the three modern dilemmas [J]. J Trace Elem Exp Med, 2003, 16: 321-343.
- [4] Tchounwou P B, Ayensu W K, Ninashvili N, *et al.* Environmental exposure to mercury and its toxicopathologic implications for public health [J]. Environ Toxicol, 2003, 18: 149-175.
- [5] Bodaly R A, Hecky R E, Fudge R J P. Increases in fish mercury levels in lakes flooded by the Churchill River diversion, northern Manitoba [J]. Can J Fish Aquat Sci, 1984, 41: 682-691.
- [6] Tremblay A, Lucotte M, Schetagne R. Total mercury and methylmercury accumulation in zooplankton of hydroelectric reservoirs in northern Québec Canada [J]. Sci Total Environ, 1998, 213: 307-315.
- [7] Montgomery S, Lucotte M, Rheault I. Temporal and spatial influences of flooding on dissolved mercury in boreal reservoirs [J]. Sci Total Environ, 2000, 260: 147-157.
- [8] Lyons W B, Fitzgibbon T O, Welch K A, *et al.* Mercury geochemistry of the Scioto River, Ohio: Impact of agriculture and urbanization [J]. Appl Geochem, 2006, 21: 1880-1888.
- [9] Balogh S J, Meyer M L, Johnson D K. Transport of mercury in three contrasting river basins [J]. Environ Sci Technol, 1998, 32: 456-462.
- [10] Mason R P, Sullivan K A. Mercury and methylmercury transport through an urban watershed [J]. Water Res, 1998, 32: 321-330.

- [11] Warner K A, Bonzongo J C, Roden E E, *et al.*. Effect of watershed parameters on mercury distribution in different environmental compartments in the Mobile Alabama River Basin, USA [J]. *Sci Total Environ*, 2005, 347: 187–207.
- [12] 朱俊. 水坝拦截对乌江生源要素生物地球化学循环的影响[D]. 贵阳: 中国科学院博士学位研究生学位论文, 2005.
- [13] 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[J]. *中国环境科学*, 2004, 24(5): 568–571.
- [14] Regnell O, Ewald G. Factors controlling temporal variation in methyl mercury levels in sediment and water in a seasonally stratified lake [J]. *Limnol Oceanogr*, 1997, 42 (8): 1784–1795.
- [15] Furutani A, Rudd J W. Measurement of mercury methylation in lake water and sediment samples [J]. *Appl Environ Microbiol*, 1980, 40: 770–776.
- [16] 郭艳娜. 乌江流域不同演化阶段水库汞的输入输出通量研究[D]. 贵阳: 中国科学院博士学位研究生学位论文, 2008.
- [17] Gill G A, Bruland K W. Mercury speciation in surface freshwater systems in California and other areas [J]. *Environ Sci Technol*, 1990, 24: 1392–1400.
- [18] Bloom N S, Etfler S W. Seasonal variability in mercury speciation of Onondaga Lake (New York) [J]. *Water, Air, Soil Pollut*, 1990, 53: 251–265.
- [19] Ullrich S M, Tanton T W, Abdrashitova S A. Mercury in the aquatic environment: a review of factors affecting methylation [J]. *Cri Rev Environ Sci Technol*, 2001, 31(3): 241–293.
- [20] Hecky R E, Ramsey D J, Bodaly R A, *et al.* Increased methylmercury contamination in fish in newly formed freshwater reservoirs [A]. In: *Advances in mercury toxicology* [C]. Suzuki T, Imura N, Clarkson T W, editors. New York: Plenum Press, 1991, 33–52.
- [21] 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]. *Environ Pollut*, 2008, 154: 56–67.

Preliminary Study on Methylmercury Distribution in Yelanghu Reservoir

ZHANG Jun-fang^{1,2,3}, FENG Xin-bin², YAN Hai-yu², Li ping²,
GUO Yan-na^{2,3}, YAO Heng^{1,2}, MENG Bo

(1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China 2. Graduate School of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China
3. Guizhou Provincial Key Laboratory of Water Pollution Control & Resource Reuse, Guiyang 550002, China)

Abstract: A comprehensive study was conducted during July 2006, January 2007 and March 2007 to determine the distribution of methylmercury and the impacts of some major controlling factors in the Yelanghu Reservoir, Guizhou, China. By comparison, the concentrations of all methylmercury species (TMHg, PMHg and DMHg) in the summer campaign are significantly higher ($p < 0.001$) than those in the winter and spring campaigns. While no statistically significant differences of concentrations of different mercury species are found between the latter two campaigns. In July, spatial distribution showed a steady increase of mean methylmercury from the upstream to the downstream of the reservoir. The mean concentration of TMHg in the downstream water column is 1.72 times higher than that of the upstream column and 2.58 times of the inflows of reservoir, which suggest TMHg in the river system could be increased by a dam effect. The spatial distribution also suggests that the downstream of the reservoir has a stronger accumulation capacity than the upstream. Further investigation revealed that SPM, T and NO_3^- may play an important role in controlling the seasonal distribution of methylmercury in the reservoir. It is assumed that this seasonal distribution of mercury could also be a result of runoff impact. High runoff volume due to abundant precipitation in the summer carried Hg-containing particulates eroded from the agricultural dominated watershed into the reservoir. It is also found that relatively active agricultural activities in the summer season tended to increase the mercury levels in the Puding Reservoir.

Key words: Yelanghu Reservoir; methylmercury; spatial and temporal distribution; controlling factors