

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2017092702

李航, 郑冬梅, 李卉颖, 等. 不同条件下河口裸滩地汞、甲基汞含量变化[J]. 环境化学, 2018, 37(6): 1391-1398.

LI Hang, ZHENG Dongmei, LI Huiying, et al. Distribution patterns of total and methyl mercury in sediments along a gradient of salinity, temperature and submerged conditions in Liaohe estuary[J]. Environmental Chemistry, 2018, 37(6): 1391-1398.

不同条件下河口裸滩地汞、甲基汞含量变化*

李 航^{1,2} 郑冬梅^{1,2**} 李卉颖^{1,2} 张 珣^{1,2} 马欢驰^{1,2} 杨继松^{1,2}

(1. 沈阳大学环境学院, 沈阳, 110044; 2. 沈阳大学区域污染环境生态修复教育部重点实验室, 沈阳, 110044)

摘 要 选择辽河口裸滩表、底层(0—10 cm 和 10—20 cm)沉积物作为研究对象,利用恒温培养法进行模拟培养,探讨在不同盐度(CK、0.50%、1.50%和 1.80%)、不同温度(10 ℃、20 ℃和 30 ℃)以及不同淹水状态(全淹水和半淹水)下河口裸滩表层和底层(0—10 cm 和 10—20 cm)沉积物中汞和甲基汞含量的变化趋势.研究发现,随着淹水盐度升高,沉积物中总汞含量逐渐降低;在 10 ℃时,沉积物中甲基汞含量均低于纯化后沉积物,但随淹水盐度升高逐渐升高;温度为 20 ℃和 30 ℃时,甲基汞含量在淹水盐度为 1.50%时最高.相同盐度条件下,沉积物中总汞含量随环境温度(10—30 ℃)升高而逐渐降低,甲基汞含量则逐渐增加;沉积物淹水状态为全淹水时比半淹水状态更有利于沉积物中无机汞的释放和甲基汞的形成.淹水盐度和环境温度的改变,更容易引起表层(0—10 cm)沉积物中汞的释放和甲基汞的产生.

关键词 辽河口裸滩, 汞, 甲基汞, 淹水盐度, 温度, 沉积物.

Distribution patterns of total and methyl mercury in sediments along a gradient of salinity, temperature and submerged conditions in Liaohe estuary

LI Hang^{1,2} ZHENG Dongmei^{1,2**} LI Huiying^{1,2} ZHANG Xun^{1,2}
MA Huanchi^{1,2} YANG Jisong^{1,2}

(1. Environmental College, Shenyang University, Shenyang, 110044, China; 2. Key Laboratory of Eco-restoration of Regional Contaminated Environment, Shenyang University, Shenyang, 110044, China)

Abstract: Response of total (THg) and methyl mercury (MeHg) in sediments from estuary mudflats responding to changing environmental factors like salinity, temperature and flooding conditions was investigated using laboratory incubation experiments. Surface sediments of mudflats, 0—10 cm and 10—20 cm, were collected from the Liaohe estuary. The orthogonal incubation experiments included four treatments for salinity (Control, 0.5%, 1.5% and 1.8%), three temperature gradients (10 ℃, 20 ℃ and 30 ℃) and two flooding conditions (submerged and no-submerged). Results indicated that THg of both sediment layers gradually decreased with salinity. Under a consistent salinity, THg decreased with incubation temperatures within 10—30 ℃ and MeHg changed in the opposite trend. Incubated at 10 ℃, MeHg was lower than the tested sediments, but increased with salinity. Incubated at 20 ℃ and 30 ℃, the highest MeHg was founded when the salinity was 1.5%. More inorganic mercury release and higher MeHg were observed at submerged conditions than those at no-submerged conditions, and this phenomenon was more

2017 年 9 月 27 日收稿(Received: September 27, 2017).

* 国家自然科学基金(41571085, 31300444)资助.

Supported by the National Natural Science Foundation of China (41571085, 31300444).

** 通讯联系人, Tel: 18909823069, E-mail: zhengdm126@163.com

Corresponding author, Tel: 18909823069, E-mail: zhengdm126@163.com

apparent in the sediments from 0—10 cm layers when salinity and incubation temperature changed.

Keywords: mudflats Liaohe estuary, total mercury, methylmercury, submerged salinity, temperature, sediments of estuary.

湿地被称为汞的活性库^[1],是连接陆地生态系统和水生生态系统的枢纽.汞(Hg)及汞的化合物都具有很强的毒性,可以富集并长期存在于环境和生物体内^[2].甲基汞(MeHg)具有很强的脂溶性,能够透过细胞膜进入细胞内^[3],从而在水生动植物体内高度富集,通过食物链危害人体健康.土壤中的盐分及盐度会显著影响重金属环境化学行为,进而影响其生物有效性及毒害^[4].水体中的无机汞容易经微生物转化生成甲基汞,累积于贝类、鱼类体内,再通过食物链积累放大最终进入人体造成健康危害^[5-6].因此,研究湿地沉积物中汞的变化机理对水生生态系统及人类健康具有积极意义.

河口湿地地处我国中高纬度滨海地带,淡咸水交会作用使环境明显区别于内陆湿地,具有其特殊性.近年来,关于河口湿地汞的分布及影响研究较多.丁振华等^[7]研究认为,红树林湿地中沉积物中总汞含量的高低与其自身形态和沉积物中有机质含量有关.三峡库区消落带沉积物中汞赋存形态的变化和甲基汞含量均与淹水状态有关^[8].刘汝海等^[9]对黄河三角洲湿地土壤研究得出,硫酸盐还原菌、淹水环境、有机物质都会影响甲基汞产生和分布;陈效等^[10]对湖北鸭儿湖的底泥研究表明,适当的提高温度和盐度对甲基化有促进作用,盐度为0.70%、温度为35℃时汞的甲基化率最高.裸滩是辽河口主要湿地类型之一,辽河口裸滩由于受到潮汐作用、气候以及地表径流等因素的影响,导致其所处环境的温度和盐度不断发生变化,而海水盐度作为滨海湿地特有的综合型环境因子,对汞的甲基化至关重要.目前,国内对辽河口这方面的研究鲜有报道.

本文采用室内模拟的方式,探讨了全淹水和半淹水两种淹水状态下,淹水盐度和环境温度的变化对辽河口裸滩沉积物中汞和甲基汞的影响机理,为以后对河口湿地沉积物中汞和甲基汞的变化和释放特征的研究提供理论依据.

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 研究区概况

辽河口湿地位于辽河下游入海口,该区气候为暖温带季风气候,年平均气温为7.1—8.9℃,年降水量为557—682 mm,年蒸发量为1392—1705 mm,该区湿地中水分主要来源于河水的滞留和潮水的补给,该区地势平坦,以冲积平原和潮滩为主^[11].区域内分布的主要湿地类型为芦苇(*Phragmites australis*)湿地、翅碱蓬(*Suaeda heteroptera*)湿地和裸滩,湿地土壤类型属于以氯盐为主的滨海盐渍土,且由内陆向海洋方向上土壤盐渍化程度呈上升趋势^[12].在辽河口笔架岭(40.83°N—41.15°N, 121.56°E—121.76°E)地区选择采样地.

1.2 供试沉积物

于2016年6月2号采集辽河口裸滩表层(0—10 cm)和底层(10—20 cm)沉积物,经过预处理后,自然风干保存;为了保证实验用土的均一性,将自然风干后的沉积物研磨混匀.混匀后沉积物理化性质见表1.

表1 供试沉积物基本理化性质

Table 1 Basic physical and chemical properties of the tested sediments

沉积物层次 Sediments layer	pH	有机质 Organic matter/ (g·kg ⁻¹)	总汞 Total mercury/ (mg·kg ⁻¹)	甲基汞 Methylmercury/ (μg·kg ⁻¹)
表层	8.71	11.06	0.15	2.04
底层	8.91	9.57	0.13	1.12

1.3 配制人工海水

依据2016年6月2号在辽河口裸滩地涨潮时海水的盐度(1.84%)以及海水中各主要离子浓度,作

为人工海水的配置标准.盐度及因阳离子含量分别采用电导率仪(DDBJ-350)和离子色谱仪(ICS-5000)^[12].配置 1L 人工海水所需药品如表 2.

表 2 模拟海水溶液各组分配置($\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)
Table 2 Composition of simulated seawater solution ($\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$)

NaCl	KCl	CaCl ₂	MgCl ₂	MgSO ₄	NaHCO ₃	NaBr
26.518	0.725	1.141	2.447	3.305	0.202	0.083

数次实验测得所配海水的盐度约为 1.80%,与实际海水盐度相差不大,以此盐度的人工海水分别稀释成盐度约为 1.50%和 0.50%的两种梯度的盐溶液,以去离子水作空白处理(CK).

1.4 实验方案

(1)将研磨后的表层和底层沉积物分别装入两个塑料盆里,混匀,加入少量纯水,水量应正好浸湿土样,混匀,然后称取 350 g(湿重)沉积物置于烧杯中,静置 24 h 以平衡烧杯中土样;

(2)静置结束后,分别将盐度为 0.50%、1.50%和 1.80%等 3 种梯度的人工海水加入装有土样的烧杯中,以去离子水作为空白处理(CK);每一种盐度条件下均设有两种淹水状态,第一种淹水水面高于沉积物表面 1 cm 处(全淹水),第二种淹水水面低于沉积物表面(半淹水),加入人工海水后,用记号笔在烧杯外壁做好淹水刻度线,以便控制后续加海水的量,每一种淹水状态做 3 组平行;

(3)将以上盐度梯度的样品同时放入 3 个恒温培养箱中,设置 3 个恒温培养箱温度分别为 10 ℃、20 ℃和 30 ℃,使样品在 10 ℃、20 ℃和 30 ℃条件下同时进行培养,均培养 168 h;

(4)在培养过程中,定期向烧杯中补充海水溶液,保证淹水状态处于刻度线上以及淹水盐度不变.采用电导率仪(DDBJ-350)测定淹水盐度;

(5)每一温度条件培养结束后都采集土样,将样品装入自封袋内于冰箱中冷藏.待实验时取出自然风干(没使用冷冻干燥器进行干燥,实验数据可能略偏低),研磨过 80 目筛,备用.

1.5 汞和甲基汞的测定

沉积物中汞的测定采用 $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{SO}_4\text{-V}_2\text{O}_5$ 进行消解^[13],AFS-2202 原子荧光光度计测定,仪器最低检出限为 $0.005 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$,在实验过程中,样品均做 2 个平行处理,相对标准偏差都小于 4%.每批样品做两个试剂空白,采用国家标准样品 GBW-07401 进行土壤汞质量控制,汞国家标准物质含量为 $(0.032 \pm 0.004) \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,验证结果为 $(0.034 \pm 0.002) \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$.

沉积物甲基汞采用^[14]盐酸浸提-二氯甲烷萃取-去离子水反萃取-冷蒸气原子荧光光谱测汞仪测定,相对标准偏差 5%—15%,仪器最低检出限为 $0.005 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$.甲基汞采用 IAEA-433 进行验证,标样甲基汞含量为 $0.17 \pm 0.07 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,验证结果为 $0.15 \pm 0.03 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$.试验中所用的试剂均为优级纯,所用的玻璃器皿使用前均用 $3 \text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的硝酸浸泡 24 h,用自来水冲洗干净后用二次去离子水冲洗 3 遍.

2 结果与讨论(Results and discussion)

2.1 不同盐度、温度对沉积物表层和底层汞的影响

在全淹水和半淹水条件下,表层和底层沉积物中总汞含量随盐度和温度的变化关系如图 1.在全淹水条件下,当温度为 10 ℃时,表层和底层沉积物中汞含量在不同淹水盐度下波动最大,表层沉积物在加入 1.5%盐水时汞最低($0.117 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$),加入纯水时沉积物汞含量最高($0.147 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$),盐度变化对沉积物中汞的变化影响显著($P = 0.02$) (表 3);底层沉积物中汞在淹水盐度为 0.5%时达到最大值($0.150 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$),在淹水为纯水时汞含量最低($0.112 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$),汞浓度在盐度间差异不显著($P = 0.12$) (表 3).20 ℃时,表层和底层沉积物中汞含量均表现为随淹水盐度升高而降低,且盐度间差异显著($P = 0.02$ 和 $P = 0.04$) (表 3).30 ℃时,表层和底层沉积物中汞含量均在纯水条件下达到最大值,分别为 $0.119 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $0.121 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,随着淹水盐度升高逐渐降低,在淹水盐度为 1.80%时,表层和底层沉积物中汞含量最低,分别为 $0.095 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$ 和 $0.098 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$,在盐度间差异显著($P = 0.04$ 和 $P = 0.00$) (表 3).在半淹水条件下,10 ℃时,添加纯水的表层沉积物中汞含量最低($0.123 \text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$),当盐度升高

至 0.50% 时, 沉积物中汞含量为 $0.134 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$, 之后随着淹水盐度升高, 表层沉积物汞含量变化并不明显; 底层在 0.50% 汞含量最高 ($0.139 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$). 在 $20 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 和 $30 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 时, 表层沉积物中汞含量随盐度增加逐渐降低, 且盐度间差异显著 ($P = 0.02$ 和 $P = 0.02$) (表 3), 底层沉积物中汞含量随盐度增加也逐渐降低, 但盐度间差异不显 (表 3).

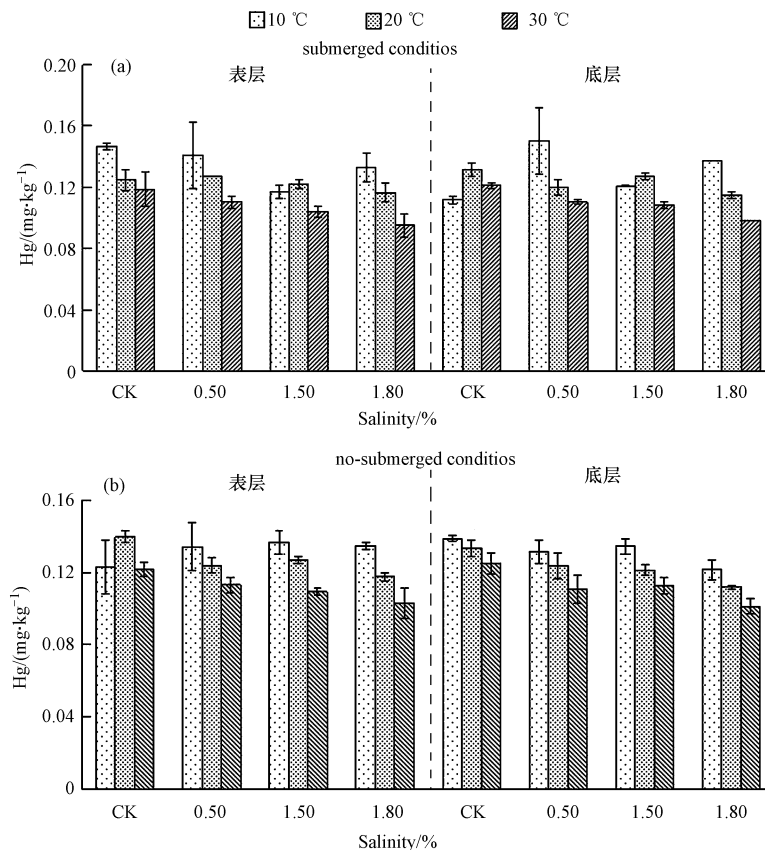


图 1 全淹水 (a) 和半淹水 (b) 状态下表层和底层沉积物汞含量随淹水盐度、温度的变化关系

Fig.1 Variation of total mercury content in top sediments and sub sediments with submergence salinity and environment temperature under submerged conditions (a) and no-submerged conditions (b)

在全淹水时, 当盐度为 0.00% 的底层沉积物和淹水盐度为 1.50% 的表层沉积物中表现为 $10 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 到 $20 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 汞含量增加, $20 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 到 $30 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 汞含量降低, 随温度变化的差异不显著 (表 4); 在其他条件下, 均表现为环境温度越高, 沉积物中汞含量越低, 且温度间差异显著. 在半淹水时, 相同盐度条件下, 随着环境温度升高, 表层和底层沉积物中汞含量也逐渐降低; 在淹水盐度为 1.80% 时, 温度间差异显著 (表 4).

研究表明, 汞的释放是一个吸热过程^[16], 温度升高为汞的释放提供了能量, 有利于汞的释放^[16]; 除此以外, Na^+ 和 K^+ 等碱金属和碱土金属离子可将吸附在土壤颗粒上的金属离子交换出来, 使得盐度的增加会很大程度增强重金属的解吸^[17]; 被 Na^+ 和 K^+ 解吸出来的 Hg^{2+} 能与 Cl^- 生成高溶性稳定络合物, 如 $[\text{HgCl}_4]^{2-}$ 、 $[\text{HgCl}_3]^-$ 和 HgCl_2 ^[18], 从而使进入水体的汞很难再被沉积物吸附. 郑顺安等^[19] 也得出高浓度的 NaCl 环境极其不利于 Hg^{2+} 在土壤中的吸附. 而丁振华等^[2] 对红树林湿地研究表明盐度对汞影响不明显, 这可能与红树林湿地沉积物中有机质含量较高较大有关. 全淹状态下, 土壤相对处于厌氧环境, 厌氧环境有利于无机汞从淹没的土壤和植被中溶解出来^[20]. LIANG 等^[21] 对三峡土壤的模拟实验发现, 淹水期比非淹水期更容易引起土壤中汞的释放. 辽河口裸滩湿地受潮汐作用的影响, 当海水退潮后, 沉积物处于裸露状态, 但是裸滩沉积物保水能力较强, 沉积物仍持有大量水分, 这说明在未淹水的情况下, 裸滩沉积物中汞含量仍会受到孔隙水中盐分的影响. 底层沉积物中的汞因受盐分影响迁移进水孔隙水中, 在毛细力作用下, 孔隙水向上迁移, 导致底层沉积物中的汞迁移进入上覆水. 本实验的淹水没有受到扰动, 这与实际环境中潮汐作用存在差异, 潮汐作用会进一步导致裸滩沉积物中汞的释放, 进入水体的汞随水

体迁移,对环境造成二次污染,从而对水生生态环境和人类造成危害。

表 3 沉积物中汞和甲基汞含量随淹水盐度变化的无重复双因素方差分析结果

Table 3 Results of nonrepeitative double factor variance analysis for salinity with mercury and methylmercury of sediments

差异源 Difference source	沉积物类型 Sediments type	10 °C		20 °C		30 °C	
		F	P	F	P	F	P
THg	全淹表层	87.7	0.02	21.8	0.02	10.7	0.04
	全淹底层	4.7	0.12	10.5	0.04	264.1	0.00
	半淹表层	0.7	0.63	18.0	0.02	19.6	0.02
	半淹底层	2.0	0.3	3.9	0.15	4.6	0.12
MeHg	全淹表层	722.2	0.000	87.29	0.002	28.9	0.010
	全淹底层	1607.6	0.000	157.4	0.000	174.0	0.001
	半淹表层	121.4	0.001	450.7	0.000	15.6	0.024
	半淹底层	830.47	0.000	523.1	0.000	53.7	0.004

表 4 沉积物中汞和甲基汞含量随环境温度变化的无重复双因素方差分析结果

Table 4 Results of nonrepeitative double factor variance analysis for temperature with mercury and methylmercury of sediments

差异源 Difference source	沉积物类型 Sediments type	CK		0.50%		1.50%		1.80%	
		F	P	F	P	F	P	F	P
THg	全淹表层	59.0	0.017	49.5	0.020	7.3	0.120	25.0	0.038
	全淹底层	4.4	0.185	87.9	0.011	139.0	0.007	491.5	0.002
	半淹表层	2.4	0.294	2.8	0.260	10.6	0.086	17214.9	0.000
	半淹底层	5.8	0.146	8.2	0.108	11.8	0.078	19.4	0.049
MeHg	全淹表层	1899.7	0.001	216.3	0.005	36.0	0.027	42.2	0.023
	全淹底层	22.6	0.042	44.1	0.022	1178.1	0.001	149.8	0.007
	半淹表层	80.2	0.012	9.0	0.100	1101.2	0.001	108.2	0.009
	半淹底层	23.7	0.040	115.3	0.009	887.5	0.001	78.3	0.013

2.2 不同盐度、温度对沉积物中甲基汞的影响

淹水盐度以及环境温度的变化是导致沉积物中甲基汞含量变化的重要因素.温度变化对汞甲基化率的影响至少可达 30%^[22].培养发现(图 2),在 10 °C 时,两种淹水状态下,表层和底层沉积物中甲基汞含量均低于纯化后沉积物中甲基汞含量,随着淹水盐度升高逐渐升高,并在淹水盐度为 1.8% 时甲基汞含量最高.20 °C 时,在全淹、半淹水条件下,淹水盐度为 1.5% 甲基汞含量最高;当淹水盐度为 1.8% 时,甲基汞含量降低.30 °C 时,除在半淹水条件下,淹水盐度为 0.50% 时,表层和底层沉积物中甲基汞含量均低于 20 °C 时沉积物中甲基汞含量外,培养液盐度相同时,两种淹水状态下表层和底层沉积物中甲基汞含量均表现为 30 °C 最高,并在淹水盐度为 1.5% 时达到最大值.全淹水状态下沉积物中甲基汞含量比半淹水时高.全淹水和半淹水状态下,表层和底层沉积物中甲基汞含量随淹水盐度和环境温度变化的差异显著(表 3 和表 4);淹水盐度为 0.50% 时,半淹表层沉积物中汞含量随温度变化的差异不显著(表 4).

通常情况下,湿地土壤中微生物的甲基化作用和去甲基化作用是同时进行的^[23];适当的高温有利于甲基汞的产生,低温有利于去甲基化反应^[24].厌氧环境有利于甲基汞的产生^[25].在全淹水状态下,沉积物相对处于厌氧环境,这为沉积物中甲基化微生物提供了良好的生存环境,更有利于甲基化微生物繁殖;张翔^[26]研究表明,厌氧环境有利于无机汞从淹没的土壤中溶解出来.表层沉积物有机质含量高于底层(表 1),有机物是甲基化微生物的能量来源,微生物活性的增强有利于甲基汞的产生,Liu 等^[27]研究也表明表层土壤中更有利于甲基汞产生.而淹水盐度的升高会降低有机质对二价汞的固持量,增加甲基化微生物对汞的利用率.在本实验中,当培养温度为 10 °C 时,沉积物中可能主要发生去甲基化反应,沉积物中甲基汞被还原为 Hg^{2+} 、二氧化碳及少量甲烷^[28],导致沉积物中甲基汞含量较低;当培养温度为 20 °C 和 30 °C 时,沉积物中甲基汞含量表现出随淹水盐度先升高后降低的趋势,这可能与 $HgCl_2$ 含量有关.不带电荷的 $HgCl_2$ 更容易穿过质膜扩散到发生甲基化的细胞质中,盐度升高,会增加带电 $Hg(II)$ 物质($HgCl^-$ 或 $HgCl^{2-}$)的比例,不利于汞的甲基化^[29-30].Wu 等^[31]研究表明,盐度与甲基汞含量呈正相关

关系. BOYD 的研究表明^[32], 低盐度(0.2%—1.5%)环境中有利于汞的甲基化, 盐度升高会降低土壤中无机汞的有效性和硫酸盐还原菌的活性. 本研究结果(1.5%时甲基汞含量)与以上研究结论基本一致.

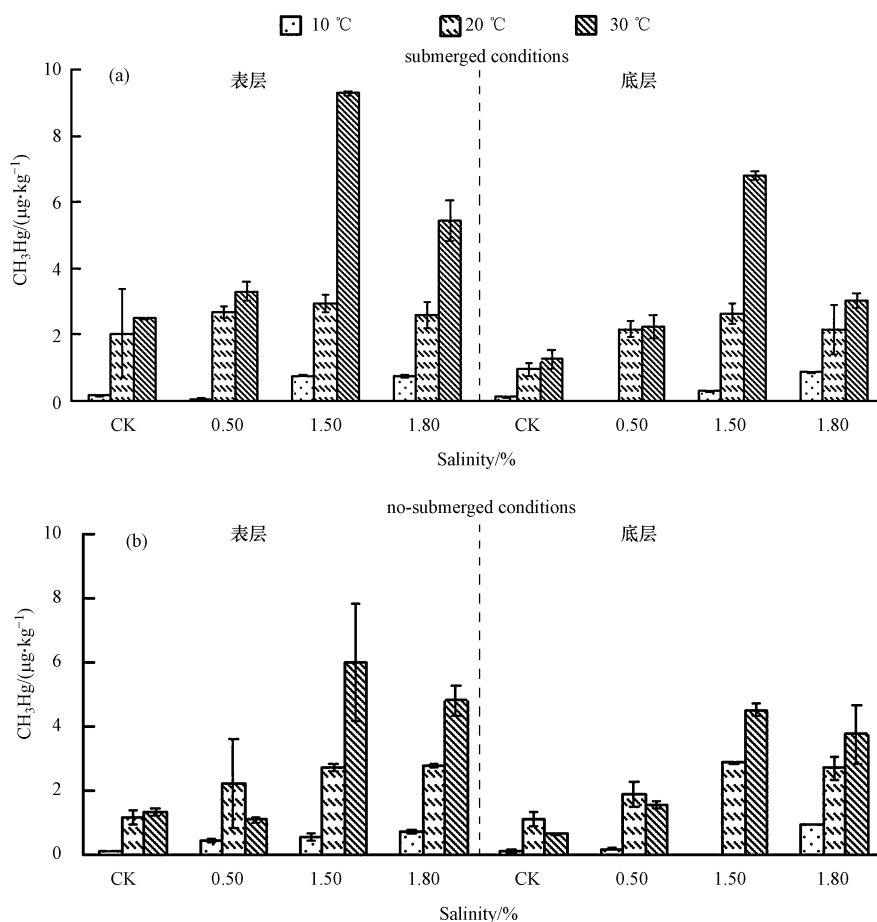


图2 全淹水(a)和半淹水(b)状态下表层和底层沉积物中甲基汞含量随盐度、温度变化关系

Fig.2 Variation of methylmercury content in top sediments and sub sediments with the different submergence salinity and temperature under submerged conditions (a) and no-submerged conditions (b)

3 结论 (Conclusion)

(1) 淹水盐度的升高会使裸滩沉积物中总汞含量降低, 适当的盐度对汞的甲基化有促进作用, 并在盐度为 1.50% 时达到最大值, 这说明辽河口裸滩沉积物中汞的甲基化受淹水盐度的影响.

(2) 环境温度的变化同样也会影响沉积物中汞和甲基汞含量, 随着温度升高, 沉积物中总汞含量降低; 当温度为 10 °C 时, 沉积物中甲基汞含量较低, 随着温度升高, 甲基汞含量也逐渐升高, 并在 30 °C 时达到最大.

(3) 淹水状态为全淹水时更有利于裸滩沉积物中汞的释放和甲基汞的生成. 淹水盐度和环境温度的改变更容易促进表层(0—10 cm)沉积物中无机汞的释放和甲基汞的产生.

参考文献 (References)

- [1] 王起超, 刘汝海, 吕宪国, 等. 湿地汞环境过程研究进展[J]. 地球科学进展, 2002, 17(6): 881-885.
WANG Q C, LIU R H, LU X G, et al. Progress of study on the mercury process in the wetland environment[J]. Advance in Earth Sciences, 2002, 17(6): 881-885 (in Chinese).
- [2] 丁振华, 刘金铃, 李柳强, 等. 中国主要红树林湿地沉积物中汞的分布特征[J]. 环境科学, 2009, 30(8): 2210-2215.
DING Z H, LIU J L, LI L Q, et al. Distribution of mercury in surficial sediments from main mangrove wetlands of China[J]. Environmental Science, 2009, 30(8): 2210-2215 (in Chinese).

- [3] 高志强, 张毅强, 李杰, 等. 珠江入海口海产品中总汞与甲基汞含量特征及食用风险[J]. 生态环境学报, 2015, 24(9): 1499-1504.
GAO Z Q, ZHANG Y Q, LI J, et al. Concentration characteristics and edible risk of total mercury and methylmercury in marine products from the Pearl River Estuary[J]. Ecology and Environmental Sciences, 2015, 24(9): 1499-1504 (in Chinese).
- [4] SMITH S R. A critical review of the bioavailability and impacts of heavy metals in municipal solid waste composts compared to sewage sludge[J]. Environment International, 2009, 35(1): 142-156.
- [5] 王沛芳, 王文娜, 王蓉, 等. 汞对水生生物的毒性效应研究进展[J]. 安全与环境学报, 2014, 14(2): 282-288.
WANG P F, WANG W N, WANG R, et al. Research progress of the toxic effect of mercury on aquatic organisms[J]. Journal of Safety and Environment, 2014, 14(2): 282-288 (in Chinese).
- [6] 江津津, 曾庆孝, 阮征, 等. 水产品中汞与甲基汞风险评估的研究进展[J]. 食品工业科技, 2007, 28(11): 244-246.
JIANG J J, ZENG Q X, RUAN Z, et al. Research progress of the risk assessment of mercury and methyl mercury in aquatic products[J]. Science and Technology of Food Industry, 2007, 28(11): 244-246 (in Chinese).
- [7] 丁振华, 刘金铃, 李柳强, 等. 中国红树林湿地沉积物中汞的形态特征、生物可利用性和迁移性[J]. 海洋环境科学, 2010, 29(5): 653-656.
DING Z H, LIU J L, LI L Q, et al. Speciation, bioaccumulation and transportation of mercury in sediments of mangrove wetlands of China[J]. Marine Environmental Science, 2010, 29(5): 653-656 (in Chinese).
- [8] 王定勇, 朱金山. 三峡库区消落带沉积物中汞的赋存形态及生物可利用性研究[J]. 西南大学学报(自然科学版), 2013, 35(11): 14-20.
WANG D Y, ZHU J S. Chemical speciation and bioavailability of mercury in the sediment of the riparian zone of Three Gorges Reservoir Area, China[J]. Journal of Southwest University (Natural Science Edition), 2013, 35(11): 14-20 (in Chinese).
- [9] 刘汝海, 刘诗璇, 王杰, 等. 秋冬季黄河三角洲湿地土壤汞和甲基汞的变化[J]. 环境科学学报, 2017, 37(1): 272-279.
LIU R H, LIU S X, WANG J, et al. Change of mercury and methylmercury in Yellow River Delta wetlands from autumn to summer[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2017, 37(1): 272-279 (in Chinese).
- [10] 陈效, 徐盈, 张甲耀, 等. 硫酸盐还原菌对汞的甲基化作用及其影响因子[J]. 水生生物学报, 2005, 29(1): 50-54.
CHEN X, XU Y, ZHANG J Y, et al. Microbial methylation of mercury and their affecting factors in aquatic environment[J]. Acta Hydrobiologica Sinica, 2005, 29(1): 50-54 (in Chinese).
- [11] 张颖, 郑西来, 伍成成, 等. 辽河口湿地芦苇叶片蒸腾及其与影响因子关系研究[J]. 湿地科学, 2011, 9(3): 227-232.
ZHANG Y, ZHENG X L, WU C C, et al. Simulation experiment about transpiration characteristics of phragmites australis leaf in Liaohe Estuary Wetlands[J]. Wetland Science, 2011, 9(3): 227-232 (in Chinese).
- [12] 肖颖, 杨继松. 辽河口滨海湿地土壤有机碳矿化及其与盐分的关系[J]. 生态学杂志, 2015, 34(10): 2792-2798.
XIAO Y, YANG J S. Soil organic carbon mineralization and its relation with salinity in coastal wetland of Liao-he estuary[J]. Chinese Journal of Ecology, 2015, 34(10): 2792-2798 (in Chinese).
- [13] 郑冬梅, 李昕馨, 罗庆. 锌冶炼不同群落生境蟋蟀汞污染[J]. 环境科学, 2012, 33(10): 3680-3684.
ZHENG D M, LI X X, LUO Q. Mercury pollution in cricket in different biotopes suffering from pollution by zinc smelting[J]. Environmental Science, 2012, 33(10): 3680-3684 (in Chinese).
- [14] ZHENG D M, ZHANG Z S, WANG Q C, et al. Total mercury and methyl mercury contents and distribution characteristics in cicada, *cryptotympana atrata* (fabricius)[J]. Bulletin of Environmental Contamination & Toxicology, 2010, 84(6): 749-753.
- [15] 单长清, 刘汝海, 单红仙. 胶州湾近岸沉积物-海水汞的释放研究[J]. 海洋湖沼通报, 2006(4): 44-51.
SHAN C Q, LIU R H, SHAN H X. The research on releasing of mercury from Jiaozhou Bay offshore sediment to seawater[J], Transactions of Oceanology and Limnology, 2006(4): 44-51 (in Chinese).
- [16] 王欣悦, 贺春风, 王定勇, 等. 三峡库区消落带土壤淹水过程中汞的释放及甲基化特征[J]. 环境化学, 2015, 34(1): 172-177.
WANG X Y, HE C F, WANG D Y, et al. Releases and methylation of soil mercury in water-level fluctuating zone of the three gorges reservoir region[J]. Environmental Chemistry, 2015, 34(1): 172-177 (in Chinese).
- [17] 赵健. 长江口滨岸潮滩汞的环境地球化学研究[D]. 上海: 华东师范大学, 2010.
ZHAO J. Environmental geochemistry of mercury in intertidal flat of the Yangtze Estuary[D]. Shanghai: East China Normal University, 2010 (in Chinese).
- [18] 王平安. 干湿交替环境土壤汞赋存形态及其动态变化[D]. 重庆: 西南大学, 2007.
WANG P A. Dynamic variation of mercury species in soil in wet-dry rotation environment[D]. Chongqing: Southwest University, 2007 (in Chinese).
- [19] 郑顺安, 李晓华, 徐志宇. 污灌区盐分累积对土壤汞吸附行为影响的模拟研究[J]. 环境科学, 2014, 35(5): 1939-1945.
ZHENG S A, LI X H, XU Z Y. Simulation study on the effect of salinity on the adsorption behavior of mercury in wastewater-irrigated area[J]. Environmental Science, 2014, 35(5): 1939-1945 (in Chinese).
- [20] 何熙. 三峡库区消落带土壤(沉积物)总汞及甲基汞变化特征[D]. 重庆: 西南大学, 2013.
HE X. Variation characteristics of total mercury and methylmercury in soil (sediment) in water-level-fluctuating zone of the Three Gorge

- Reservoir Region[J]. Chongqing: Southwest University, 2013 (in Chinese).
- [21] LIANG P, ZHANG C, YANG Y K, et al. A simulation study of mercury release fluxes from soils in wet-dry rotation environment[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2014, 26(7): 1445-1452.
- [22] KORTHALS E T, MR Winfrey. Seasonal and spatial variations inmercurymethylation and demethylation in an oligotrophic lake[J]. *Appl Environ Microbiol*, 1987, 53(10): 2397-2404.
- [23] 吴浩. 中国主要红树林湿地中甲基汞的分布规律及其微生物甲基化作用[D]. 厦门: 厦门大学, 2009.
WU H. Distribution of methylmercury and microbial methylation in main mangrove wetlands of China[J]. Xiamen: Xiamen University, 2009 (in Chinese).
- [24] 贺春风. 三峡库区消落带土壤淹水过程汞释放与甲基化特征的模拟研究[D]. 重庆: 西南大学, 2013.
HE C F. Mesocosm of mercury release and methylation characteristic in the soil during the flooding in water level fluctuating zone of three gorges reservoir region[J]. Chongqing: Southwest University, 2015 (in Chinese).
- [25] MANIN-DOIMEADIOS RCR, TESSIER E, AMOUROUX D, et al. Mercury methylation/demethylation and volatilization pathways in estuarine sediment slurries using species-specific enriched stable isotopes [J]. *Marine Chemistry*, 2017, 90(1): 107-123.
- [26] 张翔. 三峡库区消落带典型植物淹水后汞的动态变化及其释放特征[D]. 重庆: 西南大学, 2015.
ZHANG X. Mercurydynamic and release characteristics of several plants collected from the water-Level fluctuation zone of the Three Gorges Reservoir Area during flooding[J]. Chongqing: Southwest University, 2015 (in Chinese).
- [27] LIU J L, FENG X B, QIU G L, et al. Intercomparison and applicability of some dynamic and equilibrium approaches to determine methylated mercury species in pope water[J]. *Environmental Toxicology & Chemistry*, 2011, 30(8): 1739-1744.
- [28] 谷春豪, 许怀凤, 仇广乐. 汞的微生物甲基化与去甲基化机理研究进展[J]. *环境化学*, 2013, 32(6): 926-936.
GU C H, XU H F, QIU G L. The progress in research on mechanism of microbial mercury methylation and de-methylation [J]. *Environmental Chemistry*, 2013, 32(6): 926-936 (in Chinese).
- [29] BIENVENUE E, BOUDOU A, DESMAZES J P, et al. Transport of mercury compounds across bimolecular lipid membranes; Effect of lipid composition, pH and chloride concentration[J]. *Chemico-Biological Interactions*, 1984, 48(1): 91-101.
- [30] BARKAY T, GILLMAN M, TURNER R R. Effects of dissolved organic carbon and salinity on bioavailability of mercury[J]. *Applied & Environmental Microbiology*, 1997, 63(11): 4267-4271.
- [31] WU H, DING Z H, LIU Y, et al. Methylmercury and sulfate-reducing bacteria in mangrove sediments from Jiulong River Estuary, China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2011, 23(1):14-21.
- [32] BOYD E S, YU R Q, TBARKAY T, et al. Effect of salinity on mercury methylating benthic microbes and their activities in Great Salt Lake, Utah[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 581:495-506.