

DOI:10.7524/AJE.1673-5897.20231022001

胡颢克, 梁煌, 宋星竹, 等. 临安区西径山不同森林中的汞迁移及沉降[J]. 生态毒理学报, 2024, 19(2): 218-231

Hu X K, Liang H, Song X Z, et al. Mercury migration and deposition in different forests in Xijingshan, Lin'an [J]. Asian Journal of Ecotoxicology, 2024, 19(2): 218-231 (in Chinese)

临安区西径山不同森林中的汞迁移及沉降

胡颢克¹, 梁煌¹, 宋星竹¹, 曾台楠¹, 梁鹏^{1,2,*}, 吴胜春^{1,2,#}

1. 浙江农林大学环境与资源学院, 杭州 311300

2. 浙江省土壤污染生物修复重点实验室, 杭州 311300

收稿日期: 2023-10-22 录用日期: 2024-01-16

摘要: 森林系统, 是汞在地球生物化学过程中极为重要的一环。其中, 叶片是大气汞与森林交互作用的主要界面。本文以临安地区的典型落叶林、针叶林为例, 进行定点监测, 探明不同季节落叶林、针叶林中汞在叶片和林下土壤中的分布状况及其影响因素。定点监测实验的结果表明, 森林汞在垂直方向上具有明显的分层累积现象, 其中土壤中汞浓度最高, 含量最多, 凋落物其次, 新鲜叶最低。且阔叶林在各垂直分层中汞含量均显著高于针叶林。2种森林类型汞均在7—9月达到峰值, 这与森林生长发育的季节性与夏季土壤汞的再释放相关。凋落物汞输入是森林土壤汞的主要来源之一, 而由土壤所固持的汞主要集中于0~10 cm土层, 这与0~10 cm土层中含有的大量具有吸附、固定汞能力的有机质相关。另外, 对阔叶林与针叶林的沉降通量估算结果显示, 阔叶林沉降通量高于针叶林, 这与阔叶林凋落物沉降通量显著高于针叶林相关。本研究的结果有助于了解森林叶片汞浓度以及土壤汞负荷的影响, 以及不同季节森林叶片汞和土壤汞时空分布状况。同时, 本研究也有利于进一步探明浙江省森林汞地球生物化学循环过程的特征与分布情况。

关键词: 汞; 森林; 汞沉降通量

文章编号: 1673-5897(2024)2-218-14 中图分类号: X171.5 文献标识码: A

Mercury Migration and Deposition in Different Forests in Xijingshan, Lin'an

Hu Xieke¹, Liang Huang¹, Song Xingzhu¹, Zeng Tainan¹, Liang Peng^{1,2,*}, Wu Shengchun^{1,2,#}

1. College of Environmental and Resource Sciences, Zhejiang A&F University, Hangzhou 311300, China

2. Key Laboratory of Soil Contamination Bioremediation of Zhejiang Province, Hangzhou 311300, China

Received 22 October 2023 accepted 16 January 2024

Abstract: Forest ecosystems play an extremely important role in the biogeochemical processes of mercury on Earth. Among them, leaves serve as the primary interface for the interaction between atmospheric mercury (Hg) and forests. In this study, typical deciduous and coniferous forests in the Lin'an Region were selected for fixed-point monitoring to investigate the distribution of Hg in leaves and forest soils during different seasons and the influencing factors. The results of the experiments indicate that forest Hg exhibits a significant vertical accumulation pattern. Among the vertical layers, the highest Hg concentrations were found in the soil, followed by litterfall, and the low-

基金项目: 浙江省自然科学基金项目(LY21D030001)

第一作者: 胡颢克(1997—), 男, 硕士研究生, 研究方向为汞元素的环境地球化学, E-mail: huxieke2021@163.com

* 通信作者 (Corresponding author), E-mail: liangpeng@zafu.edu.cn

共同通信作者 (Co-corresponding author), E-mail: shengchunwu@126.com

est in fresh leaves. Additionally, broad-leaved forests had significantly higher Hg concentrations in all vertical layers compared to coniferous forests. Both types of forests reached their peak Hg levels from July to September, which is related to the seasonal growth of the forests and the re-release of Hg from soils of summer. Litterfall deposition was identified as the one of primary source of Hg input into forest soils, and the Hg retained by the soil was mainly concentrated in the 0 ~ 10 cm soil layer. This is related to the presence of a significant amount of organic matter in the 0 ~ 10 cm soil layer, which has adsorption and immobilization capabilities for Hg. Furthermore, the estimated results of deposition flux for broad-leaved and coniferous forests showed that broad-leaved forests had higher deposition flux compared to coniferous forests, which is correlated with the significantly higher litterfall deposition flux in broad-leaved forests. The potential ecological risk of soil total mercury in broad-leaved forest was significantly higher than that in coniferous forest ($P < 0.05$). The findings of this study contribute to understanding the Hg concentration in forest leaves and the soil Hg load, as well as the spatiotemporal distribution of Hg in forest leaves and soil during different seasons. Additionally, this research is valuable for further exploring the characteristics of the Hg biogeochemical cycle and ecological risk situation in forest ecosystems in Zhejiang Province.

Keywords: mercury; forest; mercury deposition flux

汞(Hg)能在常温常压下以气态形式存在于大气环境中,也是唯一能够通过大气传输并作长距离迁移的重金属污染物。因此,联合国环境规划署于2014年将汞列为全球性污染物^[1]。从Hg的化学形态来看,可以将大气中的Hg分类为气态单质汞(gaseous elemental mercury, GEM)、气态氧化汞(gaseous oxide mercury, GOM)和颗粒态汞(particulate bound mercury, PBM)^[2]。GEM是大气Hg的主要成分,占总量的90%左右^[3]。大气中的Hg主要来自于自然排放源与人为排放源,经由排放源进入大气中,并参与Hg在全球的循环过程^[4-5]。根据世界卫生组织(World Health Organization, WHO)的研究,Hg污染是仅次于PM_{2.5}和光化学烟雾的全球第三大空气污染。同时,Hg是除了温室气体之外能够对全球环境产生重要影响的化学物质。因此,对于Hg的大气迁移路径通量及其影响因素,已成为目前全球Hg研究的热点之一。

森林面积占全球陆地总面积的31%^[6],是全球生物地球化学循环最活跃的地区之一,同时也是Hg在大气-地表界面交换最活跃的地区之一,在Hg全球生物地球化学循环中发挥着重要作用。GEM进入森林的方式以干沉降和湿沉降为主。研究表明,Hg进入森林生态系统后,会造成具有隐蔽性、长期性、不可逆性的影响^[7],长期累积会对森林生态系统造成一定风险。以干沉降为例,GEM可经由叶片气孔吸收进入叶片内部,含Hg叶片再以凋落的方式进入土壤,从而被固定在森林系统中。数据显示,全球森林Hg凋落物的总沉降量占全球大气总汞(total

Hg, THg)库存量的20%^[8]。

由于植被覆盖了近80%的森林面积^[9],叶片可截留大部分从大气中沉降的Hg。因此,叶片是森林与GEM交互作用的重要界面,也是GEM向森林土壤沉降的主要载体^[10]。而交换过程中,由于Hg的半挥发性和Hg在环境介质中的氧化还原特性,Hg的沉积和逃逸将受到季节、温度、光照、湿度、植被覆盖度、植被生命周期、大气湍流和反应物等多种环境变量的影响^[11]。目前国内外关于森林Hg的调查研究中,主要研究方向为Hg在森林系统中的空间分布特征。例如对青藏高原森林Hg的调查中显示,越靠近青藏高原腹地,青藏高原林线区域的冷杉凋落物、树叶树皮与表层土壤的Hg含量则越低。如冷杉凋落物在云南与西藏、四川与西藏的交界区域Hg浓度为60~70 ng·g⁻¹,而昌都地区Hg浓度仅为20~30 ng·g⁻¹^[12]。

树叶在捕获和裹挟大气污染物方面发挥着重要作用,森林覆盖的区域比开阔地更能有效地捕获干沉积的Hg^[13-14]。因此,叶片被视为大气Hg的中间储存库,在全球生物地球化学循环和Hg在大气与岩石圈和水生环境之间的移动中发挥着重要作用^[15]。因此在早期研究中,叶片一直被认为是森林Hg^[16-17]的汇,但随着研究不断深入,叶片在森林生态系统中,不再仅被认为是Hg汇,也可能以Hg源的形式参与Hg的地球化学循环^[18],而此时土壤可能成为森林系统新的Hg汇^[19]。

凋落物是森林生态系统物质流动和能量循环的关键环节,其分解过程对森林生态系统的养分循环

至关重要。凋落物具有独特的生态功能。它保持土壤肥力,并在生长过程中为植物提供营养,构成生物和土壤之间的物质循环。凋落物分解速率直接影响森林生物量、土壤养分含量和土壤理化性质^[20]。随着分解过程的进行,凋落物的能量和营养物质被输入森林土壤,这也是森林土壤中动物和微生物的主要能量和物质来源。大气中的 Hg 沉降主要被植物的叶子吸收,而不是被保留在森林树冠中的根吸收。凋落物的分解过程会为森林土壤提供大量所需的元素,而凋落物分解过程中碳、氮等有机物的变化也会反映土壤和森林植被对有机物的利用。随着凋落物的分解,包括 Hg 在内的重金属被释放并重新吸收到凋落物和土壤中,凋落物中的 Hg 在分解过程中具有逐渐积累的作用^[21]。

因此,大气中的 Hg 主要经叶片吸收进入,通过叶片的自然生长过程后以凋落物的形式进入土壤,该过程机制复杂,本研究的目的在于探索该过程的不同成分中 Hg 含量的差异,以此分析过程中 Hg 的流转方向。

本研究以杭州市临安区西径山典型森林为研究对象,同时观测样地森林中的马尾松与香樟。通过监测每月鲜叶、凋落物、土壤 THg 浓度,预估 Hg 干沉降通量,形成森林垂直方向上的研究方法。对临安区典型阔叶林、针叶林通过凋落物的方式,向土壤沉降 Hg 的过程特征及变化趋势进行解析,同时对比同一片森林中,2 类林种之间的 Hg 含量差异,更好地还原森林中多林种共存的实际情况,以此展示森林 Hg 的迁移变化与凋落物沉降规律。

1 材料与方法 (Materials and methods)

1.1 研究区及采样点

调查样地位于杭州市临安区东北部(图 1),地处天目山终脉,属于西径山山系森林。样地具体位置为东经 119.728°,北纬 30.263°附近。森林植被属于亚热带常绿阔叶林分布区,主要的森林类型为常绿阔叶林、针阔混交林、针叶林等 40 多个植被群系^[22]。根据赵海侠等^[23]的研究,其研究选取的对照区域接近本次调查样地,其对照点的 GEM 水平为 $(1.20 \pm 0.35) \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3}$,接近全球 GEM 质量浓度背景值 $(1.5 \sim 2.0 \text{ ng} \cdot \text{m}^{-3})$,为正常水平。

本研究对样地(图 1(a))内主要乔木林进行调查统计,并结合浙江省主要森林类型分布图(图 1(b))后,确定对阔叶林和针叶林进行定点采样观测并展开实验,分析 2 种临安区典型乔木林的森林 Hg 变

化情况与迁移规律。其中阔叶林以香樟(*Cinnamomum camphora* (Linn) Presl)为主,针叶林以马尾松(*Pinus massoniana*)为主。具体样点分布情况如图 2 所示。

1.2 样品采集与处理

有研究利用凋落物 THg 沉降通量代替森林生态系统 THg 的干沉降通量^[24]。而且通过建立模型对全球尺度上 THg 的干沉降估算,THg 的干沉降占总沉降的 75%~80%,是森林系统中大气 THg 沉降的最主要的方式^[25]。因此,本研究从时间 2022 年 4 月—2023 年 3 月,每隔 30 d 进行一次采样,从各个样地中收集阔叶样点与针叶样点的新鲜叶片、当月凋落物以及土壤。具体方法如下。

新鲜叶样品:每隔一月在凋落物收集布的上方,利用高枝剪采集树冠外侧的新鲜叶片,新鲜叶片以长在树冠外侧树枝顶端的嫩叶为主。以图 2 中每个点位所在的树木为主,每颗树枝头剪下一份鲜叶,一般质量在 80~100 g 左右。11 个点位的样品全部收集完成后混合取样 500 g,该份样品为该森林本月份的新鲜叶样品。以此确保样品的随机性。样品装入自封袋中并编号,运输至实验室-80 °C 环境中保存。

凋落物样品:在采样点附近每个收集样品的点下方布置一块 1.8 m×1.3 m 的尼龙布,四端固定在树干上,离地 1 m 高度,用于收集当月凋落物,由 11 个点位构成的采样区域中,放置均匀分布的 3 块尼龙布。收集每一块样品尼龙布上的当月凋落物一份,称重,获取该月份凋落物沉降质量,同时计算每块收集布上的凋落物沉降通量,取 3 块采样布均值即为该森林本月的凋落物沉降通量。凋落物沉降通量计算完成后,将 3 块收集布上的凋落物样品混合均匀,取 500 g 即该森林本月的凋落物样品,并清空收集布。样品装入自封袋中并编号,运输至实验室-80 °C 环境中保存。

土壤样品:在 11 个点位构成的采样区域中,每月挖取一个宽 0.5 m、长 0.5 m、深 0.7 m 左右的土壤剖面,并根据不同土壤颜色进行分层,利用不锈钢土钻采集土壤,每个采样点采集 5 层剖面土(深度达 50~60 cm),根据采集土壤的深度不同,将土壤样品编号为 Oa 层(表层土壤,0~5 cm)、S1(5~10 cm)、S2(10~20 cm)、S3(20~30 cm)、S4(30~50 cm)。按土壤分层的规律,在对应点位附近的土壤采集各土层的土壤样品 500 g,为当月的土壤样品。每个森林每

月取 5 层土,每层 500 g。分层装入自封袋中并编号,运输至实验室-80 ℃环境中保存。

植物、土壤样品在-80 ℃环境中保存 24 h 后,使用冷冻干燥机(FreeZone, USA, 12Plus)冻干 48 h。冻干后,使用球磨仪(金星,上海,中国, Tissuelyser-24)研磨植物样品为粉末状,过 100 目筛,获取植物粉末样品。将土壤样品使用研钵研磨,过 100 目筛,获取土壤粉末样品。并将植物、土壤样品置于 4 ℃冰箱备用。

采样时间:每个月 25 日左右,具体时间视天气

而定。一般保证采样前 2 d 内为晴天。

1.3 样品分析

1.3.1 植物样品 THg 测定

准确称取 0.1000 ~ 0.2000 g 样品放入 25 mL 比色管;加入 5 mL 工艺超纯 HNO₃(优级纯,广州西院科学)摇匀,随后放入 95 ℃水浴锅消解,每隔 0.5 h 摇一次,消煮 4 h。待完全消解后,加入少许 DDW 和 125 μL 的 BrCl,并准确定容至 25 mL,摇匀,常温放置 24 h 后上机测定,测定经上述处理的样品前,提前 30 min 加入 200 ~ 400 μL 的 NH₂OH·HCl,还

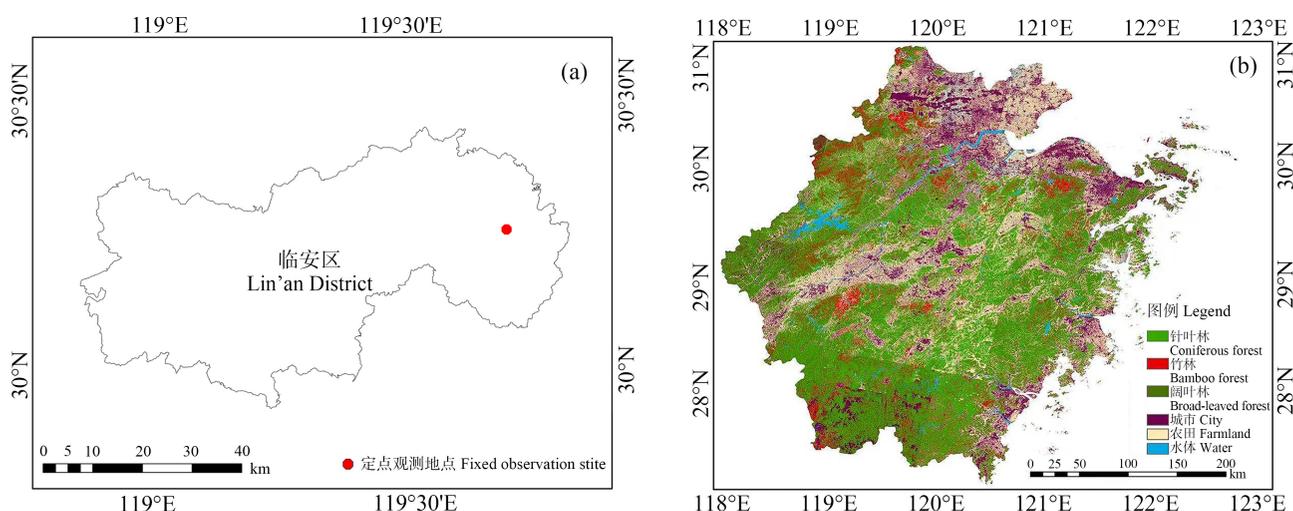


图 1 定点观测样地位置 (a) 及浙江省森林种类分布图 (b)

Fig. 1 Fixed point observation sample site (a) and distribution of forest types in Zhejiang (b)

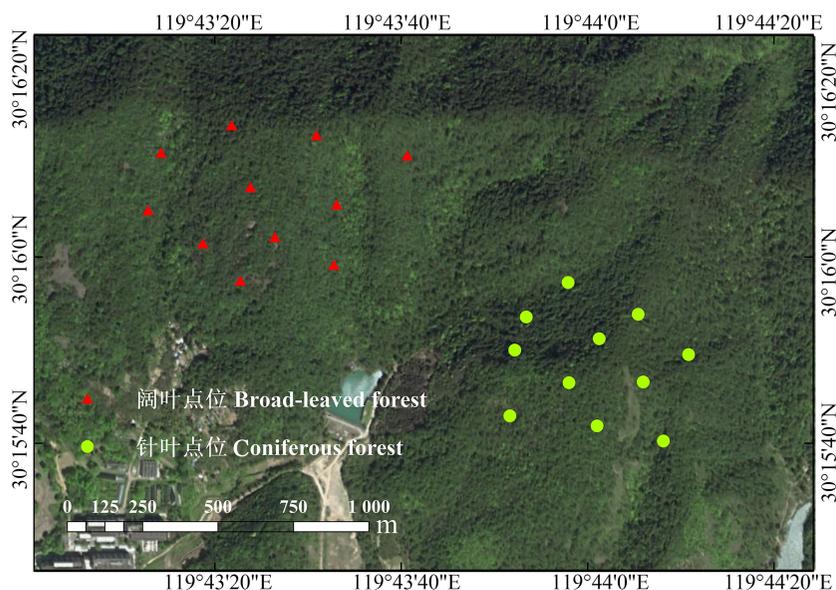


图 2 样点布置情况

Fig. 2 Layout of sample points

原过剩的 BrCl, 摇匀, 静置, 澄清后取上清液上机测定。采用郑伟等^[26]冷原子荧光法在 MERX 型形态汞/总汞分析仪上测定溶液中 THg 的质量浓度。使用 GBW10020(柑橘叶)为标准物质, 回收率为 99.3%~102.6%。严格按照 US EPA Method 1631 标准进行样品测定, 确保 THg 浓度准确性。

1.3.2 土壤样品 THg 测定

准确称取 0.1000 g 样品置于 25 mL 比色管中; 加入 5 mL 超纯水(DDW)和 5 mL 现配王水($V(\text{HNO}_3) : V(\text{HCl}) = 1 : 3$)摇匀后将比色管放入 95 °C 水浴锅(精宏, 上海, 中国, DK-S28)中消煮, 约 0.5 h 后, 加入 0.5 mL 25% BrCl 溶液(盐酸:4.0 mol·L⁻¹ in solution 1,4-dioxane, 北京迈瑞达, 中国; 溴化钾:99%, 上海麦克林, 中国), 每隔 0.5 h 摇晃一次(可依据样品情况增加摇晃频率), 消煮 6 h。完成消解后, 准确定容至 25 mL, 摇匀。常温放置 24 h 后使用汞形态分析仪(BrooksRand, USA, MERX)测定。采用李仲根等^[27]冷原子荧光法在 MERX 型形态汞/总汞分析仪上测定溶液中 THg 的质量浓度。使用 GBW-0730-5a(水系沉积物)为标准物质, 回收率为 98.7%~104.3%。质量控制标准同植物样品 THg 指标, 标准同植物测试方法。

1.3.3 土壤 TOC 测定

土壤中 TOC 测定的方法参考鲍士旦著作《土壤农化分析》中的重铬酸钾滴定法, 称取 0.02~0.3 g 样品于消煮管中, 加入 5 mL 0.2 mol·L⁻¹重铬酸钾硫酸溶液(重铬酸钾:99.5%, 上海萨恩化学; 浓硫酸:AR, 99.99%, Sigma-Aldrich), 放置小漏斗盖上; 将消解仪(CIF, 中国, DS43-260)预热至 180 °C 后, 把消煮管放入消解仪里消煮, 使溶液保持沸腾 5 min 后取出放置冷却; 在冷却后的消煮管中加入 3~4 滴邻菲罗啉试剂(98%, 上海皓鸿生物医药, 中国), 使用 0.2 mol·L⁻¹硫酸亚铁溶液(99%, 北京迈瑞达, 中国)滴定, 消煮管中溶液由橙黄经蓝绿至棕红色, 记录消耗硫酸亚铁体积; 每批测量需做 3 个空白, 硫酸亚铁易氧化, 每批测量需要用重铬酸钾标准溶液确定硫酸亚铁浓度。

1.3.4 森林凋落物质量沉降通量与凋落物 THg 沉降通量计算方法

凋落物质量通量的计算方式为: 每月采样时, 收集尼龙布上的所有叶片凋落物, 并称重, 得到的质量除以尼龙布的面积(1.8 m×1.3 m)2.34 m², 得单位面积内观测点每月凋落物的质量, 即为凋落物质量沉

降通量。

通过测试得出凋落物的 THg 浓度, 乘以对应的凋落物质量通量, 即得凋落物 THg 沉降通量。

1.4 数据处理与分析

使用 Origin 2019b 和 Excel 2021 进行数据处理图像绘制, 使用 IBM SPSS Statistics 26.0 进行统计分析, 使用 Arcmap10.7 对样点分布图进行绘制。所有统计分析的显著性均基于 95% 的置信区间。当数据呈正态分布时, 文本使用单因素方差分析和事后检验进行统计差异分析。

2 结果与讨论 (Results and results)

2.1 西径山森林汞分布情况及影响因素

由图 3 所示, 在临安森林系统中, 临安区针叶林中, 新鲜针叶、凋落物、表层土壤的 Hg 浓度变化范围分别为 8.65~31.72 ng·g⁻¹(平均值为(18.97±8.88) ng·g⁻¹), 20.37~79.33 ng·g⁻¹(平均值为(40.33±15.52) ng·g⁻¹), 5.64~93.64 ng·g⁻¹(平均值为(80.31±9.12) ng·g⁻¹)。而阔叶林中的鲜叶、凋落物、腐解凋落物、表层土壤的 Hg 浓度变化范围则分别为 15.88~46.12 ng·g⁻¹(平均值为(32.66±10.14) ng·g⁻¹), 44.36~152.07 ng·g⁻¹(平均值为(79.37±30.41) ng·g⁻¹), 98.83~183.63 ng·g⁻¹(平均值为(133.52±30.64) ng·g⁻¹)。

对比可知, 针叶林各成分中, 表层土壤 Hg 浓度显著大于凋落物, 凋落物显著大于新鲜针叶($P < 0.05$)。

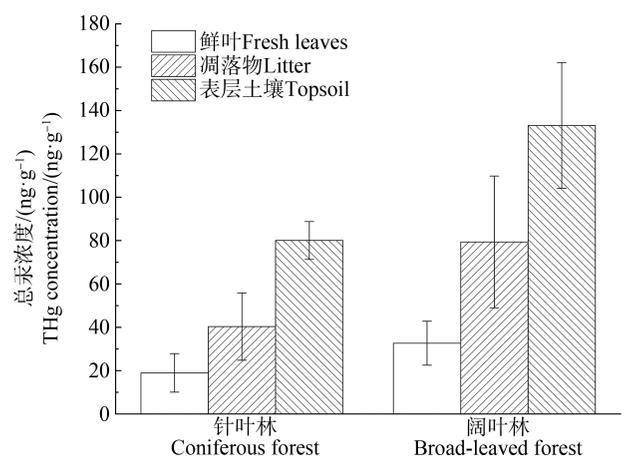


图3 不同森林类型中鲜叶、凋落物和表层土壤中 THg 浓度分布特征

注: THg 表示总汞。

Fig. 3 Distribution characteristics of total mercury concentration of various components in sample plots

Note: THg stands for total Hg.

阔叶林各成分中,表层土壤 Hg 浓度显著大于凋落物,凋落物的 Hg 浓度显著大于新鲜阔叶($P<0.05$)。2 种森林之间对应成分进行对比后发现,阔叶林各成分的 THg 浓度均大于针叶林($P<0.05$)。

凋落物 Hg 含量高于鲜叶 Hg,是由于落叶在微生物作用下不断腐解,造成 Hg 在枯枝落叶层和表层土中累积^[28-29],森林土壤 Hg 含量高于凋落物 Hg 与叶片 Hg,这是由于土壤 Hg 不仅由凋落物的长期累积贡献,也存在地质来源贡献,另一方面,穿透雨通过洗刷叶片表面的 PBM 与 Hg^{2+} 也对土壤 Hg 有所贡献^[30]。

凋落物与鲜叶相比,其累积 Hg 的过程更长,考虑到凋落物在进入地表土壤之前的生长时间。对于叶片中的营养物质来说,存在老叶向新叶输送的过程,但由于 Hg 性质特殊,根据李俭^[21]的理论,大气中的 Hg 沉降主要被植物的叶子吸收,而不是被保留在森林树冠中的根吸收。植物叶子吸收的 Hg 一部分重新释放到大气中,一部分储存在叶子中,而保留在叶子组织中的 Hg 最终会随着叶子的衰老和掉落而到达表面。同时随着凋落物腐解过程的不断进行,生物质转化为二氧化碳流失,叶片中的生物质减少,Hg 则留存在叶片中,导致叶片中 Hg 浓度提升,综合导致凋落物的 Hg 浓度高于新鲜叶片,形成了地上部分凋落物与鲜叶 Hg 浓度分异情况。

同一地区干湿沉降的通量大致是相等的,地面土壤 Hg 蓄积量应该是沉降和释放的综合结果,针叶林土壤 Hg 蓄积量小于阔叶林,可能是因为针叶林土壤 Hg 释放通量大于阔叶林。土壤中 Hg 释放后会进入大气中,通过吸附或者呼吸作用等方式被

树叶再次吸收,其余则被释放到大气中。因此造成 2 种森林土壤 Hg 释放通量呈现差异的原因可能是二者对于大气 Hg 截留能力的不同。根据徐恩恩等^[31]的研究,森林郁闭度是考量森林属性的一种重要指标,两者郁闭度差异可能是导致针叶林土壤 Hg 释放通量大于阔叶林的原因。

研究表明,表层土壤(60 ± 24)% 的 Hg 来源于 GEM, (5 ± 9) % 来源于大气 Hg^{2+} 沉降,其余(35 ± 18)% 继承自地质来源^[32]。

对比 2 种不同的林种之间不同样品中 THg 浓度后可知,阔叶林的鲜叶、凋落物、土壤 THg 浓度均显著高于针叶林中的相应组分($P<0.05$)。本研究中的样地地理位置接近,接受 GEM 沉降水平基本相同。由此可知,临安区相同环境条件下的针叶林与阔叶林之间,阔叶林捕获、吸收 GEM 沉降的能力较针叶林强。这可能与阔叶林叶片生物量较大且叶片气孔通量更高有关,这可能使得阔叶林叶片相较于针叶林叶片能够吸收更多 GEM,并传递至凋落物层与土壤层。根据云南哀牢山的调查,在相同海拔梯度上,不同森林类型叶片中 Hg 含量差异显著($P<0.01$)。其中,混交林((51.2 ± 16.6) $ng\cdot g^{-1}$)和阔叶林((41.9 ± 18.1) $ng\cdot g^{-1}$)含量最高,针叶林次之((29.3 ± 12.4) $ng\cdot g^{-1}$),高寒林最低((26.3 ± 13.4) $ng\cdot g^{-1}$)^[33],与本研究的调查结果相符。

图 4 所示为针叶林与阔叶林各类样品的 THg 浓度在采样期内随时间变化情况。针叶林中土壤和凋落物的 THg 浓度在 2022 年 8—10 月达到峰值,并在 10 月后呈逐渐下降趋势,而鲜叶 THg 浓度则在 6 月份达到峰值后,呈现总体下降趋势;阔叶林情

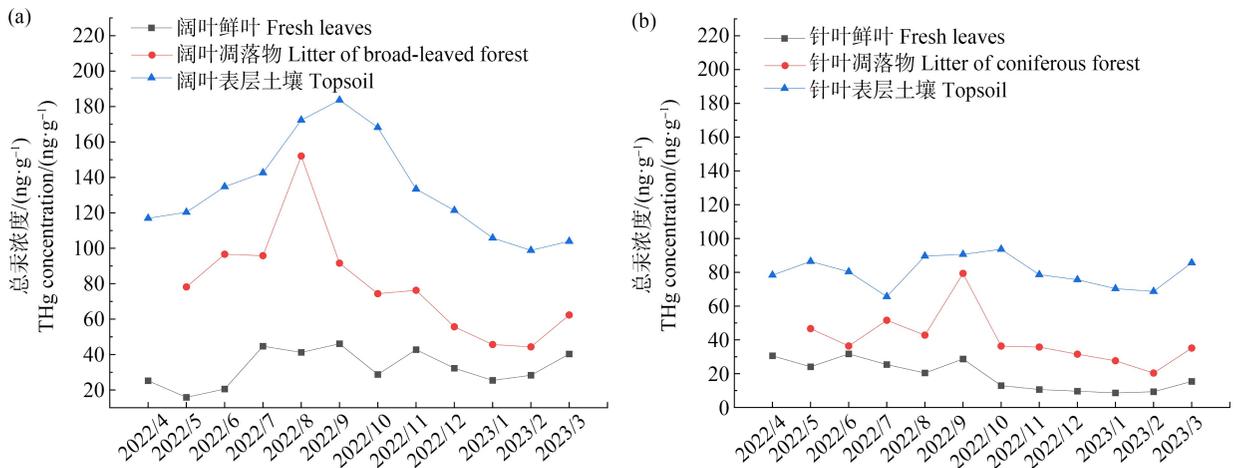


图 4 不同时期 2 种森林中各成分的 THg 浓度变化情况

Fig. 4 Changes of mercury concentrations in different components of two forests in different periods

况与针叶林类似,土壤和凋落物的 THg 浓度峰值出现在 2022 年 8—9 月,并在 10 月后开始下降,而鲜叶 THg 浓度在 9 月份到达峰值。

总体而言,森林叶片 Hg 在夏季达到峰值,且阔叶林 Hg 含量高于针叶林。这可能是由于夏季森林的代谢更加旺盛,更旺盛的代谢可能导致了叶片气孔通量的增加,从而吸收了更多的 GEM。研究表明,新生树叶对 GEM 的吸收速率是最快的^[34],而春夏季节是树叶生长发育最为旺盛的季节,因此在春夏季新生树叶快速吸收、累积的 Hg 在 7—9 月达到峰值。在 9 月后春夏季新生树叶持续凋落,而气孔通量降低,导致森林系统中的 Hg 浓度降低。

其次,夏季土壤可能存在 Hg 的再释放过程^[5]。夏季较强的光辐射强度,可能激发土壤的 Hg^{2+} 的光致还原,根据 Gao 等^[36]的研究,大气 Hg 沉降是整个砖红壤剖面的主要 Hg 源,土壤剖面呈现负的非质量分馏值($\Delta^{199}Hg$, 达 $-0.6‰$),表明大气源 Hg 在土壤表面发生了显著的光还原再释放。说明土壤地面在 GEM 循环过程中,存在显著的光致还原反应。且阔叶林的郁闭度要高于针叶林,理论上光还原释放效应小于针叶林,从而导致针叶林土壤的 Hg 浓度总体上低于阔叶林。此外,秋季凋落物数量达到峰值,由于腐解和淋洗作用导致秋季中土壤中的 Hg 浓度高于其他季节;而此后,由于垂直向的淋溶作用和光还原释放效应,土壤中的 Hg 浓度逐步降低。由此可见,土壤中的 Hg 浓度受季节性凋落物输入量、光还原释放量和淋溶作用以及降雨量等多因素综合作用的影响。

2.2 西径山森林土壤总汞变化情况

土壤是森林系统的重要组成部分,其承载着环境中约 90% 的污染物^[37]。GEM 通过干、湿沉降进入土壤,而进入土壤中的 Hg 由于黏土矿物和有机质的吸附作用而迅速被土壤吸持或固定,造成土壤 Hg 含量的升高^[38]。综合输入与输出 Hg 通量,森林土壤被认为是一个净 Hg 汇,将绝大部分($>70%$)大气输入的 Hg 保留在森林土壤中^[39]。由此,森林在垂直方向的 Hg 浓度分布情况出现明显的分层累积。

由图 5 中临安 2 种森林的森林土壤 THg 变化情况来看,土壤 THg 浓度垂直方向上的分布呈现相似趋势,Oa 层的 THg 浓度最高,随土层深度增加,土壤 THg 浓度逐渐降低,至 S2 层开始趋于稳定,S3 层的土壤 Hg 浓度与 S4 层并无明显差异。2 种森林类型之间,仅阔叶林 Oa 与 S1 层 THg 浓度显著大于针叶林 Oa 与 S1 层($P<0.05$)。这可能与土壤 Oa 层与 S1 层存在足量 TOC 能够吸附、固定土壤 Hg 有关。研究表明,土壤 TOC 是土壤 THg 最主要的影响因素^[21]。有学者认为,凋落物在腐解过程中通过微生物作用产生的腐殖酸对 Hg 具有很高的吸附容量^[40]。已有研究指出 Hg 的吸收与腐殖酸的络合有很大关系,土壤有机质是一种有效的 Hg 吸附剂,土壤对 Hg 的吸附量与其腐殖酸的含量成正比^[41]。表层土壤积累的大量 TOC 将凋落物腐解过程中释放的 Hg 和穿透雨洗刷作用带入土壤的 Hg 大量固定在表层土壤中,因此,即便 Hg 存在强迁移性,也难以大量迁移至土壤深层(S1 层以下土壤)。另一方面,少量穿透表层土壤的 Hg 也将被深层土壤中的少量 TOC 所固定。如图 6 所示,不同土层的

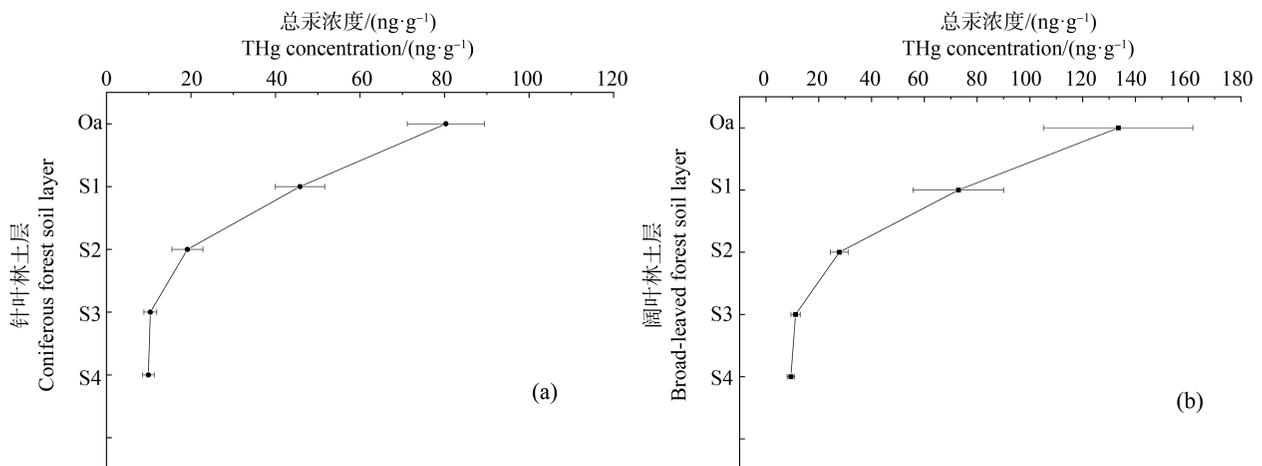


图 5 2 种森林中土壤 THg 浓度变化趋势

Fig. 5 Variation trend of soil mercury concentration in two forests

TOC 水平分布情况基本与图 5 中不同土层 THg 水平趋势相似,总体呈现为土壤 THg 随着土壤 TOC 降低而降低。土壤 THg 含量与土壤 TOC 含量相关性结果表明(图 7),研究区域阔叶林与针叶林土壤

THg 水平与 TOC 基本呈显著正相关($P<0.01$)。

2.3 西径山森林凋落物汞沉降通量估算

凋落物是除降雨湿沉降外,GEM 输送到森林地表的主要途径^[42]。且在 GEM 沉降的贡献被认为大

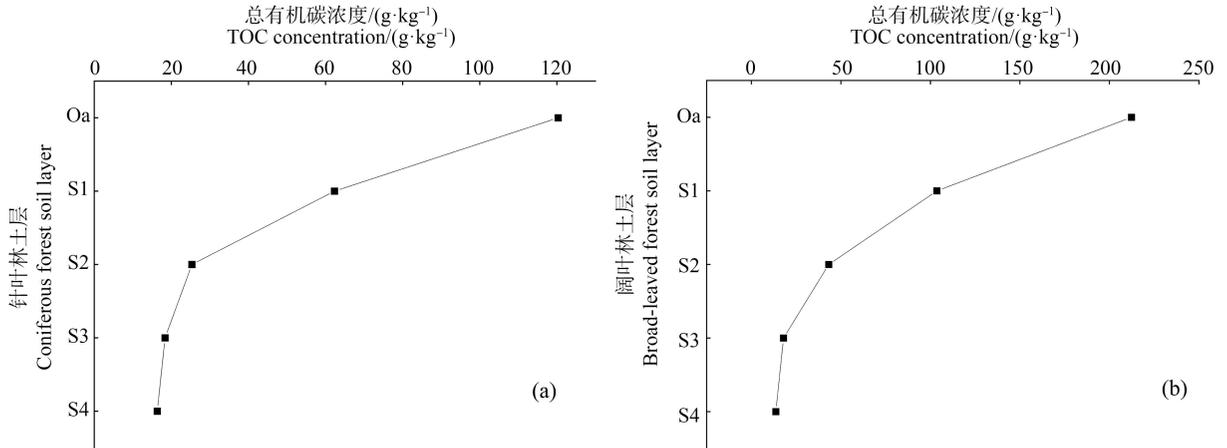
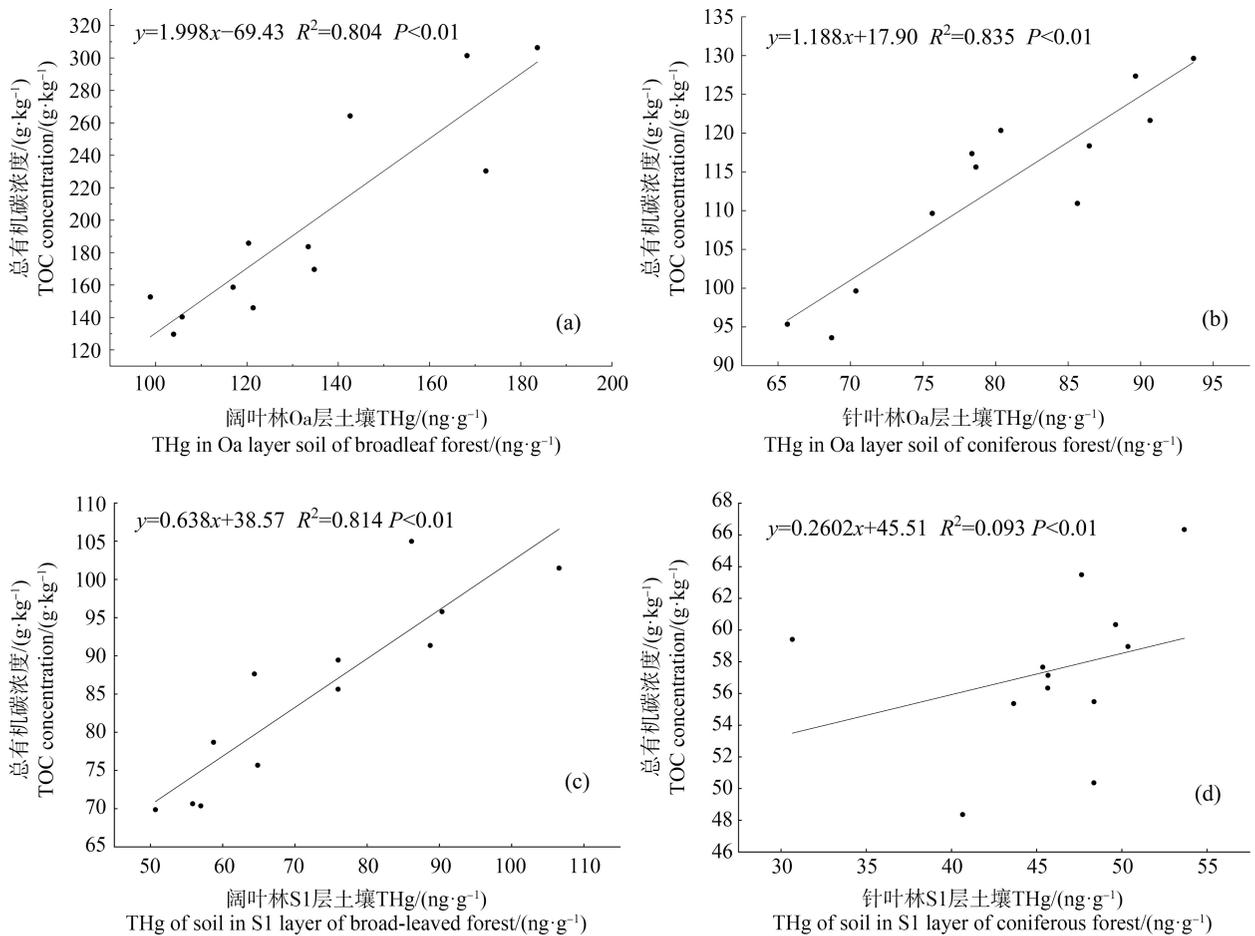


图 6 不同土层 TOC 水平变化

注:TOC 表示总有机碳浓度。

Fig. 6 TOC level changes in different soil layers

Note: TOC represents the total organic carbon level.



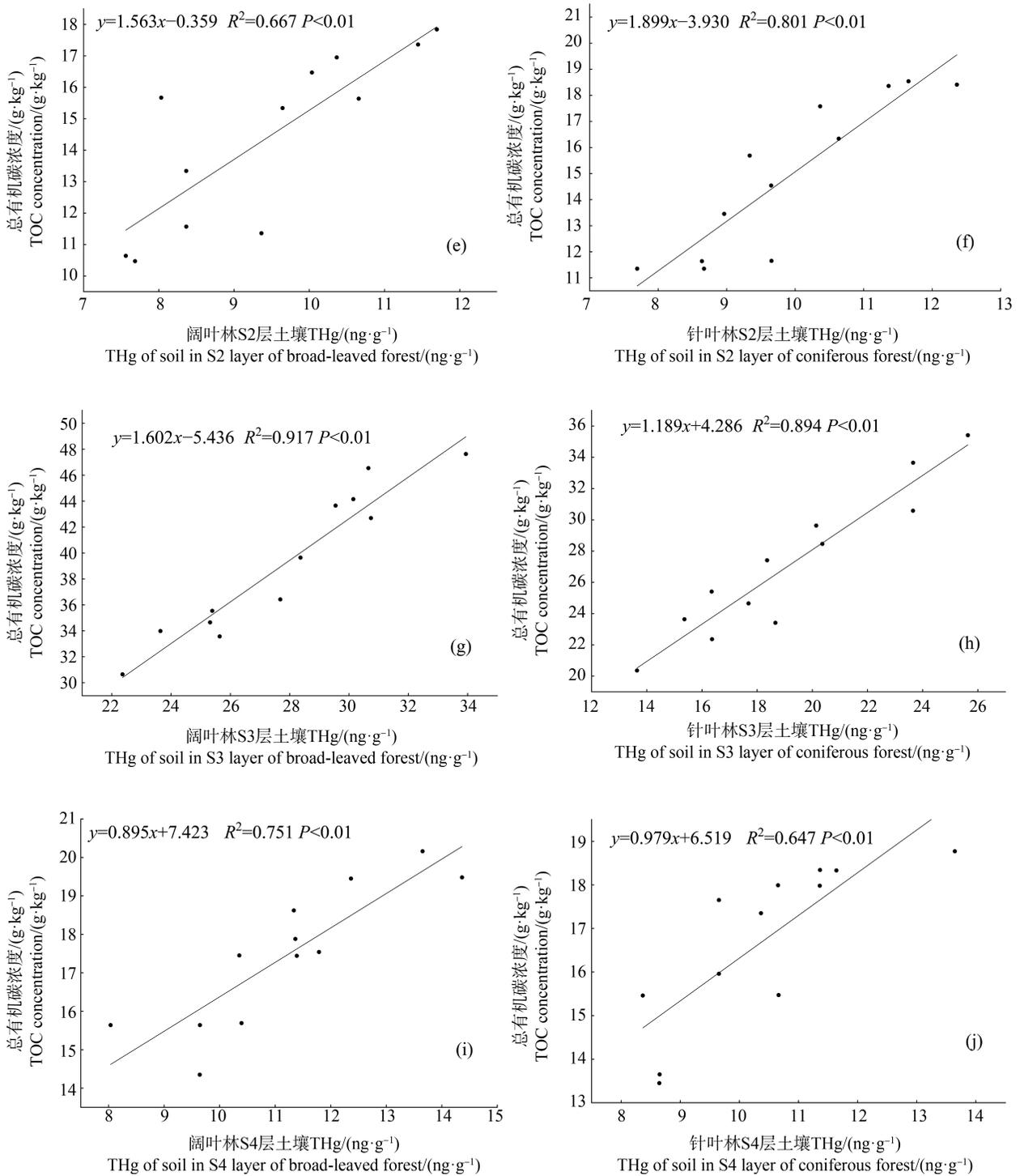


图7 不同森林中土壤 THg 与 TOC 相关性

Fig. 7 Correlation between total mercury in soil and TOC in diverse forests

于湿沉降^[43]。落叶占凋落物生物量的 50%^[44]。其 THg 浓度在凋落物成分中最高^[45]。因此,通过每月收集的凋落物,来估算西径山典型森林 GEM 干沉降通量情况。调查区域内 2 种典型森林的凋落物 THg 沉降通量与其他区域凋落物 THg 沉降通量情

况比较如表 1 所示。

研究区域针叶林的凋落物通量为 $(315.63 \pm 118.70) \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$, 高于挪威巴斯克鲁德地区, 低于中国重庆铁山坪、吉林长白山、浙江大梅山等森林。凋落物 THg 沉降通量为 $(13.30 \pm 7.90) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$,

高于挪威巴斯克鲁德地区,接近中国吉林长白山、浙江大梅山的凋落物 THg 沉降通量水平;阔叶林的凋落物通量(708.99 ± 253.22) $\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$,高于德国斯坦克鲁兹集水区,低于中国重庆铁山坪、四川贡嘎山等地区。凋落物 THg 沉降通量为(58.41 ± 31.03) $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$,高于德国斯坦克鲁兹集水区、中国四川贡嘎山,低于中国重庆铁山坪。

在本研究区域中,阔叶林的凋落物通量与凋落物 THg 沉降通量均显著大于针叶林的水平($P < 0.05$)。2 种森林的凋落物通量、凋落物 THg 浓度和 THg 沉降通量对比分析如图 8 所示。

据图 8 所示,2 种森林的凋落物 THg 沉降通量与自身的凋落物 THg 浓度和凋落物沉降通量之间,均成显著的线性正相关关系($P < 0.01$)。针叶林中,凋落物沉降通量对于凋落物 THg 沉降通量的影响程度($R^2 = 0.734$),大于 THg 浓度对于凋落物 THg 沉降通量的影响程度($R^2 = 0.597$)。阔叶林中的情况相

似,凋落物沉降通量对于凋落物 THg 沉降通量的影响程度($R^2 = 0.798$),大于 THg 浓度对于凋落物 THg 沉降通量的影响程度($R^2 = 0.473$)。因此,影响森林 Hg 干沉降通量的主要因素为该森林的凋落物沉降通量,森林凋落物 THg 浓度对于 THg 沉降通量的影响低于凋落物沉降通量。Zhou 等^[46]在重庆铁山坪针对针叶林与阔叶林的 Hg 进行分析,得出凋落物沉降通量是主导阔叶林 THg 沉降通量大于针叶林的最主要因素。St Louis 等^[16]对高地与湿地森林进行调查后也得出了相同的结论,凋落物 THg 通量主要受凋落物的年生物量通量(凋落物沉降通量)驱动。因此,不同地区森林凋落物生物通量的差异,是造成表 1 中各地区 THg 干沉降通量存在差异的主要原因。

此外,Hg 随着凋落物沉降是森林中,Hg 进入土壤的主要方式。将 2 种凋落物 Hg 沉降通量与森林土壤 Hg 进行分析后,结果如图 9 所示。阔叶林中,

表 1 本研究 THg 沉降通量与其他地区结果比较

Table 1 Comparison of total mercury deposition fluxes in this study with results from other regions

地区 Areas	植被类型 Vegetation type	凋落物通量/ $(\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1})$ Litter flux $(\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1})$	总汞沉降通量/ $(\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1})$ Total mercury deposition fluxes/ $(\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1})$	参考文献 Reference
中国临安西径山 Xijingshan, Lin'an, China	针叶林 Coniferous forest	315.63±118.70	13.30±7.90	本研究 From this Research
中国临安西径山 Xijingshan, Lin'an, China	阔叶林 Broad-leaved forest	708.99±253.22	58.41±31.03	本研究 From this Research
中国重庆铁山坪 Tieshanping, Chongqing, China	针叶林 Coniferous forest	475±23	40.5±9.56	[46]
中国重庆铁山坪 Tieshanping, Chongqing, China	阔叶林 Broad-leaved forest	1 018±59	90.9±16.3	[46]
中国吉林长白山 Changbai Mountains, Jilin, China	-	486	22.8±9.2	[43]
中国浙江大梅山 Dameishan, Zhejiang, China	-	476±128	23.1±8.7	[43]
中国云南哀牢山 Ailao Mountain, Yunnan, China	-	1 114±278	62.8±12.1	[43]
中国贵州雷公山 Leigongshan, Guizhou, China	-	412±199	39.5±27.5	[43]
中国四川贡嘎山 Minya Konka, Sichuan, China	阔叶林 Broad-leaved forest	980	35.5	[47]
挪威巴斯克鲁德 Buskerud, Norway	针叶林 Coniferous forest	122	3.5	[48]
德国斯坦克鲁兹集水区 Steinkreuz, Germany	落叶林 Deciduous forest	576	34	[49]

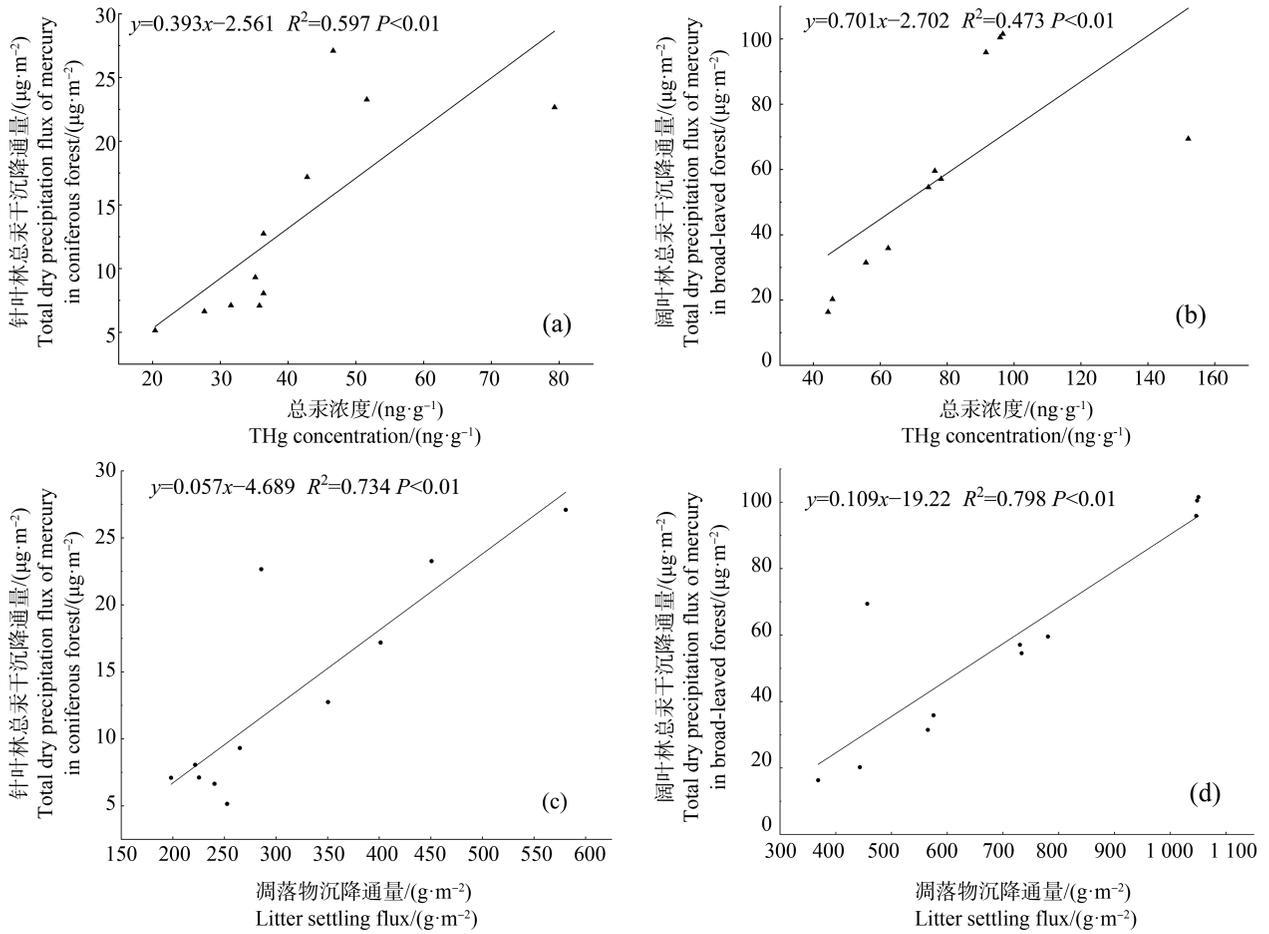


图 8 不同森林中凋落物 THg 浓度、凋落物沉降通量与凋落物 THg 沉降通量之间的相关性

Fig. 8 Correlation between litter mercury concentration, litter deposition flux and litter mercury deposition flux in different forest species

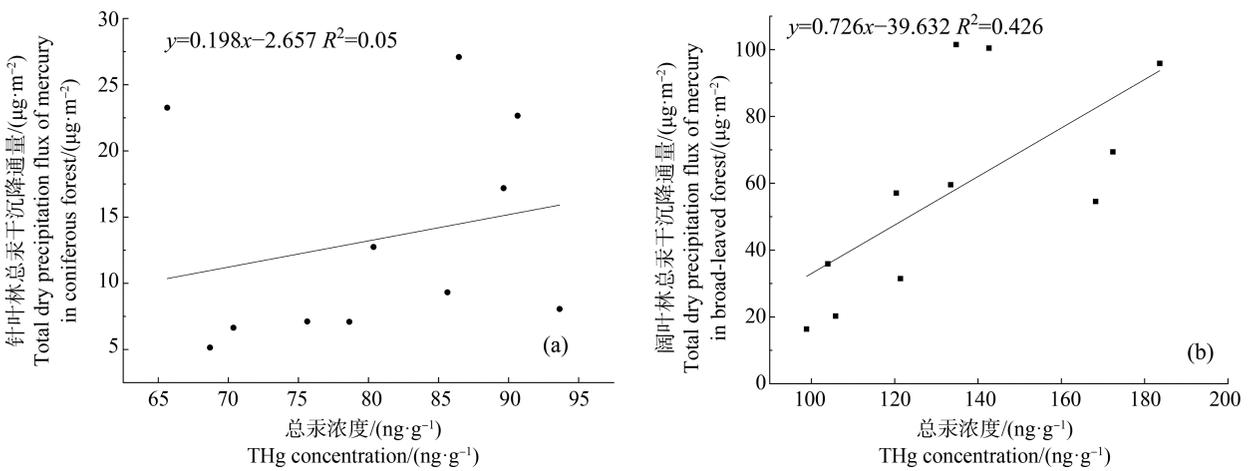


图 9 针叶林 (a) 与阔叶林 (b) 中凋落物 Hg 沉降通量与土壤 THg 含量之间的相关性

Fig. 9 Correlation between Hg deposition flux of litter and THg content in soil in coniferous forest (a) and broad-leaved forest (b)

凋落物 THg 沉降通量对于土壤 THg 含量的影响($R^2=0.05$)要大于针叶林($R^2=0.005$)。结合上文,光致

还原是土壤释放 Hg 的一个重要途径,且针叶林土壤受光照的面积更大,因此综合作用下导致针叶林

土壤 Hg 含量小于阔叶林。

综上所述,本研究表明:

(1)临安区西径山的2种典型森林中,森林 Hg 的分布情况为森林土壤 Hg 大于森林凋落物 Hg,凋落物 Hg 大于新鲜叶片中的 Hg。阔叶林对于大气中沉降的 Hg 的截留能力显著大于针叶林。且阔叶林的总体 Hg 浓度总体在夏季到达最高峰。阔叶林土壤 Hg 浓度则受光致还原与森林郁闭度的影响,在秋季达到最高峰。

(2)研究区域2种森林的土壤 Hg 垂直尺度上的分布情况类似,表层土壤最高,随着土壤深度增加,THg 浓度降低,到 50 cm 左右的土层趋于稳定。土壤的 TOC 水平,是影响2种森林土壤 Hg 分布的主要因素。同时2类林种的 THg 沉降通量及光致还原作用对2种森林土壤 Hg 含量之间的差异也有一定的影响。

(3)研究区域2种森林的 THg 沉降通量水平接近国内其他地区的森林 THg 沉降通量情况,但高于国外一些区域的水平。阔叶林的 THg 沉降通量显著大于针叶林的水平,导致这一情况的因素是二者的凋落物沉降通量之间存在显著差异。

通信作者简介:梁鹏(1983—),男,博士,教授,博士生导师,主要研究方向为污染场地修复、汞元素的地球环境化学。

共同通信作者简介:吴胜春(1969—),男,博士,教授,博士生导师,主要研究方向为重金属和有机污染物的地球化学过程。

参考文献 (References):

- [1] Lindqvist O. Mercury in the Swedish environment [J]. *Water Air and Soil Pollution*, 1991, 55(1): 23-32
- [2] 冯新斌,仇广乐,付学吾,等. 环境汞污染[J]. *化学进展*, 2009, 21(S1): 436-457
Feng X B, Qiu G L, Fu X W, et al. Environmental mercury pollution [J]. *Progress in Chemistry*, 2009, 21(S1): 436-457 (in Chinese)
- [3] 冯新斌,洪业汤. 汞的环境地球化学研究进展[J]. *地质地球化学*, 1997, 25(4): 104-108
Feng X B, Hong Y T. Some advances in environment geochemistry of mercury [J]. *Geology-Geochemistry*, 1997, 25(4): 104-108 (in Chinese)
- [4] Driscoll C T, Mason R P, Chan H M, et al. Mercury as a global pollutant: Sources, pathways, and effects [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(10): 4967-4983
- [5] Obrist D, Kirk J L, Zhang L, et al. A review of global environmental mercury processes in response to human and natural perturbations: Changes of emissions, climate, and land use [J]. *Ambio*, 2018, 47(2): 116-140
- [6] Keenan R J, Reams G A, Achard F, et al. Dynamics of global forest area: Results from the FAO Global Forest Resources Assessment 2015 [J]. *Forest Ecology and Management*, 2015, 352: 9-20
- [7] 周垂帆,李莹,殷丹阳,等. 林地重金属污染来源解析[J]. *世界林业研究*, 2015, 28(5): 15-21
Zhou C F, Li Y, Yin D Y, et al. A review on heavy metal contamination on forest land [J]. *World Forestry Research*, 2015, 28(5): 15-21 (in Chinese)
- [8] Lindberg S E, Bullock R, Ebinghaus R, et al. A Synthesis of progress and uncertainties in attributing the sources of mercury in deposition [J]. *AMBIO: A Journal of the Human Environment*, 2007, 36(1): 19-33
- [9] Schulze E. *Plant Life Forms and Their Carbon, Water and Nutrient Relations [M]// Physiological Plant Ecology II*. Berlin Heidelberg: Springer, 1982: 615-676
- [10] Wohlgenuth L, Osterwalder S, Joseph C, et al. A bottom-up quantification of foliar mercury uptake fluxes across Europe [J]. *Biogeosciences*, 2020, 17(24): 6441-6456
- [11] Zhu W, Lin C J, Wang X, et al. Global observations and modeling of atmosphere-surface exchange of elemental mercury: A critical review [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16(7): 4451-4480
- [12] 吴飞,王训,罗辑,等. 青藏高原林线森林汞的空间分布格局及对大气环境汞污染的指示[J]. *环境化学*, 2019, 38(7): 1619-1627
Wu F, Wang X, Luo J, et al. Spatial distribution of total mercury in timberline forest of Tibetan Plateau regions and its implications of atmospheric mercury pollution [J]. *Environmental Chemistry*, 2019, 38(7): 1619-1627 (in Chinese)
- [13] Kolka R K, Nater E A, Grigal D F, et al. Atmospheric inputs of mercury and organic carbon into a forested upland/bog watershed [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 1999, 113(1): 273-294
- [14] Grigal D F, Kolka R K, Fleck J A, et al. Mercury budget of an upland-peatland watershed [J]. *Biogeochemistry*, 2000, 50(1): 95-109
- [15] Laacouri A, Nater E A, Kolka R K. Distribution and uptake dynamics of mercury in leaves of common deciduous tree species in Minnesota, U.S.A. [J]. *Environmental Science & Technology*, 2013, 47(18): 10462-10470
- [16] St Louis V L, Rudd J W, Kelly C A, et al. Importance of

- the forest canopy to fluxes of methyl mercury and total mercury to boreal ecosystems [J]. *Environmental Science & Technology*, 2001, 35(15): 3089-3098
- [17] Lindberg S E, Jackson D R, Huckabee J W, et al. Atmospheric emission and plant uptake of mercury from agricultural soils near the Almadén mercury mine [J]. *Journal of Environmental Quality*, 1979, 8(4): 572-578
- [18] Lindberg S E, Dong W J, Meyers T. Transpiration of gaseous elemental mercury through vegetation in a subtropical wetland in Florida [J]. *Atmospheric Environment*, 2002, 36(33): 5207-5219
- [19] Ericksen J A, Gustin M S, Schorran D E, et al. Accumulation of atmospheric mercury in forest foliage [J]. *Atmospheric Environment*, 2003, 37(12): 1613-1622
- [20] 冷海楠, 张玉, 崔福星, 等. 森林凋落物研究进展[J]. *国土与自然资源研究*, 2016(6): 87-89
Leng H N, Zhang Y, Cui F X, et al. A review of researches on forest litterfall [J]. *Territory & Natural Resources Study*, 2016(6): 87-89 (in Chinese)
- [21] 李俭. 天山雪岭云杉森林总汞的空间分布特征及其影响因素[D]. 乌鲁木齐: 新疆大学, 2020: 5
Li J. Spatial distribution characteristics and influencing factors of total mercury in *Picea schrenkiana* forests in Tianshan Mountains [D]. Urumqi: Xinjiang University, 2020: 5 (in Chinese)
- [22] 赵伟明, 汪雪飞, 万刚, 等. 浅谈临安市资源植物的保护与开发利用[J]. *华东森林经理*, 2003, 17(2): 40-42, 55
Zhao W M, Wang X F, Wan G, et al. A talk on the protection, development and utilization of resource vegetation in Lin'an City [J]. *East China Forest Management*, 2003, 17(2): 40-42, 55 (in Chinese)
- [23] 赵海侠, 陶奕, 胡保国, 等. 浙西地区典型节能灯加工集聚区大气气态总汞污染特征研究[J]. *生态环境学报*, 2013, 22(6): 1020-1024
Zhao H X, Tao Y, Hu B G, et al. Pollution characteristics of total gaseous mercury in the typical energy-saving lamps industry cluster district of western Zhejiang Province [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2013, 22(6): 1020-1024 (in Chinese)
- [24] Rea A W, Lindberg S E, Scherbatskoy T, et al. Mercury accumulation in foliage over time in two northern mixed-hardwood forests [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2002, 133(1): 49-67
- [25] Wang X, Bao Z D, Lin C J, et al. Assessment of global mercury deposition through litterfall [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(16): 8548-8557
- [26] 郑伟, 冯新斌, 李广辉, 等. 硝酸水浴消解-冷原子荧光光谱法测定植物中的总汞[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2006, 25(3): 285-287
Zheng W, Feng X B, Li G H, et al. Determination of total mercury in plants by HNO₃ digestion in the water bath coupled with cold vapor atomic fluorescence spectrometry [J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2006, 25(3): 285-287 (in Chinese)
- [27] 李仲根, 冯新斌, 何天容, 等. 王水水浴消解-冷原子荧光法测定土壤和沉积物中的总汞[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2005, 24(2): 140-143
Li Z G, Feng X B, He T R, et al. Determination of total mercury in soil and sediment by aquaregia digestion in the water bath coupled with cold vapor atom fluorescence spectrometry [J]. *Bulletin of Mineralogy Petrology and Geochemistry*, 2005, 24(2): 140-143 (in Chinese)
- [28] 安思危. 西南典型亚热带森林系统凋落物中汞的动态变化特征[D]. 重庆: 西南大学, 2017: 17-19
An S W. Dynamic change characteristics of mercury in litter of typical subtropical forest system in Southwest China [D]. Chongqing: Southwest University, 2017: 17-19 (in Chinese)
- [29] 杨光, 孙涛, 安思危, 等. 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[J]. *生态学报*, 2019, 39(6): 2101-2108
Yang G, Sun T, An S W, et al. The migration and fate of mercury during litter decomposition in a subtropical evergreen broad-leaf forest [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2019, 39(6): 2101-2108 (in Chinese)
- [30] St Louis V L, Graydon J A, Lehnerr I, et al. Atmospheric concentrations and wet/dry loadings of mercury at the remote experimental lakes area, northwestern Ontario, Canada [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(14): 8017-8026
- [31] 徐恩恩, 郭颖, 陈尔学, 等. 基于无人机 LiDAR 和高空间分辨率卫星遥感数据的区域森林郁闭度估测模型[J]. *武汉大学学报(信息科学版)*, 2022, 47(8): 1298-1308
Xu E E, Guo Y, Chen E X, et al. An estimation model for regional forest canopy closure combined with UAV LiDAR and high spatial resolution satellite remote sensing data [J]. *Geomatics and Information Science of Wuhan University*, 2022, 47(8): 1298-1308 (in Chinese)
- [32] Wang X, Yuan W, Lin C J, et al. Climate and vegetation as primary drivers for global mercury storage in surface soil [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(18): 10665-10675
- [33] Zeng S F, Wang X, Yuan W, et al. Mercury accumulation

- and dynamics in montane forests along an elevation gradient in Southwest China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2022, 10(9): 1-10
- [34] Yuan W, Sommar J, Lin C J, et al. Stable isotope evidence shows re-emission of elemental mercury vapor occurring after reductive loss from foliage [J]. *Environmental Science & Technology*, 2019, 53(2): 651-660
- [35] 杜宝玉. 森林土壤汞排放通量的现场测试[D]. 北京: 清华大学, 2014: 8-10
- Du B Y. Field measurement of soil mercury emission flux in forest [D]. Beijing: Tsinghua University, 2014: 8-10 (in Chinese)
- [36] Gao X, Zheng W, Liu Y, et al. Tracing the source and transport of Hg during pedogenesis in strongly weathered tropical soil using Hg isotopes [C]// European Association of Geochemistry. Goldschmidt Conference Abstracts. Lyon, France: European Association of Geochemistry, 2023, 361: 101-112
- [37] 田珮. 城市典型工业区绿地汞污染研究[D]. 上海: 华东师范大学, 2017: 8
- Tian P. Study on mercury pollution in green space of urban typical industrial areas [D]. Shanghai: East China Normal University, 2017: 8 (in Chinese)
- [38] 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: 2-4
- He X. Variation characteristics of total mercury and methylmercury in soil (sediment) in water-level-fluctuating zone of the Three Gorges Reservoir Region [D]. Chongqing: Southwest University, 2013: 2-4 (in Chinese)
- [39] 王训, 袁巍, 冯新斌. 森林生态系统汞的生物地球化学过程[J]. *化学进展*, 2017, 29(9): 970-980
- Wang X, Yuan W, Feng X B. Global review of mercury biogeochemical processes in forest ecosystems [J]. *Progress in Chemistry*, 2017, 29(9): 970-980 (in Chinese)
- [40] 张孟孟. 溶解性有机质对土壤吸附汞的影响及其机理的研究[D]. 济南: 山东大学, 2011: 10-12
- Zhang M M. Research on the effect and mechanism of dissolved organic matter on the adsorption of Hg^{2+} by soils [D]. Jinan: Shandong University, 2011: 10-12 (in Chinese)
- [41] Miretzky P, Bisinoti M C, Jardim W F, et al. Factors affecting Hg (II) adsorption in soils from the Rio Negro basin (Amazon) [J]. *Química Nova*, 2005, 28(3): 438-443
- [42] Wang Z W, Zhang X S, Xiao J S, et al. Mercury fluxes and pools in three subtropical forested catchments, southwest China [J]. *Environmental Pollution*, 2009, 157(3): 801-808
- [43] Fu X W, Yang X, Lang X F, et al. Atmospheric wet and litterfall mercury deposition at urban and rural sites in China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, 16(18): 11547-11562
- [44] 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
- [45] Zhou J, Feng X B, Liu H Y, et al. Examination of total mercury inputs by precipitation and litterfall in a remote upland forest of Southwestern China [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 81: 364-372
- [46] Zhou J, Wang Z W, Zhang X S. Deposition and fate of mercury in litterfall, litter, and soil in coniferous and broad-leaved forests [J]. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 2018, 123(8): 2590-2603
- [47] Fu X W, Feng X, Dong Z Q, et al. Atmospheric gaseous elemental mercury (GEM) concentrations and mercury depositions at a high-altitude mountain peak in South China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, 10(5): 2425-2437
- [48] Larssen T, de Wit H A, Wiker M, et al. Mercury budget of a small forested boreal catchment in southeast Norway [J]. *The Science of the Total Environment*, 2008, 404(2/3): 290-296
- [49] Schwesig D, Matzner E. Dynamics of mercury and methylmercury in forest floor and runoff of a forested watershed in Central Europe [J]. *Biogeochemistry*, 2001, 53(2): 181-200