DOI: 10.5846/stxb201801100078
杨光,孙涛,安思危,郭攀,马明.中亚热带常绿阔叶林凋落物分解过程中汞的动态变化及迁移机理.生态学报,2019,39(6): - .
Yang G, Sun T, An S W, Guo P, Ma M.The migration and fate of mercury during litter decomposition in a subtropical evergreen broad-leaf forest.Acta Ecologica Sinica,2019,39(6): - .

中亚热带常绿阔叶林凋落物分解过程中汞的动态变化及迁移机理

杨　光[1],孙　涛[1],安思危[1],郭　攀[1],马　明[1,2,3,*]
1 西南大学资源环境学院,重庆　400715
2 重庆市三峡库区农业面源污染控制工程技术研究中心,重庆　400716
3 重庆市农业资源与环境研究重点实验室,重庆　400716

摘要:森林凋落物对于汞在林地土壤的生物地球化学循环中起到重要作用,为研究森林凋落物分解过程中汞的迁移转化特征,以重庆四面山风景名胜区典型林分(常绿阔叶林)作为研究对象。于 2014 年 3 月—2015 年 3 月连续监测典型林分凋落物中各形态汞浓度和有机质变化量,同时监测周围土壤中汞浓度变化。结果表明:四面山典型林分凋落物分解过程中汞浓度整体上升,总汞浓度(初始浓度:78 ng/g)的增幅最高达 53%,甲基汞浓度(初始浓度:0.32 ng/g)最高增幅达 138%;在春季和夏季,水溶态和酸溶态两种活性态汞含量分别增加了 851%和 96%,在分解前期和末期,凋落物汞的中惰性汞比例最高,占比达 75%。土壤腐殖质层中总汞和甲基汞浓度比较稳定。凋落物中活性态汞通过雨水淋洗进入土壤与有机质络合并发生甲基化/去甲基化过程,通过地表径流、地下径流进入水体。凋落物中 C 含量减少了 22%,N 含量增加了 15%,总汞浓度与 C/N 比呈负相关,与 N 含量呈正相关。凋落物中微生物 C、N 含量整体增加,与汞浓度峰值同步,且夏季含量显著高于冬季含量($P<0.05$),说明微生物与凋落物固定汞和汞的甲基化过程密切相关。

关键词:凋落物;总汞;甲基汞;微生物质量

The migration and fate of mercury during litter decomposition in a subtropical evergreen broad-leaf forest

YANG Guang[1], SUN Tao[1], AN Siwei[1], GUO Pan[1], MA Ming[1,2,3,*]
1 *College of Resource and Environment, Southwest University, Chongqing* 400715, *China*
2 *Chongqing Engineering Research Center for Agricultural Non-point Source Pollution Control in the Three Gorges Reservoir Area, Chongqing* 400716, *China*
3 *Chongqing Key Laboratory of Agricultural Resources and Environment, Chongqing* 400716, *China*

Abstract: Forest ecosystem is the largest terrestrial ecosystem and plays a critical role in the biogeochemical cycling of mercury (Hg). Litterfall is confirmed to be a dominant pathway for Hg to reach the ground surface under a forest canopy. The objective of this research was to understand the characteristics of Hg migration and transformation in the litterfall and underlying soil during litter decomposition in a subtropical evergreen broad-leaf forest. Therefore, the dynamics of Hg concentrations and speciation distribution in the decomposing litterfall and underlying soils of Simian Mountain Nature Reserve were investigated for 1 year, from March 2014 to March 2015. The results indicated that initial total Hg (THg) concentration in the litterfall was 78.40 ± 1.4 (standard error, SE) ng/g, which increased with the decomposition of litterfall. THg content increased up to 101.80±7.6 ng/g after decomposition for 1 year, while THg concentration increased

基金项目:国家重点基础研究发展规划(973)项目(2013CB430004);国家自然科学基金项目(41573105,41603098)
收稿日期:2018-01-10;　　**网络出版日期**:2018-00-00
* 通讯作者 Corresponding author.E-mail: maming8312@163.com

by 30%. THg concentration reached its maximum (120.45 ng/g) after decomposing for 90 days. Compared with THg, the increase of methylmercury (MeHg) in the decomposing litter was more remarkable ($P<0.01$). MeHg concentration was 2.38 times that of its initial value (0.32 ng/g) at the end of the decomposition, and its content peaked (0.86 ng/g) after decomposing for 210 days. Generally speaking, the concentrations of both THg and MeHg increased with the decomposition of litterfall. The proportion of inert Hg in the decomposing litterfall was highest at the initial and advanced stages of decomposition, accounting for 75%. Moreover, Hg in the litter was relatively stable at these stages. Therefore, the mobility of Hg was slow, and thus its ecological risk were low. Both the soluble and acid soluble Hg contents increased significantly in the sfpring and summer. At this time, THg and MeHg in the decaying litterfall were inclined to be transported to the downstream water with a large amount of rainwater, thereby causing high ecological risk. On the contrary, the concentrations of THg and MeHg in the organic layer of the underlying soil were quite stable. A comparison of the THg concentrations in the litter and underlying soil revealed that Hg in the soil could enter the litter, so the soil could act as the source of Hg during litterfall decomposition. Results of MeHg content showed that MeHg in the litter could be exported to the underlying soil, and was finally stored in the soil and gradually demethylated. The volatilization of Hg could be one of the reasons why its concentration in the soil was stable. The decomposing litter was also an important source of THg and MeHg to the surface water because it could be transported by the runoff and percolate. The content of organic C in the litterfall decreased by 22%, while the organic N content increased by 15% during decomposition. THg concentration was negatively correlated with the C/N ratio but positively correlated with the N content. The increase of THg concentration was presumed to be closely related with the nitrogen fixation microorganisms. Microbial carbon and nitrogen in the litter increased and were significantly higher in summer than that in winter ($P<0.05$). The microorganisms activated in the decomposing litterfalls could immobilize more nutrients as decomposition rates and microbial activities peaked in the summer, and thus contributed to microbial biomass of the soil. Consequently, the concentration of THg increased during this process, especially MeHg, which increased exponentially.

Key Words: litter; total mercury; methylmercury; microbial biomass

汞是一种剧毒的重金属[1],它可以进入大气进行远距离迁移,并通过大气干湿沉降使清洁地区也受到汞污染[2-5],是一种全球性污染物。森林生态系统常被认为是汞的活性库,汞在森林生态系统中的环境行为是汞全球循环的重要组成部分[6]。来自大气的汞通过干沉降和湿沉降进入森林[7],大部分积累在了林冠层,而不是被根系吸收,所以林冠层成了大气汞的主要受体[8-9]。由于林冠层对汞的截留作用以及植物叶片通过气孔对汞的吸收[10],植物组织中叶片固定的汞最多,因为表面积大的植物组织吸收大气沉降的汞能力强[11-13]。国内外有关凋落物汞输入通量的计算发现,凋落物汞输入远大于汞湿沉降,约占森林总汞输入的 50%[14-17],成为森林对土壤及周围环境的最主要输入方式。多数生态系统中植物所吸收的养分,90%以上的 N、P 和 60%以上的矿质元素都来自于植被枯落残体归还给土壤的养分再循环[18-20]。所以说凋落物分解过程中的养分状况,尤其是碳、氮的变化,在一定程度上反映了土壤的养分供应状况以及植物的养分利用状况。除此之外,总汞在凋落物中的累积与参与固氮作用的真菌密切相关[21],凋落物中微生物是系统物质循环的分解者和营养物质的调节者,虽然微生物量只占有机质库的很小部分,却是控制生态系统中 C、N 和其他养分流的关键,它反应微生物的活性,而凋落物中甲基汞的产生主要通过微生物厌氧过程实现。鉴于此,本文以中亚热带森林典型林分常绿阔叶林为研究对象,通过连续监测,分析凋落物分解过程中总汞及甲基汞浓度变化。探讨环境影响因素与凋落物分解过程中汞迁移转化的联系。阐明凋落物分解过程中汞的迁移转化规律,从而为进一步认识森林生态系统中汞的生物地球化学循环提供科学依据。

1　材料与方法

1.1　研究区概况

本实验地点选择在重庆市江津区四面山国家级自然保护区(106°17′—106°30′E,28°16′—28°31′N),离重庆市主城区约 200 km,森林植被保存良好,森林覆盖率达 95.41%。无明显汞排放点源。植被具有典型的亚热带常绿阔叶林特征,主要以柳杉(*Cryptomeria fortunei*)、马尾松(*Pinus massoniana*)、四川大头茶(*Gordonia acuminata*)、栲树(*Castanopsis fargesii*)、石栎(*Lithocarpus glaber*)、杉木(*Cunninghamia lanceolata*)、楠竹(*Phyllostachys pubescens*)等为主要建群树种,是全球同纬度最大保存最为完整的亚热带常绿原始阔叶林带。四面山山势南高北低,以低山为主。该地区属中亚热带季风湿润气候,降雨量充沛,气候温和,无霜期 300 天以上,年平均气温 13.7℃,多年平均降雨量 1522.3 mm,降雨集中在 6—10 月。大气汞浓度为 2.13—3.68 ng/m^3,降雨中平均总汞浓度为 36.93 ng/L,平均甲基汞浓度为 0.44 ng/L。雨水中总汞的浓度高于美国大部分地区(<10 ng/L),与贵阳乌江流域所测得的值相当(36 ng/L),低于中国其他一些城市如北京(224 ng/L)和长春(354 ng/L)。而甲基汞的含量是美国卡罗莱纳州(0.06 ng/L)的 7 倍左右,美国部分地区的 2 倍以上。

1.2　实验设计

1.2.1　样品采集

用酸清洗收集凋落物的分解袋,在无雨时于 2015 年 3 月在四面山林地内收集常绿阔叶林新鲜凋落物约 10 g,以确保雨水没有从落下的凋落物中滤去汞。装入 18 目尼龙分解袋中(10×15 cm),共收集 72 袋,在林分中设置 3 个 1 m×1 m 的观察区,每个观察区内放置 24 个凋落物收集袋。每个凋落物袋都钉住在土壤上,并做标记。在使用前,保证凋落物袋上不要覆盖其他新鲜的凋落物。在布设完成后,每个观察小区上立即取走 2 个凋落物袋,用于分析凋落物初始的总汞、甲基汞、形态汞、碳、微生物碳、氮、微生物氮含量,并同时取 O_i层(腐殖质层)土壤,分析土壤初始总汞和甲基汞含量。在后续的采样阶段,每次从 3 个观察区中收取 2 个凋落物袋以及 O_i层土壤,采样时间为 2015 年 3 月到 2016 年 3 月,每月采集一次。样品采集后迅速冷冻干燥待测。

1.2.2　样品分析方法

凋落物中有机碳氮的测定采取重铬酸钾外加热法和半微量凯氏定氮法。微生物碳氮测定采用氯仿熏蒸法。使用冷原子荧光光谱法测定凋落物中的总汞和甲基汞。土壤预处理后,甲基汞采用 GC-CVAFS 法经过样品消解,甲基汞的预富集,甲基汞的热解析三步来测定。汞的赋存形态采用改进的逐步选择萃取法分离,冷原子荧光法(CVAFS)测定,土壤中的总汞利用 Milestone 公司 DMA-80 测汞仪直接测定。

1.2.3　质量控制与数据分析

采用空白试验,平行样品控制及标准物质测定加标回收率进行质量控制。土壤与凋落物中总汞和甲基汞的检测限为 0.02 ng/g 和 0.01 ng/g,空白值低于检测限。测量精确度用标准偏差衡量,THg 和 MeHg 的标准偏分别为 6%和 6.4%,THg 的加标回收率为 94%—111%,MeHg 为 91%—114%。用单因素方差分析比较微生物 C、N 在不同季节的差异。试验中所需的玻璃仪器在使用前均用硝酸(25%,体积分数)浸泡 24 h,用无汞超纯水(Milli-Q)清洗,然后经马弗炉 500℃灼烧 30 min,在洁净无汞的环境下冷却后使用。样品处理所用化学试剂均为优级纯,水为无汞超纯水(Milli-Q)。采用 SPSS 13.0 与 Origin 2017 软件对数据进行处理和分析。

2　结果与分析

2.1　凋落物分解过程中 THg 与 MeHg

凋落物分解过程中,凋落物的质量损失、凋落物中的总汞、甲基汞、碳、氮的含量变化如图 1 所示。随着凋落物的腐解,凋落物质量逐渐减少,1 年后降为原来的 67.85%。C 含量在 1 年后减少了约 21%,N 含量在腐解一年后增加了约 15%。凋落物中初始总汞浓度为 78.40 ng/g,在分解过程中总汞浓度整体增加,在分解 90—120 d 后林地凋落物中的总汞含量达到最大,为 120.45 ng/g,分解一年后达到 101.80 ng/g,最终增加了 30%。

结果表明汞会被凋落物吸持,活性较低,外源性输入汞易在凋落物中逐渐积累。在研究区域,凋落物层的汞来源有大气干湿沉降,新鲜凋落物以及土壤输入。森林土壤层的淋溶对土壤 Hg 有很大的解吸作用[22-23],这是因为土壤中含有大量 DOM,特别是腐殖酸含有大量的功能基团,可与土壤中的汞通过络合、螯合作用,形成有机汞配合物,提高汞挥发活性以及植物迁移活性[24],淋溶作用在温暖湿润的夏季尤为明显,淋溶的 Hg 被凋落物固定从而造成了汞在凋落物中的累积。相较于总汞,甲基汞的积累更为明显($P<0.01$),初始甲基汞浓度为 0.32 ng/g,在分解约 180 d 后达到最大值,为 0.86 ng/g,分解 1 年后达到 0.85 ng/g,是原始浓度的 2.38 倍。甲基汞在春、夏两季的增加最为明显,因为此时环境温暖潮湿,适合微生物进行甲基化反应。

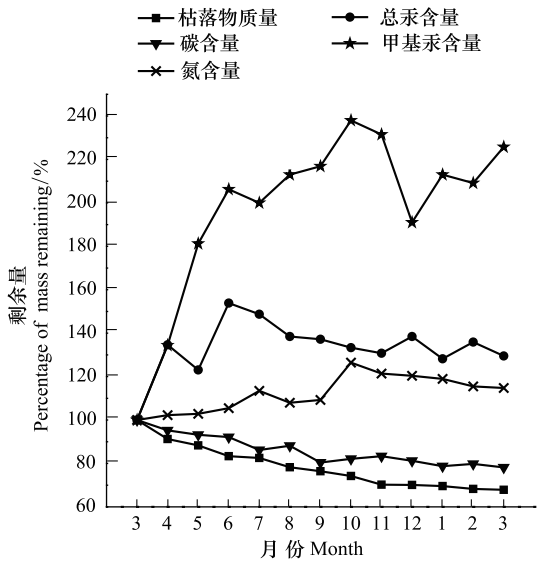

图 1 凋落物分解过程中碳、氮、总汞、甲基汞和凋落物剩余量

Fig.1 The amount of C, N, THg and MeHg in the decomposing litterfall

2.2 凋落物分解过程中形态汞的变化

凋落物分解过程中,形态汞变化特征如图 2 所示,其中 Hg-w 是水溶态汞,Hg-h 是盐酸溶解态汞,Hg-o 是与有机结合态汞,Hg-e 是强络合态汞,Hg-S 是硫化物结合态汞。Hg-h 和 Hg-w 是生物活性较高的汞形态,容易在环境中发生迁移和转化,它们与 MeHg 的生成密切相关,对甲基化微生物的生物可利用度高[25]。Hg-o 具有中等的迁移性。Hg-s 和 Hg-e 迁移性较弱。从图 2 得出在凋落物在分解过程中,Hg-e 的所占的比例逐渐上升,Hg-e 从开始时的 1.32% 上升到了 2.32%。分解 90 d 后,Hg-w 和 Hg-h 两种活性态汞含量达到峰值,从开始分解时的 6.38% 和 15.88% 分别升高到 16.58% 和 31.62%,之后两种活性态汞含量开始下降。Hg-h 比其他 4 种形态汞的变化更加明显,原因是凋落物分解过程中的腐殖质酸的存在有利于 $HgSO_4$ 的形成与转化,而 $HgSO_4$ 是 Hg-h 主要的组成部分。凋落物经过 120—150 d 的分解后,Hg-w 和 Hg-h 含量都有显著的增加,夏季活性汞升高的原因是 1)凋落物中的汞在与土壤中的腐殖质接触过程中通过氧化还原作用转变为 Hg-h 和 Hg-w 以及 Hg-o;2)此时降雨充沛,雨水带来一定量的 Hg-h;3)在温暖潮湿的春、夏季微生物最为活跃,凋落物中的汞被微生物不断转化为生物可利用的活性汞。夏季,四面山降雨量大,研究区域形成地表径流。凋落物与其中的汞容易通过径流向下游水体转移,这时凋落物中汞的生态风险较高。研究还发现,在分解前期和末期,凋落物中惰性汞比例最高,占比达 75%,其它活性态汞相对较少,原因是 1)分解初期凋落物中的汞还没有通过理化作用或微生物作用转化为活性态汞;2)分解末期凋落物中的活性汞被微生物甲基化,转变为甲基汞;3)森林中地表径流带走了一部分的 Hg-h。这时凋落物中的

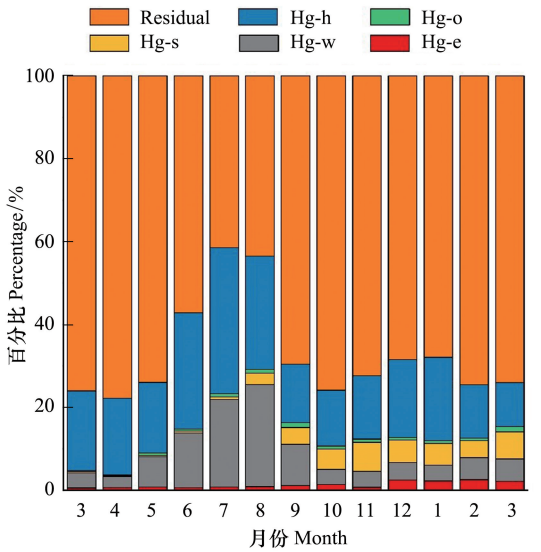

图 2 汞的形态变化特征

Fig.2 Morphological change characteristics of mercury

Residual: 残留态汞, Residual mercury; Hg-h: 盐酸溶解态汞, hydrochloric acid, soluble mercury; Hg-o, 有机结合态汞, organic combined mercury; Hg-s: Sulfide bound mercury, 硫化物结合态汞; Hg-w: Water soluble mercury, 水溶态汞; Hg-e: strongly complexed mercury

汞比较稳定,汞的迁移性以及它的生态风险度也较低。

2.3　土壤与凋落物中汞的浓度与迁移

经过为期一年的分解,凋落物中总汞浓度增加到了 101.80 ng/g,但它还是远低于林地中的总汞浓度(195.50 ng/g),通过对图 3a 的分析发现凋落物中总汞变化量要大于土壤中总汞浓度的变化量,变异系数分别为 9%和 5%。分析图 3b 得到凋落物中甲基汞经过 1 年的积累达到了 0.85 ng/g,高于土壤的 0.39 ng/g,土壤中甲基汞的浓度变化并不明显(P>0.05)。总的来说,土壤腐殖质层汞浓度比较稳定。在凋落物分解过程中,土壤汞会顺浓度梯度进入凋落物,此外,凋落物中发生的甲基化作用也会利用到土壤中的活性汞,在这一过程中土壤表现为汞的源。相较于土壤,凋落物中甲基汞变化更为显著(P<0.01)。凋落物甲基汞在腐解过程中通过雨水淋洗顺浓度梯度进入土壤,表现为森林土壤甲基汞输入源。土壤接收到大气沉降、凋落物的汞与甲基汞输入最终保持稳定,相关研究表明土壤挥发是土壤保持汞浓相对稳定一种可能的机制[26-27],土壤接受的甲基汞可在土壤被还原性有机物还原或微生物去甲基化成单质汞,从土壤中挥发,再次被叶片吸收固定或进入大气。凋落物中迁移的主要是活性态汞,其中的惰性汞因为存在于木质素等不易分解的组分中或是由于强络合作用与有机质结合而不易迁移与转化。凋落物中水溶态汞易溶于降水,通过地表径流迁移。一部分活性态汞进入土壤,迁移路径包括 1)与土壤腐殖质结合;2)在厌氧条件下被土壤微生物甲基化,3)进入土壤孔隙水,形成地下潜流迁移,4)被还原性有机质或微生物还原形成汞单质[28]再挥发。

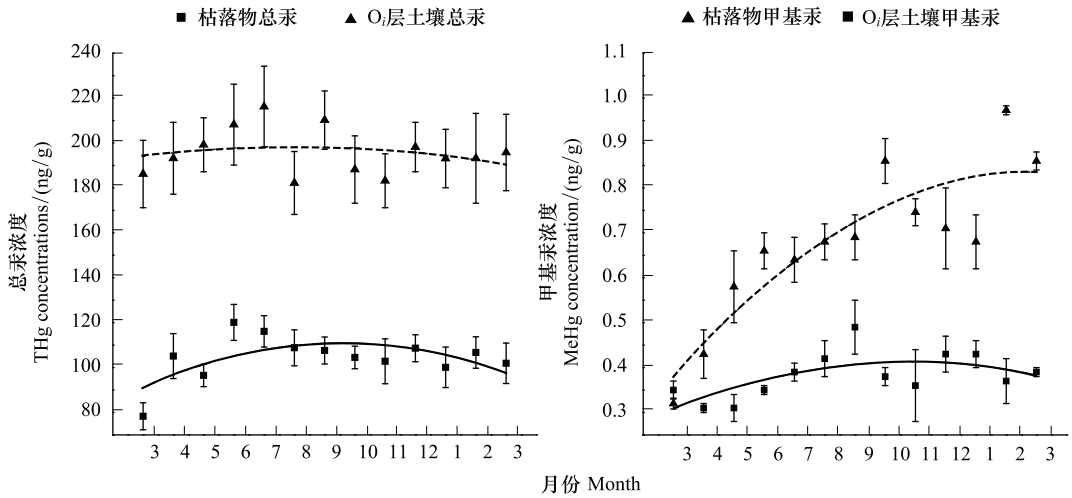

图 3　凋落物与土壤 O_i 层中总汞与甲基汞的比较

Fig.3　Comparison of THg and MeHg concentrations between O_i layer of the soil and the litter

2.4　凋落物中汞与碳、氮的关系

以往的研究发现有机质的含量与汞的生物累积,微生物固定,甲基化以及其在凋落物中的迁移转化有重要的联系[29-31]。C/N 是衡量有机质分解的重要指标,C/N 越低代表分解程度越高。通过图 4 得出凋落物中总汞含量与 C/N 比成负相关,说明随着分解的进行,汞是积累的,而 THg 与 N 含量成正相关。在凋落物分解过程中存在固氮过程。固氮作用发生的同时,也发生了还原性硫基团(如巯基)的累积,该类基团可与 Hg(Ⅱ)通过强络合结合,且不易被还原,由此发生了汞的积累。凋落物在积累过程中会不断覆盖从而形成厌氧环境,此时易发生甲基化作用,造成甲基汞在腐解过程的产生。固氮作用离不开微生物,在固氮作用中真菌担任了重要角色,有研究发现在凋落物分解过程中真菌增加[32]因此,凋落物在分解过程中总汞和甲基汞的累积也要考虑微生物过程。此外,凋落物中 C 含量的降低说明凋落物中的有机质在腐解过程中不断消耗,而与有机质结合的汞将通过前文所述的途径进入土壤与大气,所以观测到凋落物腐解过程中总汞的积累是汞迁移转化过程后的净值。

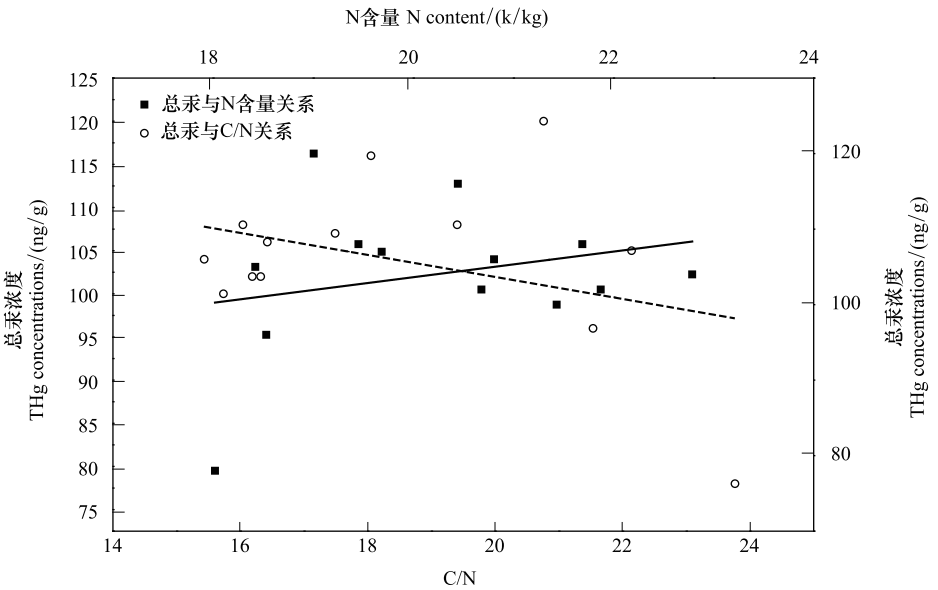

图 4 汞浓度与有机质的关系

Fig.4 Relationship of THg concentrations with organic matter

2.5 凋落物中微生物碳氮

为研究微生物与凋落物汞的关系,进行了微生物 C、N 的测量。从图 5 得到,在常绿阔叶林凋落物分解开始后,微生物 C 含量从初始的 185.4 μg/g 最高增加到 896.8 μg/g,变异系数为 38%,最大值出现在分解 120 天后,在夏季微生物 C 最高,从秋季开始减少,冬季降到最低。微生物 C 占总 C 的比例范围是 0.04%—0.25%,最高占比出现在分解 180 d 后。凋落物中的微生物 N 从初始的 32.4 μg/g 最高增加到 96.8 μg/g,变异系数为 23%,最大值出现在分解 150 d 后,夏季微生物 N 最高,从秋季开始减少,冬季最低。与微生物 C 的增加规律相似,微生物 N 占总 N 的比例范围是 0.18%—0.5%,最高占比出现在分解 150 d 后。总体上,微生物 C、N 含量在凋落物分解过程中升高。另外,通过单因素方差分析发现,微生物 C 在夏季和冬季的含量有极显著差异($P<0.01$),微生物 N 在夏季和冬季的含量有显著差异($P<0.05$),这与在印度进行的有关微生物量的相关研究[33-35]结果相似。夏季微生物量最大。原因是夏季温度、湿度等环境因素达到最适合微生物生存的条件,伴随着大量的降雨,造成更多土壤有机质的淋溶,使微生物更易获得可溶态汞及营养元素,此时微生物量与有机

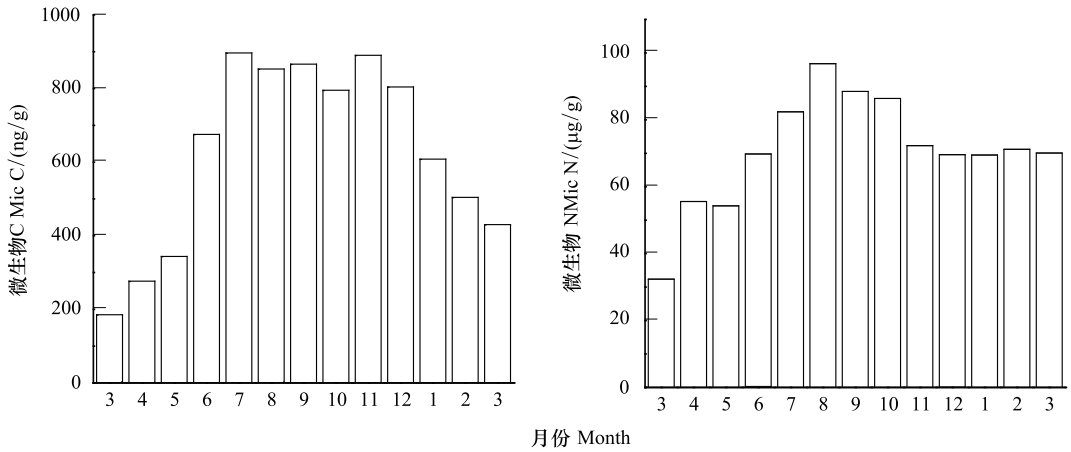

图 5 凋落物中微生物 C,N 变化

Fig.5 Changes of microbial C and N in the decomposing litterfall

质含量最大,微生物的活性也最高,微生物与有机质固定汞的能力最强。由于凋落物的堆积,造成了厌氧环境,在微生物活跃的情况下,甲基化作用最明显。所以凋落物中总汞与甲基汞也在此时达到峰值。

3　结论

(1)在四面山常绿阔叶林凋落物分解过程中,凋落物质量下降为原来的 67.85%,C 含量减少了约 21%,N 含量增加了约 15%,凋落物总汞浓度增加了 30%,最高达 101.80 ng/g,甲基汞浓度达到原始浓度的 2.38 倍,最高达 0.86 ng/g。总汞与甲基汞的最大值均出现在夏季。相较于凋落物,土壤中汞浓度变化幅度小,相对稳定。

(2)凋落物中的汞迁移路径包括(a)与土壤腐殖质结合;(b)在厌氧条件下被土壤微生物甲基化,(c)进入土壤孔隙水,形成地下潜流迁移,(d)被还原形成汞蒸气再挥发。

(3)在分解中期,尤其是夏季,Hg-w 和 Hg-h 两种形态汞含量高,这时凋落物中汞活性较高,凋落物对于临近流域有较高的生态风险。在分解前期和末期,凋落物汞的中惰性汞比例最高(75%),这时凋落物中其他活性态的汞比例低,这时形成的配合物通常较为稳定,汞的迁移性以及它的毒性和生态风险度不高。

(4)分解过程中凋落物中的汞浓度与 C/N 比成负相关,N 含量在分解过程逐渐增加,C 含量降低汞的积累与固氮作用有一定联系,而固氮作用的发生与微生物作用密切相关。微生物 C 和微生物 N 随着腐解的进行呈现增加的趋势,与汞浓度峰值同步,微生物碳、氮最大值出现在夏季,最低值出现在冬季。微生物 C,N 夏季明显高于冬季。

参考文献(References):

[1] Rice K M, Walker Jr E M, Wu M Z, Gillette C, Blough E R. Environmental mercury and its toxic effects. Journal of Preventive Medicine & Public Health, 2014, 47(2): 74-83.

[2] Feng X B, Jiang H M, Qiu G L, Yan H Y, Li G H, Li Z G. Mercury mass balance study in Wujiangdu and Dongfeng Reservoirs, Guizhou, China. Environmental Pollution, 2009, 157(10): 2594-2603.

[3] Feng X B, Jiang H M, Qiu G L, Yan H Y, Li G H, Li Z G. Geochemical processes of mercury in Wujiangdu and Dongfeng reservoirs, Guizhou, China. Environmental Pollution, 2009, 157(11): 2970-2984.

[4] 王少锋, 冯新斌, 仇广乐, 李仲根, 魏中青. 大气汞的自然来源研究进展. 地球与环境, 2006, 34(2): 1-11.

[5] 刘伟明, 马明, 王定勇, 孙涛, 魏世强. 中亚热带背景区重庆四面山大气气态总汞含量变化特征. 环境科学, 2016, 37(5): 1639-1645.

[6] 冯新斌, 王训, 林哲仁, 付学吾. 亚热带与温带森林小流域生态系统汞的生物地球化学循环及其同位素分馏. 环境化学, 2015, 34(2): 203-211.

[7] Rea A W, Lindberg S E, Keeler G J. Dry deposition and foliar leaching of mercury and selected trace elements in deciduous forest throughfall. Atmospheric Environment, 2001, 35(20): 3453-3462.

[8] Stamenkovic J, Gustin M S. Nonstomatal versus stomatal uptake of atmospheric mercury. Environmental Science & Technology, 2009, 43(5): 1367-1372.

[9] St Louis V L, Rudd J W M, Kelly C A, Hall B D, Rolfhus K R, Scott K J, Lindberg S E, Dong W J. Importance of the forest canopy to fluxes of methyl mercury and total mercury to boreal ecosystems. Environmental Science & Technology, 2001, 35(15): 3089-3098.

[10] Fu X W, Feng X, Dong Z Q, Yin R S, Wang J X, Yang Z R, Zhang H. Atmospheric gaseous elemental mercury (GEM) concentrations and mercury depositions at a high-altitude mountain peak in south China. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, 10(5): 2425-2437.

[11] Obrist D, Johnson D W, Lindberg S E, Luo Y, Hararuk O, Bracho R, Battles J J, Dail D B, Edmonds R L, Monson R K, Ollinger S V, Pallardy S G, Pregitzer K S, Todd D E. Mercury distribution across 14 U.S. Forests. Part I: spatial patterns of concentrations in biomass, litter, and soils. Environmental Science & Technology, 2011, 45(9): 3974-81.

[12] Frescholtz T E, Gustin M S, Schorran D E, Fernandez G C J. Assessing the source of mercury in foliar tissue of quaking aspen. Environmental Toxicology and Chemistry, 2003, 22(9): 2114-2119.

[13] Millhollen A G, Gustin M S, Obrist D. Foliar mercury accumulation and exchange for three tree species. Environmental Science & Technology, 2006, 40(19): 6001-6006.

[14] Ma M, Wang D Y, Du H X, Sun T, Zhao Z, Wang Y M, Wei S Q. Mercury dynamics and mass balance in a subtropical forest, southwestern

China. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, 15(24): 35857-35880.

[15] Wang X, Bao Z D, Lin C J, Yuan W, Feng X B. Assessment of Global Mercury Deposition through Litterfall. Environmental Science & Technology, 2016, 50(16): 8548-8557.

[16] Jiskra M, Wiederhold J G, Skyllberg U, Kronberg R M, Hajdas I, Kretzschmar R. Mercury deposition and re-emission pathways in boreal forest soils investigated with Hg isotope signatures. Environmental Science & Technology, 2015, 49(12): 7188-7196.

[17] Graydon J A, St Louis V L, Hintelmann H, Lindberg S E, Sandilands K A, Rudd J W M, Kelly C A, Hall B D, Mowat L D. Long-term wet and dry deposition of total and methyl mercury in the remote boreal ecoregion of Canada. Environmental Science & Technology, 2008, 42(22): 8345-8351.

[18] 万猛, 田大伦, 樊巍. 豫东平原杨-农复合系统凋落物的数量、组成及其动态. 生态学报, 2009, 29(5): 2507-2513.

[19] 李学斌, 陈林, 吴秀玲, 宋乃平, 李昕. 荒漠草原4种典型植物群落枯落物分解速率及影响因素. 生态学报, 2015, 35(12): 4105-4114.

[20] 李强, 周道玮, 陈笑莹. 地上枯落物的累积、分解及其在陆地生态系统中的作用. 生态学报, 2014, 34(14): 3807-3819.

[21] Hall B D, St Louis V L. Methylmercury and Total mercury in plant litter decomposing in upland forests and flooded landscapes. Environmental Science & Technology, 2004, 38(19): 5010-5021.

[22] Timperley M H, Hill L F. Discharge of mercury from the Wairakei geothermal power station to the Waikato River, New Zealand. New Zealand Journal of Marine and Freshwater Research, 1997, 31(3): 327-336.

[23] Lombardi G, Lanzirotti A, Qualls C, Socola F, Ali A M, Appenzeller O. Five hundred years of mercury exposure and adaptation. Journal of Biomedicine and Biotechnology, 2012, 2012: 472858.

[24] 王定勇, 牟树森. 酸沉降地区大气汞对土壤-植物系统汞累积影响的调查研究. 生态学报, 1999, 19(1): 140-144.

[25] 张成, 宋丽, 王定勇, 张金洋, 孙荣国. 干湿交替条件下三峡水库消落带土壤汞形态变化. 应用生态学报, 2013, 24(12): 3531-3536.

[26] Carpi A, Lindberg S E. Application of a teflon™ dynamic flux chamber for quantifying soil mercury flux: tests and results over background soil. Atmospheric Environment, 1998, 32(5): 873-882.

[27] Grigal D F, Kolka R K, Fleck J A, Nater E A. Mercury budget of an upland-peatland watershed. Biogeochemistry, 2000, 50(1): 95-109.

[28] Zheng W, Liang L Y, Gu B H. Mercury reduction and oxidation by reduced natural organic matter in anoxic environments. Environmental Science & Technology, 2016, 46(1): 292-299.

[29] Demers J D, Driscoll C T, Fahey T J, Yavitt J B. Mercury cycling in litter and soil in different forest types in the Adirondack region, New York, USA. Ecological Applications, 2007, 17(5): 1341-1351.

[30] 王锐萍, 刘强, 彭少麟, 林开豪, 文艳, 薛宁. 尖峰岭不同树种枯落物分解过程中微生物动态. 浙江林学院学报, 2006, 23(3): 255-258.

[31] Zhou J, Wang Z W, Zhang X S, Chen J. Distribution and elevated soil pools of mercury in an acidic subtropical forest of southwestern China. Environmental Pollution, 2015, 202: 187-195.

[32] Laskowski R, Niklinska M, Maryanski M. The dynamics of chemical elements in forest litter. Ecology, 1995, 76(5): 1393-1406.

[33] Patel K, Nirmal K J I, N Kumar R, Kumar B R. Seasonal and temporal variation in soil microbial biomass C, N and P in different types land uses of dry deciduous forest ecosystem of Udaipur, Rajasthan, western India. Applied Ecology and Environmental Research, 2010, 8(4): 377-390.

[34] Devi N B, Yadava P S. Seasonal dynamics in soil microbial biomass C, N and P in a mixed-oak forest ecosystem of Manipur, North-east India. Applied Soil Ecology, 2006, 31(3): 220-227.

[35] Singh M K, Ghoshal N. Variation in soil microbial biomass in the dry tropics: impact of land-use change. Soil Research, 2014, 52(3): 299-306.