

中亚热带典型林分汞的输入/输出平衡

马 明¹, 赖大坤³, 孙 涛¹, 杨 光¹, 王定勇^{1,2*} (1.西南大学资源环境学院,三峡库区生态环境教育部重点实验室,重庆 400715; 2.西南大学重庆市农业资源与环境研究重点实验室,重庆 400716; 3.重庆市江津区四面山森林资源管理局,重庆 4002296)

摘要: 针对四面山常绿阔叶林中汞的输入/输出量进行了为期1年的监测,结果显示:四面山大气降雨中总汞(THg)和总甲基汞(TMeHg)的浓度分别为(11.23 ± 2.6)ng/L 和 (0.35 ± 0.24)ng/L,该地区大气降水受到了人为汞污染的影响;大气降水在经过森林林冠层的过程中,淋溶了沉降在林冠层的大气干沉降,进而导致林内降雨中的 THg 浓度升高,但是林内降雨中的 TMeHg 浓度基本保持不变;森林地表径流水中 THg 的浓度(4.5 ± 2.0)ng/L 相较大气降水明显降低,说明该森林生态系统对大气降水中的汞具有很强的拦截固定作用.枯枝落叶是该森林生态系统主要的汞输入途径,其主要通过叶片对大气环境中汞的吸收,而随着枯枝落叶在地表的积累并分解,这部分汞被富含高浓度溶解性有机物的表层土壤固定在土壤层中.林地地表/大气界面释汞是该森林生态系统汞流失的主要途径,地表释汞通量暖季比较大而冷季较小,其主要受光照、温度、地表汞浓度、土壤含水量等影响.该森林生态系统,总的汞输入量大于总输出量,在汞的地球化学循环中起到汇的作用.

关键词: 汞; 甲基汞; 森林生态系统; 四面山; 输入/输出

中图分类号: X131.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-6923(2017)12-4744-07

Mercury dynamics and mass balance in a subtropical forest in southwest China. MA Ming¹, LAI Da-kun³, SUN Tao¹, YANG Guang¹, WANG Ding-yong^{1,2*} (1.Key Laboratory of the Three Gorges Reservoir Region's Eco-Environment, Ministry of Education, College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400715, China; 2.Chongqing Key Laboratory of Agricultural Resources and Environment, Southwest University, Chongqing 400716, China; 3.Simian Mountain Forest Resources Administration, Chongqing 400296, China) *China Environmental Science*, 2017,37(12):

Abstract: The forest ecosystem plays an important role in the geochemical cycle of mercury, but it is still not clear which compartment is the major source or sink for mercury cycling in the forest ecosystem. Simian Mountain is selected in our research because it has a subtropical monsoon climate and abundant rainfall ranging from 1023mm to 1586mm, which is beneficial to the growth of forest vegetation. Moreover, the evergreen broad-leaf forest in Mt. Simian is the most representative vegetation type preserved in the study reserve. Therefore, the input and output of mercury in this forest was monitored for one year. Results showed that THg and TMeHg concentrations in the precipitation were (11.23 ± 2.6)ng/L and (0.35 ± 0.24)ng/L respectively, which were higher than the global background values probably due to the anthropogenic mercury pollution from ambient cities. The throughfall had higher mercury concentrations than precipitation, which was probably because the precipitation scoured the mercury settled in the canopies by dry deposition. THg concentrations in the forest runoff (4.5 ± 2.0)ng/L decreased remarkably comparing to the precipitation, which confirmed that the forest ecosystem had strong interception and fixation effect on mercury from precipitation. The main input pathway of mercury in the forest ecosystem was through litter, because atmospheric mercury can be absorbed by tree leaves. Moreover, when the tree leaves falling on the ground, the mercury in litter was released to the soil during its decomposition. Finally, this part of mercury was accumulated in the top soil due to the high concentrations of dissolved organic matter, finally leading to higher THg concentrations in the top soil. Mercury emitted from the surface forest

收稿日期: 2017-04-05

基金项目: 国家“973”项目(2013CB430003);国家自然科学基金资助项目(41573105,41173116);重庆市自然科学基金资助项目(cstc2016jcyjA1643)

* 责任作者, 教授, dywang@swu.edu.cn

ground was the main way of output in this forest, which was effected by solar radiation, temperature, mercury concentrations in surface soil, soil moisture and so on. For the studied forest ecological system, the total amount of mercury input was greater than its total output, so it acted as a "sink" in the biogeochemical mercury cycle.

Key words: mercury; methylmercury; forest ecosystem; Simian Mountain; output/input

汞作为自然条件下唯一的液态重金属,其形成的汞蒸气在空气中极易挥发,并可传播很远的距离。目前,已有很多研究指出,偏远地区汞污染主要来自大气汞污染沉降^[1-4],而大气汞的污染源主要是人为源^[5-7]。

森林生态系统是陆地上十分重要的生态系统之一,其具有涵养水源、净化空气等生态功能。汞在森林生态系统中的迁移转化过程已被认为是汞的地球化学循环中的重要环节^[8],森林植被的枝叶、树干、根系均可吸收周围环境中(比如大气以及降水)的汞^[9-11],其中叶片吸收汞的能力最强^[12]。森林植被的枯枝落叶在降解的过程中容易释放出富集在体内的汞,进而造成森林流域水资源潜在的汞污染泄露风险^[10]。森林植被覆盖会明显改变土壤和大气的汞交换过程,植被的截留与吸收转化也会改变降雨中的汞进入下游水体的量,同时不同植被对土壤-大气间汞通量和对降雨中汞迁移、转化的影响方式都不相同。目前还缺少对降雨-森林植被-土壤-下游水体中汞的迁移规律的准确认

识,制约了对整体森林生态系统汞迁移转化的认识。本文选取西南地区具有代表性的常绿阔叶林为研究对象,全面监测森林生态系统各输入/输出途径汞含量的变化并估算汞的输入/输出通量,以期寻找出汞在森林生态系统中的迁移转化规律。

1 试验区概况

重庆市江津区四面山($106^{\circ}22' \sim 106^{\circ}25'$ $30^{\circ}0' \sim 32^{\circ}0'N$),位于距离重庆市主城区 200km 的江津区四面山镇(如图 1 所示),属云贵高原娄山山脉向北延伸的余脉。该山区植被保存良好,林中动植物种类复杂,为重庆市南端的一块绿色屏障,其主要以柳杉(*Cryptomeria fortunei*)、山胡椒(*Lindera glauca*)、四川大头茶(*Gordonia si-chuanensis*)、山茶(*Camellia japonica*)、栲树(*Castanopsis Fargesii*)、柃木(*Eurya nitida Korthals*)、羽藓(*Thuidiaceae*)等为主要建群树种,且已被联合国生态保护专家确定为地球上难得的“天然物种基因库”。

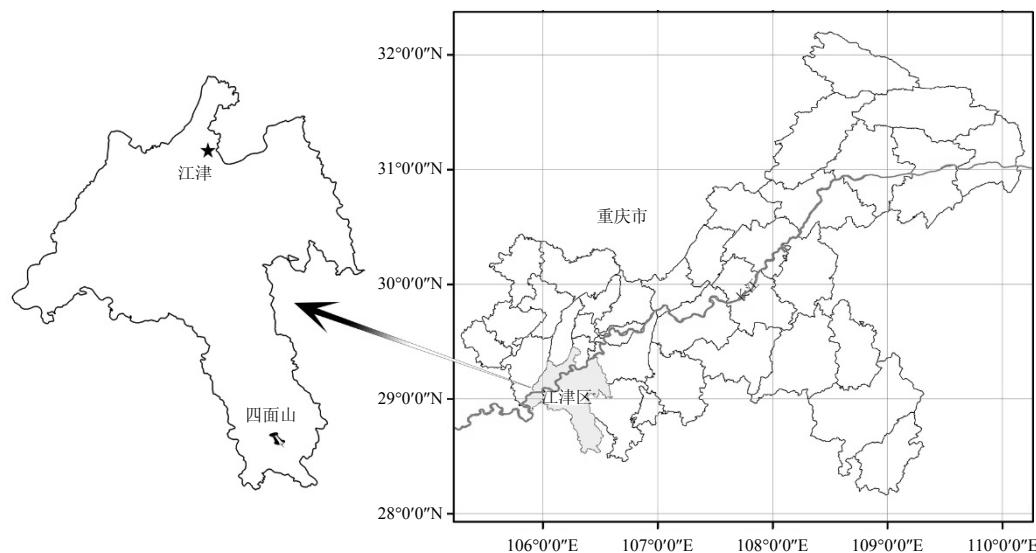


图 1 试验区地理位置示意

Fig.1 Map showing the study site.

四面山属于北半球亚热带季风性湿润气候区,气候温暖湿润,雨量充沛,四季分明,无霜期长达285d.年平均气温13.7℃,流域多年平均降雨量1127mm.

2 材料与方法

2.1 样品采集

林外降水采用APS-3A自动降水降尘采集器(湖南长沙湘蓝仪器有限公司)在空旷区域设置3个点收集,仪器自带可以保持4℃温度的冰箱储存装置,设置每场雨切换1个收集瓶;林内降水选择20m×20m的样方,在样方中随机设置5个自制的林内雨收集装置,收集到的水样被保存在硼硅酸玻璃瓶中.收集到的雨水样以加权平均的方式计算,公式如下:

$$VWM = \frac{X_1 \times V_1 + X_2 \times V_2 + \dots + X_t \times V_t}{V_1 + V_2 + \dots + V_t} \quad (1)$$

式中: X_i 表示降雨中THg或TMeHg浓度,ng/L; V_i 代表每场雨的降雨量,mm.

汞通量的计算采取相加每场雨沉降量的方式计算,公式如下:

$$F_w = \frac{1}{1000} \sum_{i=1}^{i=n} (C^i P^i) \quad (2)$$

式中: F_w 表示年汞湿沉降通量,μg/(m²·a); C^i 表示降雨汞的加权平均浓度,ng/L; P^i 表示年降雨量,mm.

在森林集水区的周边每月月初和中旬2次采集地表径流水,然后装进500mL硼硅酸玻璃瓶中,放入4℃保温箱运回实验室测试.

林内枯落物样品,采用自制的0.5m×0.5m的编织网随机放在4个样点收集落叶,编制网底部离地面50cm,每月采集1次枯落物样品,然后放在自封袋中运回实验室待测.在实验区随机挖5个土壤剖面,然后分层采集土壤样品并放入到自封袋中运回实验室待测.采集到的枯落物样和土壤,冷冻干燥后在玛瑙研钵中研磨过100目筛.

地表释汞通量采用动力通量箱和Tekran 2537X自动测汞仪(浓度检测限=0.1ng/m³)联用的方式测定.其中Tekran 2537X和Tekran1110自动转换器联用,每隔5min自动切换进气通道,以

区分出大气汞浓度和通量箱内部汞浓度.地表释汞通量采用以下公式计算:

$$F = \frac{(C_{out} - C_{in}) \times Q}{A} \quad (3)$$

式中: F 是释汞通量,ng·m²·h; C_{out} 为通量箱进气口浓度,ng/m³; C_{in} 为通量箱出气口浓度,ng/m³; Q 是通过通量箱的大气体积速率,m³/h; A 是指通量箱覆盖地表的覆盖面积,m²;本实验中所用通量箱覆盖地表面积为0.08m².实验中每个季度汞通量实验连续进行1个星期,以代表每个季度的汞通量变化规律.

本实验监测时间为2013年3月~2014年2月,监测期间按照以上采样介绍方法进行采样.

2.2 样品测试

实验中所有的雨水样中THg按照美国环境保护局发布的1631标准方法^[13]通过氧化(BrCl加入量<0.2%V/V)、吹气净化、吸附、解吸、冷原子荧光(CVAFS, Tekran 2500)等步骤进行测定;TMeHg按照改良后的美国环境保护局发布的1630标准方法^[14]通过蒸馏-乙基化GC-CVAFS的方法测定^[15].采集到的枯落物样和土壤,冷冻干燥后在玛瑙研钵中研磨过100目筛,最后用DMA-80测汞仪(浓度检测限=0.2ng/g)测定枯落物和土壤样中的THg浓度.为保证数据的准确性,实验过程中所有的玻璃器皿均使用硼硅酸玻璃材质,且在使用前均需在30%的硝酸(V/V)中浸泡24h,然后用超纯水冲洗,放在500℃马弗炉中超净化处理40min,然后在超净实验台冷却后用聚乙烯塑料袋包装以备使用.针对每个样品按要求测试3个平行,平行率在87%~116%之间,同时测试过程中均需对测试装置进行空白降低处理,空白值均低于样品含量的2%.

3 结果与分析

3.1 大气降水、林内降雨、枯透水以及地表径流汞浓度和通量

由表1知,四面山地区大气降水中THg和TMeHg的浓度分别为(11.23±2.6)ng/L和(0.35±0.24)ng/L.其THg浓度比乌江流域^[16](36ng/L)和重庆主城区大气降水^[17](30.67ng/L)低,但是

MeHg 浓度和重庆市主城区(0.35ng/L)和乌江流域(0.41ng/L)基本相当,说明处于重庆市和贵州省交界处的四面山地区遭受到了周边工业城市大气汞污染的影响.大气中汞含量主要来源于人为活动的影响,而重庆市地区人为活动以及工业生产较多,释放到大气中的汞较多,加之汞在大气中具有较强的流动性,随着大气的流动

来自城市上方并携带汞污染物的气团被转移到偏远地区,最后伴随着大气降水沉降到地表;而大气中甲基汞的来源比较复杂,有研究指出大气中的甲基汞浓度变化和人类活动的关系并不明显,有可能来自甲基汞浓度较高的地表水,大气中的水汽中 Hg^{2+} 也存在着一定的甲基化反应作用产生的甲基汞^[18-20].

表 1 大气降水、林内降雨和枯透水中 THg 和 MeHg 的浓度以及通量

Table 1 THg and MeHg concentrations and deposition fluxes in precipitation, throughfall and litterfall

类型	THg 浓度(ng/L)	MeHg 浓度(ng/L)	THg 通量[$\mu g/(m^2 \cdot a)$]	MeHg 通量[$\mu g/(m^2 \cdot a)$]
大气降水	11.23±2.6	0.35±0.24	17.14	0.53
林内降水	23.56±8.4	0.41±0.39	30.77	0.54
地表径流水	4.50±2.0	0.30±0.08	0.93	0.62
枯落物	100.4±23 (ng/g)	0.81±0.25 (ng/g)	43.37	0.35

大气降水在经过森林林冠层后,THg 和 TMeHg 浓度分别上升到(23.56±8.4) ng/L 和 (0.41±0.39) ng/L,同样林内降雨的汞沉降通量也有增加.四面山森林郁闭度高达 0.95,较高的森林郁闭度使得林冠层枝叶积累了大量的来自大气层沉降下来的颗粒态污染物,这些污染物随着大气降水穿过林冠层而溶解在降水中,所以林内降雨中的汞浓度比大气降水要高.

林内降水在降落到地面后,穿过地表枯落物以及土壤层会形成地表径流和壤中流,进而形成地表径流.地表径流是森林生态系统汞输出的一个重要组成部分,本研究对四面山地表径流水的检测显示,地表径流中 THg 和 TMeHg 的浓度分别为(3.9±2.0)ng/L 和(0.2±0.08)ng/L,对比分析发现该森林生态系统最终流出的地表径流水中 THg 和 TMeHg 的浓度较低,说明该森林生态系统对降水中的汞具有拦截固定的作用.很多研究指出地表枯落物层降解产生的有机物会通过络合作用吸附固定汞,另外地表枯落物层和土壤层中的有机物以及各种官能团、羟基等也会对汞有吸附作用^[21-23],四面山林地地表覆盖有很厚的枯落物层,这些枯枝落叶在降解的过程中势必会产生大量有机质,通过络合作用将降水中汞的固定,所以地表径流和壤中流在经过枯落物层和土壤层后汞的浓度减少.

3.2 森林地表汞释放通量

森林地表汞释放通量是森林输出汞的另外一个重要的途径.该研究区森林地表释汞通量如图 2 所示.统计数据结果显示四面山地表释汞通量为(15.53±11.29)ng/(m²·h)(春)、16.48±14.65ng/(m²·h)(夏)、10.58±9.55ng/(m²·h)(秋)、2.77±3.86ng/(m²·h)(冬),均高于全球自然汞排放通量(0.7~1.1)ng/(m²·h)^[24].观察图 2 也可知,林地地表释汞通量冬季的变化范围相对较小且释汞通量最小而夏季是地表释放汞最多的时期,这说明冬季林分所受到的潜在人为影响较小,光、热等气象条件是影响该区域林地释汞通量的主要因子;林地释汞通量日变化中,每天下午 14:00 左右达到最大值,变化趋势和气温以及光照强度一致,但受林冠层郁闭度的影响,其主要影响因素可能是林内温度和林内土壤温度;另外地表汞释放通量白天和夜晚存在较大的差异,表现为白天释汞通量远大于夜晚释汞通量.大量的研究指出地表释放汞通量和地表土壤汞的浓度、光照强度、土壤温度、土壤湿度等有密切的相关性^[25-28],本实验的研究结果也证实了这个结论.由土壤释放进入大气中的汞主要来源于土壤间隙中所含的 Hg^0 ,以及经过光致还原、热还原和微生物还原等作用使得土壤和孔隙水中的 Hg^{2+} 转化产生的 Hg^0 ,而这些过程都与气象因素(如光照、温度、土壤湿度等)有密不可分的关系^[29].

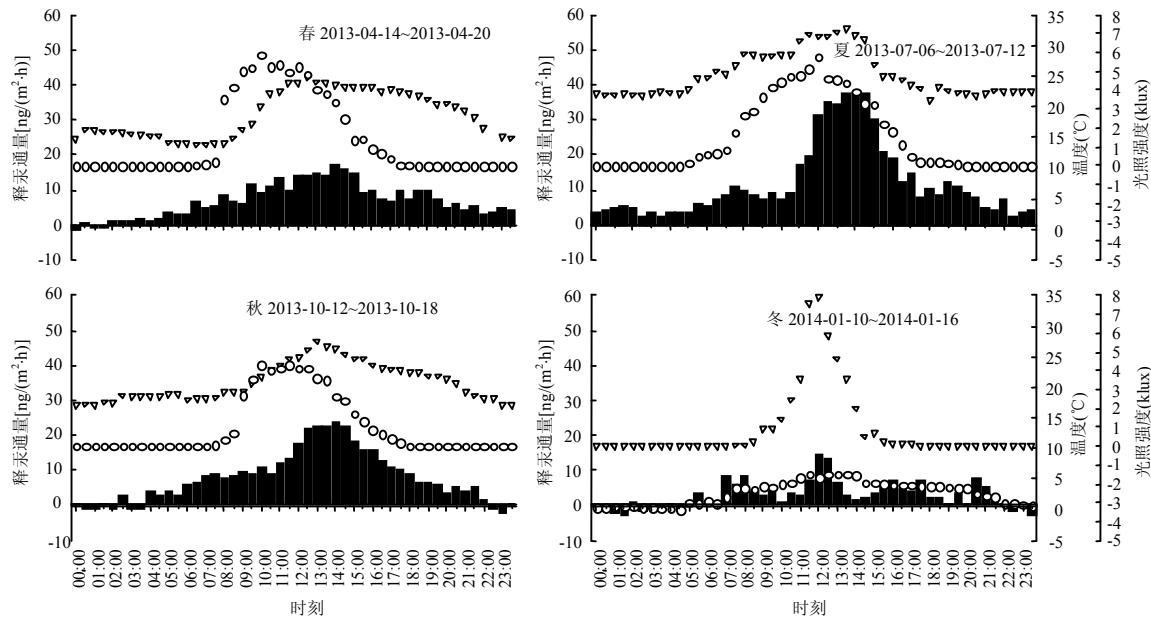


图 2 常绿阔叶林林地地表释汞通量、大气温度和光照强度

Fig.2 Soil emission fluxes of Hg and air temperature in the evergreen broad-leaf forest field

■ 释汞通量 ◎ 光照强度 ▼ 温度

通过相加各个季度地表释放汞通量的方式计算得出该森林地表年释汞通量为 $64.22\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$, 可知地表释汞通量是地表径流释汞通量 $0.93\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$ 的 69 倍, 说明该森林生态系统主要的汞输出途径是地表释放。

3.3 森林枯落物和土壤汞浓度以及储量

森林林地中汞的浓度和储量估算如表 2 所示。由表 2 知, 该森林生态系统具有较厚的枯落物层(约 18cm), 且随着枯落物的降解枯落物的密度增大同时汞浓度也随之提升。有研究指出植物可以通过根茎和叶片等吸收土壤和大气中的汞, 而植物叶片吸收大气中的汞要比植物根系吸收土壤汞的能力强^[12], 被吸收到植物体内的汞被富集在植物组织中, 而随着植物的新陈代谢部分植物组织脱落最终形成地表枯落物, 进而将富集在植物组织中的汞带到地表。通过计算该森林地表枯落物层汞储量约为 $5445.1\mu\text{g}/\text{m}^2$, 而土壤层为 $173386.4\mu\text{g}/\text{m}^2$, 土壤层储汞量明显大于枯落物层, 这是由于土壤层密度、汞浓度以及厚度均比枯落物层大。值得关注的是, 腐殖质层中汞的浓度最大, 达到了 $(285.8 \pm 17.12)\text{ng/g}$,

随着土壤层的深度增加, 土壤中的汞浓度随之下降。林木叶吸附拦截的汞终将因微生物对枯枝落叶的分解而回归森林土壤, 导致伴随着枯落物的降解溶解性有机质随着雨水的冲刷作用积累到了腐殖质层, 累积到腐殖质层易被土壤牢固吸持, 活性较低, 难于迁徙, 故外源性输入的汞在土壤中逐渐积累。然而随着土壤层的下降, 溶解性有机质被微生物消耗殆尽, 同时土壤层对汞的吸附能力也减弱。

陆地生态系统中汞的最终归属是储存在土壤层中, 同样该森林生态系统中大部分汞的最终归属为土壤层, 由图 3 可知土壤层汞的储量相比枯落物层以及林内降雨、枯落物的年输入量均很大, 说明该森林生态系统每年的输入量并不会引起整个生态系统汞平衡的太大变化。对比汞的年输入和年输出量可知, 该森林生态系统最大的输入途径是枯落物, 其次为林地的直接干沉降和降雨时期的滴落雨和穿透雨, 而最大的输出途径为地表释放, 其次为地表径流水排放。就总体而言, 该森林生态系统汞的总输入量 $74.14\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$ 大于总输出量 $65.15\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$, 汞有少量的净输入量

$8.99\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{a})$, 所以该森林生态系统在汞的地球化学循环中起到“汇”的作用.

表 2 森林枯落物层和森林土壤层汞浓度以及储量估算

Table 2 The concentrations of THg in the forest floor and different soil layers

	THg(ng/g)	密度(g/cm ³)	厚度(m)	THg 储量(μg/m ²)	总储量(μg/m ²)
林地地表	未分解枯落物层 45.12±12.2	0.26±7.2	0.05±0.02	586.6	
	半分解枯落物层 52.15±10.4	0.51±16.1	0.07±0.04	1861.8	5445.1
	分解枯落物层 60.91±13.3	0.82±5.6	0.06±0.02	2996.8	
土壤层	腐殖层/A 285.8±17.12	1.15±1.9	0.20±0.11	65734.0	
	淋溶层/B 120.4±21.5	1.71±14.5	0.35±0.10	72059.4	173386.4
	沉积层/C 59.8±10.26	1.86±15.7	0.32±0.06	35593.0	

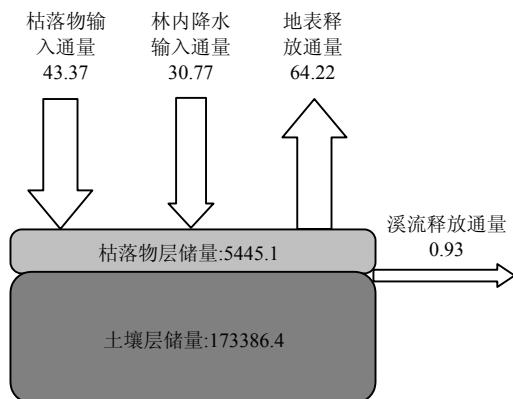


图3 森林生态系统年输出/输入通量和汞储量
Fig.3 Annual ecosystem Hg fluxes and pools in the evergreen broad-leaf forest field
通量单位: $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{a})$; 梯度量单位: $\mu\text{g}/\text{m}^2$

另外, 土壤表层较高的汞浓度, 有可能会随着汞的长期积累以及人为活动、森林火灾等扰动而排放到森林周边环境中^[21], 比如森林砍伐能够导致地表土壤层中的汞随着地表径流流入到森林周边水体、森林火灾可以导致富集在树木中的汞和土壤表层中的汞被释放到大气中.

4 结论

4.1 四面山大气降雨中 THg 和 TMeHg 的浓度分别为 $(11.23\pm2.6)\mu\text{g}/\text{L}$ 和 $(0.35\pm0.24)\mu\text{g}/\text{L}$, 该地区大气降水受到了人为汞污染的影响; 大气降水在经过森林林冠层的过程中, 淋溶了沉降在林冠层的大气干沉降, 进而导致林内降雨中的 THg 浓度升高, 但是林内降雨中的 TMeHg 浓度基本保持不变; 大气降雨经过森林生态系统的净化后, 形成

的地表径流水中 THg 的浓度 $(4.5\pm2.0)\mu\text{g}/\text{L}$ 明显降低, 说明该森林生态系统对大气降水中的汞具有很强的拦截固定作用.

4.2 枯枝落叶是该森林生态系统主要的汞输入途径, 年输入通量为 $43.37\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{a})$, 其主要通过叶片对大气环境中汞的吸收, 而随着枯枝落叶在地表的积累并分解这部分汞被富含高浓度溶解性有机质的表层土壤固定在土壤层中.

4.3 地表释汞是该森林生态系统汞流失的主要途径, 可达 $64.22\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{a})$ 的年释放通量, 地表释汞通量暖季比较大而冷季较小, 其主要受光照、温度、地表汞浓度、土壤含水率等因素影响.

4.4 该森林生态系统, 总的汞输入量大于总输出量, 在汞的地球化学循环中起到“汇”的作用; 但是随着汞在地表的不断积累, 土壤层中的汞有再释放的潜在风险.

参考文献:

- [1] Feng X, Jiang H, Qiu G, et al. Mercury mass balance study in Wujiangdu and Dongfeng reservoirs, Guizhou, China [J]. Environmental Pollution, 2009, 157(10):2594–2603.
- [2] Feng X, Jiang H, Qiu G, et al. Geochemical processes of mercury in Wujiangdu and Dongfeng reservoirs, Guizhou, China [J]. Environmental Pollution, 2009, 157(11):2970–2984.
- [3] Ma M, Wang D, Du H, et al. Mercury dynamics and mass balance in a subtropical forest, southwestern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, 16(7):4529–4537.
- [4] Wang X, Luo J, Yin R, et al. Using Mercury Isotopes to Understand Mercury Accumulation in the Montane Forest Floor of the Eastern Tibetan Plateau [J]. Environmental Science and Technology, 2016, 51(2):801–809.

- [5] Fu X, Feng X, Shang L, et al. Two years of measurements of atmospheric total gaseous mercury (TGM) at a remote site in Mt. Changbai area, Northeastern China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012,12(9):4215–4226.
- [6] Huang J, Kang S, Zhang Q, et al. Atmospheric deposition of trace elements recorded in snow from the Mt. Nyainqntanglha region, southern Tibetan Plateau [J]. *Chemosphere*, 2013,92(8):871–881.
- [7] Yu B, Fu X, Yin R, et al. Isotopic composition of atmospheric mercury in China: new evidence for sources and transformation processes in air and in vegetation [J]. *Environmental Science and Technology*, 2016,50(17):9262–9269.
- [8] Sigler J M, Mao H, Talbot R. Gaseous elemental and reactive mercury in southern New Hampshire [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008,9(6):1929–1942.
- [9] Blackwell B D, Driscoll C T. Deposition of mercury in forests along a montane elevation gradient [J]. *Environmental Science and Technology*, 2015,49(9):5363–5370.
- [10] Blackwell B D, Driscoll C T, Maxwell J A, et al. Changing climate alters inputs and pathways of mercury deposition to forested ecosystems [J]. *Biogeochemistry*, 2014,119(1–3):215–228.
- [11] Laacouri A, Nater E A, Kolka R K. Distribution and uptake dynamics of mercury in leaves of common deciduous tree species in Minnesota, USA [J]. *Environmental Science and Technology*, 2013,47(18):10462–10470.
- [12] Stamenkovic J, Gustin M S. Nonstomatal versus stomatal uptake of atmospheric mercury [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009,43(5):1367–1372.
- [13] Epa U. Method 1631, Revision E: Mercury in water by oxidation, purge and trap, and cold vapor atomic fluorescence spectrometry [S]. US Environmental Protection Agency Washington, DC, 2002.
- [14] Epa U. Method 1630, Methyl mercury in water by distillation, aqueous ethylation, purge and trap, and CVAFS [S]. US Environmental Protection Agency, Washington, DC, 1998.
- [15] 蒋红梅, 冯新斌, 梁璇, 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.
- [16] Guo Y, Feng X, Li Z, et al. Distribution and wet deposition fluxes of total and methyl mercury in Wujiang River Basin, Guizhou, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008,42(30):7096–7103.
- [17] Wang Y, Wang D, Meng B, et al. Spatial and temporal distributions of total and methyl mercury in precipitation in core urban areas, Chongqing, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012,12(20):9417–9426.
- [18] Rudd J W M. Sources of methyl mercury to freshwater ecosystems: A review [J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 1995, 80(1):697–713.
- [19] Downs S G, Macleod C L, Lester J N. Mercury in Precipitation and Its Relation to Bioaccumulation in Fish: A Literature Review [J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 1998,108(1):149–187.
- [20] Gårdfeldt K, Munthe J, Stromberg D, et al. A kinetic study on the abiotic methylation of divalent mercury in the aqueous phase [J]. *The Science of the Total Environment*, 2003,304(1–3):127–136.
- [21] Melendez-Perez J J, Fostier A H, Carvalho J A, et al. Soil and biomass mercury emissions during a prescribed fire in the Amazonian rain forest [J]. *Atmospheric Environment*, 2014,96: 415–422.
- [22] Schlüter K. Review: evaporation of mercury from soils. An integration and synthesis of current knowledge [J]. *Environmental Geology*, 2000,39(3/4):249–271.
- [23] Skyllberg U, Xia K, Bloom P R, et al. Binding of mercury (II) to reduced sulfur in soil organic matter along upland-peat soil transects [J]. *Journal of environmental quality*, 2000,29(3):855–865.
- [24] Lu J Y, Schroeder W H, Berg T, et al. A device for sampling and determination of total particulate mercury in ambient air [J]. *Analytical Chemistry*, 1998,70(11):2403–2408.
- [25] Almeida M D, Marins R V, Paraguetti H H, et al. Mercury degassing from forested and open field soils in Rondônia, Western Amazon, Brazil [J]. *Chemosphere*, 2009,77(1):60–66.
- [26] Feng X, Yan H, Wang S, et al. Seasonal variation of gaseous mercury exchange rate between air and water surface over Baihua reservoir, Guizhou, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(28):4721–4732.
- [27] Silva-Filho E V, Machado W, Oliveira R R, et al. Mercury deposition through litterfall in an Atlantic Forest at Ilha Grande, Southeast Brazil [J]. *Chemosphere*, 2006,65(11):2477–2484.
- [28] Ci Z, Peng F, Xue X, et al. Air-surface exchange of gaseous mercury over permafrost soil: an investigation at a high-altitude (4700m asl) and remote site in the central Qinghai-Tibet Plateau [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016,16(22):14741–14754.
- [29] 张成, 何磊, 王定勇, 等. 重庆几种地表类型土/气界面汞交换通量 [J]. 环境科学学报, 2005,25(8):1085–1090.

作者简介: 马明(1980-),男,宁夏固原人,副教授,博士,主要研究方向为环境污染化学。发表论文 10 余篇。