

# 贵州万山汞矿区稻田土壤汞的分布及污染特征

高令健<sup>1,2</sup>, 毛康<sup>1</sup>, 张伟<sup>1,2</sup>, 崔子康<sup>1,2</sup>, 陆本琦<sup>1,2</sup>, 黄国培<sup>1</sup>,  
张军方<sup>3</sup>, 冯新斌<sup>1</sup>, 张华<sup>1</sup>, 商立海<sup>1\*</sup>

1. 中国科学院 地球化学研究所, 环境地球化学国家重点实验室, 贵阳 550081;  
2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 贵州省环境科学研究设计院, 贵阳 550081

**摘要:** 受历史汞矿开采活动影响, 万山汞矿区稻田遭受了严重的汞污染。为了查明万山汞矿区稻田土壤的汞污染现状以及评估其环境质量改善情况, 系统采集了受汞矿区影响的五条主干河流沿岸稻田土壤进行汞含量分析, 评价总汞和甲基汞污染程度及其生态风险, 并与 2008 年以来该区域稻田土壤汞数据进行对比。结果表明, 研究区稻田土壤的总汞含量为 0.21~207 mg/kg, 几何平均值为 (4.26±4.83) mg/kg; 甲基汞含量为 0.42~13 μg/kg, 几何平均值为 (1.81±1.93) μg/kg。59% 的稻田土壤处于重度汞污染, 75% 的稻田土壤存在极强的汞潜在生态风险。与已往数据相比, 稻田土壤汞含量在 2012 年后呈下降趋势, 基本反映了当地汞防治措施的执行效果。为了避免稻田土壤汞污染引起的安全健康风险, 今后应采取除污染源治理以外的土壤修复措施或风险管控措施。

**关键词:** 汞矿区; 稻田土壤; 总汞; 甲基汞; 污染风险评价

中图分类号: P595 文章编号: 1007-2802(2021)01-0148-07 doi: 10.19658/j.issn.1007-2802.2020.39.087

## Temporal and Spatial Distribution and Pollution Characteristics of Mercury in Paddy Soils of the Wanshan Mercury Mining Area, Guizhou Province

GAO Ling-jian<sup>1,2</sup>, MAO Kang<sup>1</sup>, ZHANG Wei<sup>1,2</sup>, CUI Zi-kang<sup>1,2</sup>, LU Ben-qi<sup>1,2</sup>, HUANG Guo-pe<sup>1</sup>,  
ZHANG Jun-fang<sup>3</sup>, FENG Xin-bin<sup>1</sup>, ZHANG Hua<sup>1</sup>, SHANG Li-hai<sup>1\*</sup>

1. State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550081, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. Guizhou Institute of Environmental Scientific Research and Design, Guiyang 550081, China

**Abstract:** Due to influences of historical mercury mining and other activities, paddy fields in the Wanshan mercury mining area had been seriously polluted by mercury. To understand the present mercury pollution situation of paddy fields and to evaluate the environmental quality improvement of paddy soils in the Wanshan mercury mining area, we systematically collected paddy soil samples along five main rivers of the area, analyzed their pollution degrees of total mercury and methylmercury, evaluated their ecological risks, and then compared with corresponding data of 2008. The results showed that the total mercury contents of paddy soils in the area ranged from 0.21 to 207 mg/kg, with a geometric mean of (4.26 ± 4.83) mg/kg and the methylmercury contents ranged from 0.42 to 13 μg/kg, with a geometric mean of (1.81 ± 1.93) μg/kg, and that 59% of paddy soil samples were heavily polluted by mercury and 75% of paddy soil samples had the strong potential ecological risk of mercury. Compared with previous data, it was found that mercury contents in paddy soils showed a downward trend after 2012, reflecting the implementation effect of the local mercury source control. To avoid safety and health risks of the mercury pollution in paddy soils, besides the pollution source control, the remediation and risk control of paddy soils should be taken in the future.

**Key words:** mercury mining area; paddy soil; total mercury; methyl mercury; pollution risk assessment

收稿编号: 2020-108, 2020-07-09 收到, 2020-07-20 改回

基金项目: 国家自然科学基金项目(41931297, U1612442, 41877405); 贵州省社发攻关项目(黔科合[2016]支撑 2804 号)

第一作者简介: 高令健(1994-), 男, 硕士研究生, 研究方向: 环境地球化学。E-mail: gaolingjian@mail.gyig.ac.cn.

\* 通信作者简介: 商立海(1979-), 男, 博士, 研究员, 研究方向: 环境地球化学。E-mail: shanglihai@vip.skleg.cn.

## 0 引言

汞(Hg)是一种全球性污染物,具有长距离传输性、生物富集性及毒性等特点(冯新斌等, 2013)。汞具有多种形态,其中甲基汞的毒性强于无机汞,无机汞也可在微生物作用下转化为甲基汞。甲基汞的摄入可对人体的神经系统、肾脏系统、免疫系统以及生殖系统等产生影响(Du et al., 2016)。食用水产品是大多数人群产生甲基汞暴露的主要途径,而在汞矿区等汞污染严重地区,人群食用大米摄入量占甲基汞摄入量的90%以上(Zhang et al., 2010a)。进一步研究发现,大米中的汞主要来自稻田土壤(Meng et al., 2011; Yin et al., 2013; Li et al., 2017)。稻田是一种季节性人工湿地,由于其厌氧环境及微生物活性更利于甲基汞的产生(孟博等, 2020),因而稻田土壤的汞污染现状更能反映区域的汞污染及其治理效果。

贵州万山汞矿是世界上第三大汞矿,2001年停产、闭坑,但历史上的开采冶炼活动对当地造成了严重的汞污染,如土壤中汞含量可高达790 mg/kg(Qiu et al., 2005),水体汞含量可达12 000 ng/L(Zhang et al., 2010c),周围大气汞超过1 000 ng/m<sup>3</sup>(Wang et al., 2007)。自2007年以来,贵州铜仁及万山对辖区内的汞污染源进行了多方面治理,包括修筑拦渣坝、对残留尾矿渣进行固化处理、修建沉淀池、实施尾矿库闭库封盖、捣毁炼汞土炉灶、整治涉汞企业等(罗泽亭和田刚, 2007; 环境保护部固体废物与化学品管理技术中心, 2016)。尤其是《贵州省铜仁市重金属污染防治“十二五”规划》及《关于汞的水俣公约》签署后,当地的治理都有所加强。已有研究表明,污染源的治理对大气环境有了明显改善,如2017年尾矿库大气汞(13.5~309 ng/m<sup>3</sup>)比2004年(17~1 101.8 ng/m<sup>3</sup>)明显降低(Wang et al., 2007; Yan et al., 2019)。然而,目前还缺乏对汞污染源治理后万山汞矿区稻田土壤中汞污染程度的系统研究与评估。

本研究以万山稻田土壤为研究对象,旨在查明其汞污染现状及生态风险,并与以往稻田土壤汞数据对比以分析土壤汞对汞污染治理的响应。

## 1 研究区概况与研究方法

### 1.1 研究区概况

贵州省万山汞矿隶属铜仁市,曾是国内最大的汞工业基地,有630多年的开采冶炼历史。多年的

汞矿开采与冶炼在万山遗留了大量矿坑及矿渣堆,如田坝汞矿坑、二坑、四坑、五坑、十八坑等。当地为典型的喀斯特地形地貌,可用耕地少,稻田主要沿河分布。本研究选择河流沿岸稻田,自上游向下游采样,研究区域包含铜仁市万山区及部分碧江区。自万山镇中心向四周主要发育5条河流,西南部的高楼坪河、东南部的黄道河、西北部的垢溪河、东北部的敖寨河和下溪河,其中敖寨河与下溪河汇合后又称为瓦屋河。5条河流均为山区雨源型河流,由降水补给。

### 1.2 样品采集与预处理

2019年9月,我们沿垢溪河、敖寨河、下溪河、高楼坪河及黄道河对沿岸稻田土壤进行调查与样品采集。采样点位置及相关信息见图1。如图1所示,各河流上游均有矿坑及矿渣堆分布,其中,田坝汞矿坑位于垢溪河源头,十八坑位于敖寨河源头,五坑位于下溪河源头,四坑位于高楼坪河源头,二坑位于黄道河源头。

稻田土壤样品的采集方法严格按照4分法则。每个样品从5 m×5 m正方形的4个顶点和中心点各5处采集约1 kg的表层土壤,均匀混合后用4分法选取约1 kg土壤作为该点的混合样品。采集的土壤样品带回实验室后,放置于洁净的空间内自然风干,待风干后摒弃土壤中的杂草和石子。将土壤样品混匀后研磨过200目孔径的尼龙筛,最后装入自封袋待测。

### 1.3 样品测试分析

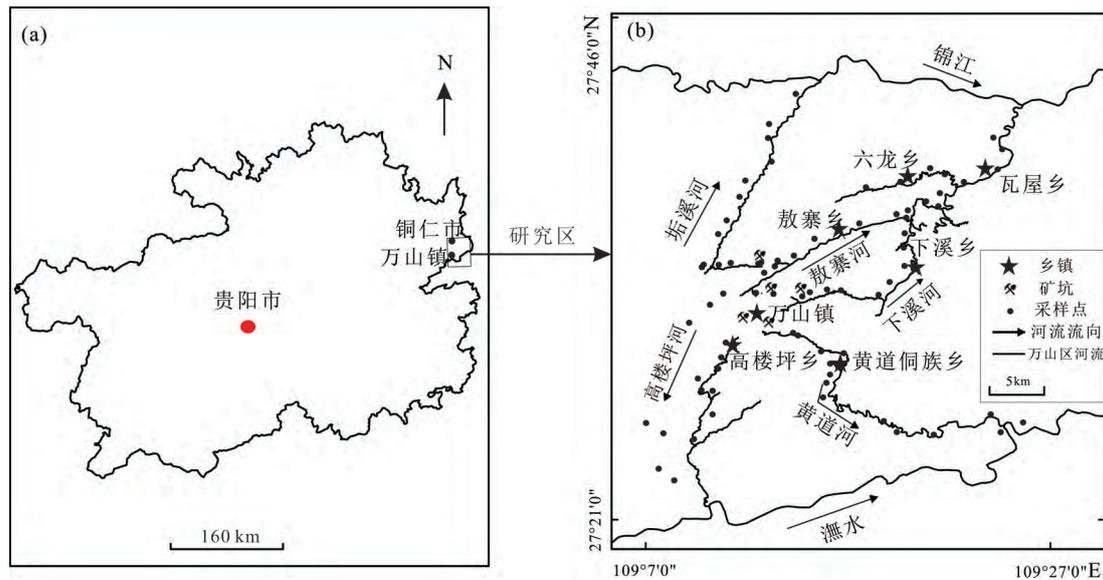
稻田土壤总汞测定方法:准确称取0.100 0 g样品加入5 mL王水摇匀,置于95 ℃的水浴锅进行王水-水浴消解,待消解完全后使用冷原子吸收测汞仪(CVAAS)和冷原子荧光仪(CVAFS)测定总汞含量(李仲根等, 2005)。

稻田土壤甲基汞测定方法:准确称取0.100 0 g土壤样品加入硝酸和硫酸铜溶液浸提,用二氯甲烷振荡萃取,再加入四乙基硼化钠进行乙基化,最后利用气相色谱-冷原子荧光仪联用的方法(GC-CVAFS)测定甲基汞含量(何天容等, 2004)。

实验过程中插入平行样、空白和标准物质以保证并控制数据质量。总汞测定以GBW07405(GSS-5)为标准物质,其参考值为(0.29±0.04) mg/kg,实测值为(0.29±0.01) mg/kg。土壤甲基汞以ERM-CC580为标准物质,其参考值为(75±4) μg/kg,测定值为(73±4.7) μg/kg。

### 1.4 汞评价指数的计算方法

地质累积指数法(index of geoaccumulation,



底图据国家基础地理信息系统

图1 研究区与采样点位置分布图

Fig.1 Study area and distribution of sampling points

$I_{geo}$ )是一种广泛用于研究土壤和沉积物中重金属污染程度的定量指标,其计算公式如下:

$$I_{geo} = \log_2 [C / (K \times B)]$$

式中, $C$ 为稻田土壤中总汞含量; $B$ 为土壤汞的自然背景值,为0.16 mg/kg(夏增禄,1987); $K$ 为考虑当地背景值的变动而取的系数,一般为1.5。按 $I_{geo}$ 数值可将汞污染程度划分为7个等级: $I_{geo} \leq 0$ ,为无污染; $0 < I_{geo} \leq 1$ ,为轻度污染; $1 < I_{geo} \leq 2$ ,为偏中度污染; $2 < I_{geo} \leq 3$ ,为中度污染; $3 < I_{geo} \leq 4$ ,为偏重污染; $4 < I_{geo} \leq 5$ ,为重污染; $I_{geo} > 5$ ,为严重污染(Förstner et al., 1993)。

潜在生态危害指数法(ecological risk index,  $E_r$ )是综合考虑了重金属的生态效应与环境效应,可反映土壤中重金属的潜在生态风险,计算公式为:

$$C_f = C/C_n$$

$$E_r = T_r \times C_f$$

式中, $C_f$ 为汞污染参数; $C_n$ 为参比值为0.16 mg/kg; $E_r$ 为汞的潜在生态风险指数; $T_r$ 为毒性系数,汞的毒性系数为40。按 $E_r$ 数值可将汞的潜在生态危害分为五级: $E_r < 40$ ,为轻微潜在生态危害; $40 \leq E_r < 80$ ,为中等潜在生态危害; $80 \leq E_r < 160$ ,为偏强潜在生态危害; $160 \leq E_r < 320$ ,为强潜在生态危害; $E_r \geq 320$ ,为极强潜在生态危害(Hakanson, 1980)。

### 1.5 数据处理

本研究分析所用历年稻田土壤汞的相关数据均来源于前人工作(张华,2010;尹德良等,2014;李瑞阳等,2016;朱宗强,2018)。本研究采用

SPSS18.0分析数据,利用Origin2018作图,其他数据处理则用Excel2013。测定数据的分布利用描述性统计进行研究,由于测定数据符合对数正态分布,因此利用几何平均值描述数据整体。

## 2 分析测试结果

### 2.1 稻田土壤中的总汞

由表1可知,研究区稻田土壤总汞含量为0.31~207 mg/kg,超过贵州土壤汞背景值(0.16 mg/kg),其中67%采样点的总汞含量超过我国稻田土壤汞最高限定值(1.5 mg/kg)(GB 15618-1995)。41%采样点的总汞含量超过稻田土壤汞最高风险管制值(6 mg/kg),原则上应当采取禁止种植农作物、进行土壤修复等严格管控措施(GB 15618-2018)。

不同河流沿岸稻田土壤的总汞含量呈现较大变化,整体上表现为下溪河沿岸最高,黄道河沿岸最低(表1)。其中,下溪河沿岸60%的稻田土壤中总汞含量超过了最高风险管制值,而垢溪河、敖寨河和高楼坪河沿岸分别有53%、50%和33.3%。黄道河沿岸稻田土壤的总汞含量整体偏低,除了个别采样点汞含量较高外,基本低于最高风险管制值。除敖寨河外,各河流上游至下游沿岸稻田土壤的总汞含量变化呈下降趋势,汞含量高的稻田土壤主要位于各河流上游沿岸(图2)。敖寨河上游至下游沿岸的稻田土壤总汞含量变化相对平缓,而且在下游区域的稻田土壤具有较高的总汞含量。

表 1 不同河流沿岸稻田土壤的总汞及甲基汞含量

Table 1 Concentrations of total mercury and methylmercury in paddy soils along different rivers

采样区域	样本数 /个	总汞含量/(mg/kg)				甲基汞含量/(μg/kg)			
		几何均值	标准差	最小值	最大值	几何均值	标准差	最小值	最大值
垢溪河沿岸	15	4.39	4.72	0.32	36	1.87	1.7	0.60	4.4
敖寨河沿岸	22	6.10	3.26	0.63	36	1.95	1.74	0.71	6.1
下溪河沿岸	10	9.56	5.05	0.95	207	1.52	1.34	1.16	2.9
高楼坪河沿岸	12	3.17	4.43	0.34	55	2.31	2.39	0.90	13
黄道河沿岸	14	1.69	6.45	0.31	140	1.43	2.39	0.42	8.6

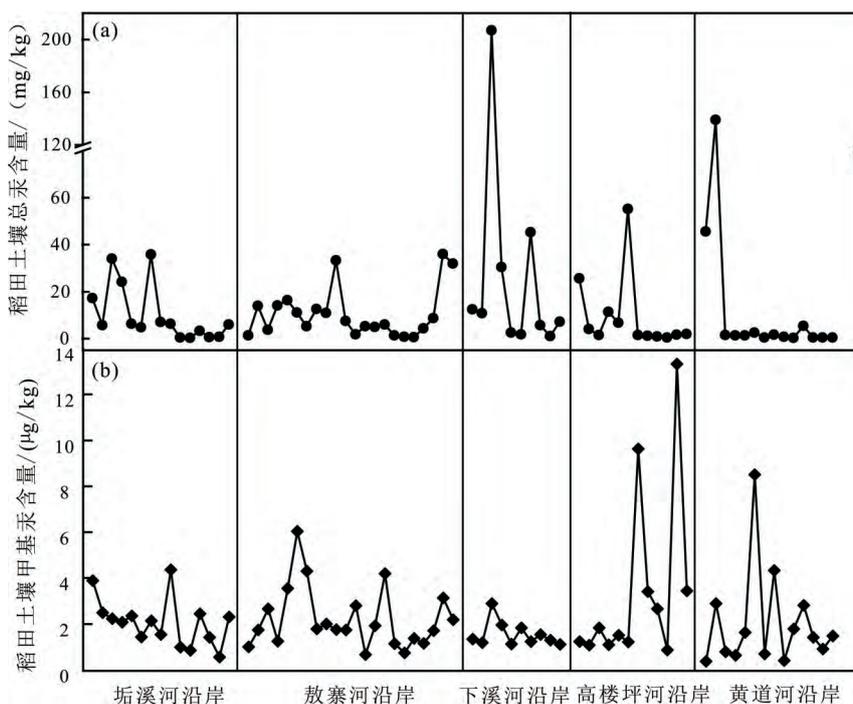


图 2 从左至右为各河流上游至下游的稻田土壤总汞(a)和甲基汞(b)含量变化

Fig.2 Content variations of total mercury (a) and methyl mercury (b) in paddy soils along rivers (from left to right represents from upstream to downstream)

### 2.2 稻田土壤中的甲基汞

如表 1 所示, 研究区稻田土壤甲基汞含量为 0.42~13 μg/kg。甲基汞占总汞的比例为 0.001%~0.870%, 超过 70% 的采样点甲基汞占总汞的比例低于 0.1%。与贵州贵阳花溪背景区稻田土壤甲基汞 0.10~0.28 μg/kg 对比 (Meng et al., 2010) 可见, 所有采样区域内稻田土壤中的甲基汞含量均超过参照标准, 表明研究区稻田土壤甲基汞含量处于较高的水平。

整体上, 研究区各河流沿岸的稻田土壤甲基汞含量表现为高楼坪河沿岸>敖寨河沿岸>垢溪河沿岸>下溪河沿岸>黄道河沿岸 (表 1)。如图 2b 所示, 各河流上游至下游的稻田土壤甲基汞含量分布, 下溪河沿岸稻田土壤甲基汞含量从上游至下游呈现下降趋势, 而其余各河流沿岸并未发现甲基汞含量呈规律性变化。

## 3 讨论

### 3.1 稻田土壤汞含量的时间变化趋势

如图 3 所示, 按样品采集时间, 将万山地区已发表的稻田土壤汞数据分别记为 2008、2012、2015、2017 等 (张华, 2010; 尹德良等, 2014; 李瑞阳等, 2016; 朱宗强, 2018), 与本研究结果 (记为 2019) 一起作图。除敖寨河流域外, 其余土壤汞含量表现为沿河岸上游高于下游, 在距离尾矿库 8 km 处呈现明显的下降趋势, 该规律与前人研究结果相似。前人研究发现矿区尾矿库对灌溉河水的影响范围也为 8 km 左右 (Zhang et al., 2010b, 2010c), 表明稻田土壤中汞含量与灌溉水中的汞含量存在一致性的分布规律。敖寨河流域稻田土壤汞在中下游表现出较高的总汞含量, 而原因尚不明确, 可能开矿活动较复杂或有其它涉汞企业活动等。然而, 由于

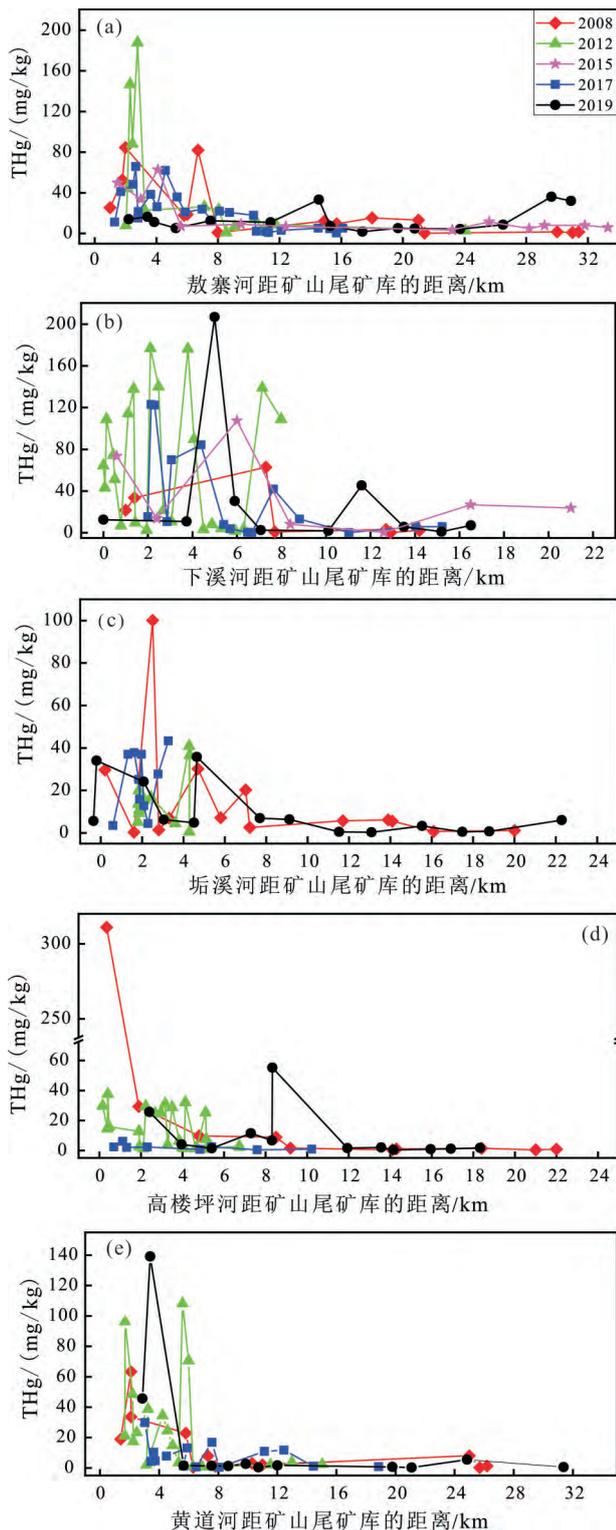


图3 汞污染源治理前后各河流沿岸稻田土壤总汞含量分布  
Fig.3 Distributions of Hg contents in paddy soils along rivers before and after mercury pollution source controls

受远离矿区尾矿库的距离、采样点的空间分布差异、土地利用类型更换等因素的影响,万山汞矿区在污染源治理前后各河流沿岸稻田土壤的汞含量呈现波动变化。为了尽可能降低上述因素的干扰,

本研究距离矿区尾矿库 8 km 的范围为界限,将研究区分为高影响区和低影响区,进一步分析汞污染源治理前后历年稻田土壤汞含量的变化。

对高影响区不同年代稻田土壤总汞进行非参数中位数统计检验,结果表明 2012 年与 2017 年稻田土壤汞含量存在显著性差异 ( $P=0.05$ ),但 2008 年与 2012 年、2017 年与 2019 年的稻田土壤汞含量不存在显著性差异。低影响区数据对比结果,也发现相似的规律。此外,2008 年高影响区稻田土壤的汞含量几何平均值为 12.3 mg/kg,2019 年的汞含量几何平均值为 9 mg/kg,整体上呈现一定的下降趋势,如图 4a 所示。在低影响区,2008 年稻田土壤汞含量的几何平均值为 2.86 mg/kg,2019 年稻田土壤汞含量的几何平均值为 2.21 mg/kg,整体上也略有下降趋势,如图 4b 所示。

以上结果表明,自 2012 至 2017 年,稻田土壤汞含量出现明显降低趋势,一方面可能与《贵州省铜仁市重金属污染防治“十二五”规划》和《铜仁市土壤污染综合防治示范区建设方案》实施相关;另一方面,当地汞污染防治力度不断加大,如 2015 年,查处多处土法炼汞点,较 2014 年减少明显(陈玉祥和李中迪, 2014; 环境保护部固体废物与化学品管理技术中心, 2016)。此外,外源不再输入后,土壤淋溶、向大气排放及种植过程也可能促进了土壤的自我修复。因此,以上对比结果基本反映了当地进行汞污染源治理的成效。

### 3.2 稻田土壤甲基汞变化

除下溪河外,本研究土壤的甲基汞含量与到源头(矿坑)距离无显著相关性。而尹德良(2014)等基于稻田土壤甲基汞与距离的相关关系认为灌溉水在对甲基汞的分布起重要的作用。整体而言,当前灌溉水的作用可能是微弱的。

土法炼汞活动活跃的垢溪河沿岸稻田土壤甲基汞的均值自 2012 年 3.98  $\mu\text{g}/\text{kg}$  下降到 2019 年 2.1  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。除垢溪河以外,高影响区稻田土壤甲基汞几何平均值从 2.68  $\mu\text{g}/\text{kg}$  下降到 1.60  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。整体上看万山汞矿区稻田土壤甲基汞含量有所下降。稻田土壤中甲基汞主要来自无机汞的甲基化过程,而土壤中“新汞”是影响汞甲基化的重要因素(Zhao et al., 2016a, 2016b)。因此,结合土壤总汞的变化,可以推断汞污染治理举措的实施减少大气向土壤沉降“新汞”的量,进而减少了甲基汞的累积转化。

目前万山汞矿区稻田土壤甲基汞数据主要集中

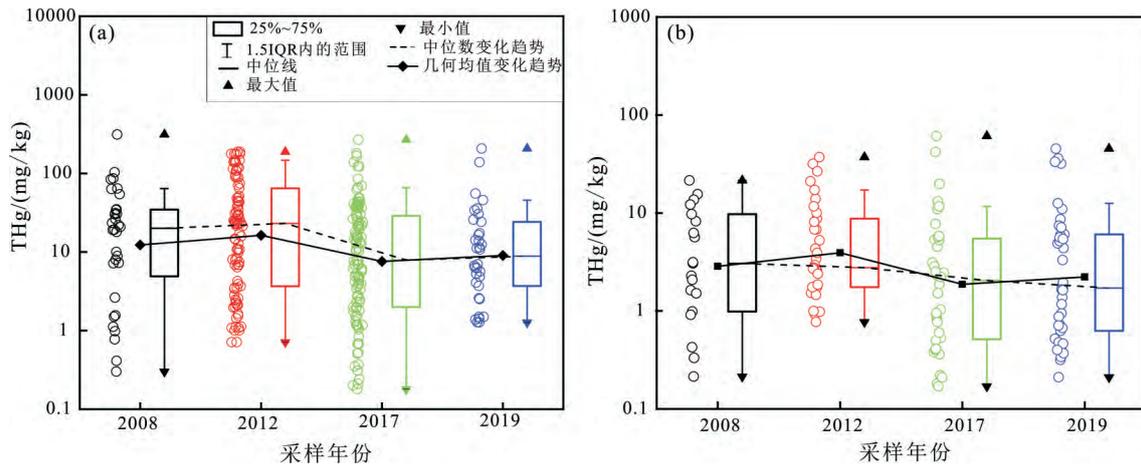


图 4 不同时期汞高影响区(a)、低影响区(b)稻田土壤总汞含量变化

Fig.4 Variations of soil mercury contents in heavy mercury polluted area (a) and light mercury polluted area (b) in different periods

在水稻成熟期。前人的研究结果表明,稻田土壤中的甲基汞含量与水稻的不同生长期、生长区域有关(Zhao et al., 2016a)。由于水稻成熟期一般放水晒田,土壤的微环境与淹水时期明显不同,因此采样季节不同可能会得到稻田土壤甲基汞的数据不同。

#### 4 稻田土壤汞污染评价

整体上看,研究区稻田土壤汞的地质累积指数为0.5~9.8(表2),反映有不同程度的汞污染,且64%的稻田土壤汞污染程度处于偏重度以上。其中,36%的稻田土壤处于汞严重污染;23%处于重污染;5%处于偏重污染;16%处于中度污染;12%处于偏中度污染;8%处于轻度污染。北部的下溪河沿岸稻田土壤基本都属于汞的重度污染区,垢溪河沿岸则距汞污染源约9.5 km 范围内为汞的重度污染区。敖寨河沿岸稻田土壤的汞污染程度较为严重,距汞污染源约14 km 范围内为汞的重污染区,同时在下游瓦屋乡一带的稻田土壤

也处于汞的重污染状态。研究区南部的高楼坪河沿岸稻田距汞污染源约7 km 范围内均为汞的重度污染区;黄道河沿岸约4 km 范围内为汞的重度污染区,污染区范围相对较窄。如表2所示,黄道河沿岸污染程度较轻,仅28%的点位处于偏中度及以上的汞污染,而其余河流沿岸大部分处于偏中度及以上的汞污染。

研究区稻田土壤汞的潜在生态危害指数为52~52 000(表2),75%的稻田土壤存在极强的汞潜在生态危害,11%存在强潜在生态危害,11%存在偏强潜在生态危害,3%存在中等潜在生态危害。以上结果表明,随着时间的推移,研究区稻田土壤仍存在较强的汞潜在生态风险。整体上,下溪河沿岸、敖寨河沿岸和垢溪河沿岸的汞潜在生态危害高于高楼坪河沿岸及黄道河沿岸。黄道河沿岸稻田土壤汞的潜在生态危害相对较低,仅有50%的稻田土壤处于极强汞潜在危害,而其他河流沿岸均超过50%处于极强汞潜在生态危害。

表2 不同河流沿岸稻田土壤汞地质累积指数( $I_{geo}$ )与潜在生态危害指数( $E_r$ )

Table 2 Geoaccumulation index ( $I_{geo}$ ) and potential ecological risk index ( $E_r$ ) of soil mercury in paddy fields along different rivers

采样区域	样本数 /个	$I_{geo}$				$E_r$			
		几何平均值	标准差	最小值	最大值	几何平均值	标准差	最小值	最大值
垢溪河沿岸	15	4.3	2.2	0.5	7.3	2 500	2 900	79	8 900
敖寨河沿岸	22	4.8	1.7	1.5	7.3	2 600	12 500	160	9 000
下溪河沿岸	10	5.4	2.3	2.1	9.8	8 000	15 700	240	52 000
高楼坪河沿岸	12	3.8	2.1	0.6	7.9	2 300	4 000	84	14 000
黄道河沿岸	14	3.6	2.9	0.1	9.3	4 900	11 000	52	35 000

## 5 结论

高影响区稻田土壤总汞含量总体呈下降趋势,其中2012~2017年间下降较明显,基本反映了这段时间内当地汞污染防治的效果。高影响区及土法炼汞区土壤甲基汞含量也呈下降趋势,可能与总汞的降低有关,但也可能是由于稻田微环境差异造成。

万山汞矿区当前有59%的稻田土壤处于重度及以上的汞污染,75%的稻田土壤存在极强的汞潜在生态风险,表明汞污染情况依然比较严重。为了避免稻田土壤汞污染引起的安全健康风险,未来应继续采取严厉污染源控制措施,另外农田区域土壤可采取修复措施或风险管控措施。

### 参考文献 (References):

- Du B Y, Li P, Feng X B, Qiu G L, Zhou J, Maurice L. 2016. Mercury exposure in children of the Wanshan Mercury Mining Area, Guizhou, China. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 13(11): 1107-1123
- Förstner U, Ahlf W, Calmano W. 1993. Sediment quality objectives and criteria development in Germany. *Water Science and Technology*, 28(8-9): 307-316
- Hakanson L. 1980. An ecological risk index for aquatic pollution control. A sedimentological approach. *Water Research*, 14(8): 975-1001
- Li P, Du B Y, Maurice L, Laffont L, Lagane C, Point D, Sonke J E, Yin R S, Lin C J, Feng X B. 2017. Mercury isotope signatures of methylmercury in rice samples from the Wanshan Mercury Mining Area, China: Environmental implications. *Environmental Science & Technology*, 51(21): 12321-12328
- Meng B, Feng X B, Qiu G L, Cai Y, Wang D Y, Li P, Shang L H, Sommar J. 2010. Distribution patterns of inorganic mercury and methylmercury in tissues of rice (*Oryza sativa* L.) plants and possible bioaccumulation pathways. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 58(8): 4951-4958
- Meng B, Feng X B, Qiu G L, Liang P, Li P, Chen C X, Shang L H. 2011. The process of methylmercury accumulation in rice (*Oryza sativa* L.). *Environmental Science & Technology*, 45(7): 2711-2717
- Qiu G L, Feng X B, Wang S F, Shang L H. 2005. Mercury and methylmercury in riparian soil, sediments, mine-waste calcines, and moss from abandoned Hg mines in east Guizhou province, southwestern China. *Applied Geochemistry*, 20(3): 627-638
- Wang S F, Feng X B, Qiu G L, Fu X W, Wei Z Q. 2007. Characteristics of mercury exchange flux between soil and air in the heavily air-polluted area, eastern Guizhou, China. *Atmospheric Environment*, 41(27): 5584-5594
- Yan J Y, Wang C, Wang Z H, Yang S C, Li P. 2019. Mercury concentration and speciation in mine wastes in Tongren mercury mining area, southwest China and environmental effects. *Applied Geochemistry*, 106: 112-119
- Yin R S, Feng X B, Meng B. 2013. Stable mercury isotope variation in rice plants (*Oryza sativa* L.) from the Wanshan mercury mining district, SW China. *Environmental Science & Technology*, 47(5): 2238-2245
- Zhang H, Feng X B, Larssen T, Shang L H, Li P. 2010a. Bioaccumulation of Methylmercury versus Inorganic Mercury in Rice (*Oryza sativa* L.) Grain. *Environmental Science & Technology*, 44(12): 4499-4504
- Zhang H, Feng X B, Larssen T, Shang L H, Vogt R D, Lin Y, Li P, Zhang H. 2010b. Fractionation, distribution and transport of mercury in rivers and tributaries around Wanshan Hg mining district, Guizhou Province, Southwestern China: Part 2-Methylmercury. *Applied Geochemistry*, 25(5): 642-649
- Zhang H, Feng X B, Larssen T, Shang L H, Vogt R D, Rothenberg S E, Li P, Zhang H, Lin Y. 2010c. Fractionation, distribution and transport of mercury in rivers and tributaries around Wanshan Hg mining district, Guizhou province, southwestern China: Part 1-Total mercury. *Applied Geochemistry*, 25(5): 633-641
- Zhao L, Anderson C W N, Qiu G L, Meng B, Wang D Y, Feng X B. 2016a. Mercury methylation in paddy soil: Source and distribution of mercury species at a Hg mining area, Guizhou Province, China. *Biogeosciences*, 13(8): 2429-2440
- Zhao L, Qiu G L, Anderson C W N, Meng B, Wang D Y, Shang L H, Yan H Y, Feng X B. 2016b. Mercury methylation in rice paddies and its possible controlling factors in the Hg mining area, Guizhou province, Southwest China. *Environmental Pollution*, 215: 1-9
- 陈玉祥, 李中迪. 2014-04-12. “中国汞都”铜仁市万山区: 大力修复生态环境. *贵州日报*
- 冯新斌, 陈玖斌, 付学吾, 胡海燕, 李平, 仇广乐, 闫海鱼, 尹润生, 张华, 朱伟. 2013. 汞的环境地球化学研究进展. *矿物岩石地球化学通报*, 32(5): 503-530
- 何天容, 冯新斌, 戴前进, 仇广乐, 商立海, 蒋红梅, Liang L. 2004. 萃取-乙基化结合 GC-CVAFS 法测定沉积物及土壤中的甲基汞. *地球与环境*, 32(2): 83-86
- 环境保护部固体废物与化学品管理技术中心. 2016. 铜仁市汞污染治理专项规划(2016-2020). 铜仁市
- 李瑞阳, 徐晓航, 许志东, 敖明, 商立海, 仇广乐, 汤顺林. 2016. 贵州某典型汞矿区流域水稻中总汞和甲基汞含量及暴露风险. *环境科学研究*, 29(12): 1829-1839
- 李仲根, 冯新斌, 何天容, 闫海鱼, Liang L. 2005. 王水水浴消解-冷原子荧光法测定土壤和沉积物中的总汞. *矿物岩石地球化学通报*, 24(2): 140-143
- 罗泽亭, 田刚. 2007-12-11. 万山彻底治理汞污染. *铜仁日报*
- 孟博, 胡海燕, 李平, 冯新斌. 2020. 稻田生态系统汞的形态转化及同位素分馏. *矿物岩石地球化学通报*, 39(1): 12-23
- 夏增禄, 李森照, 李廷芳. 1987. 土壤元素背景值及其研究方法. 北京: 气象出版社
- 尹德良, 何天容, 安艳玲, 罗光俊, 阳许, 陈筠. 2014. 万山稻米汞含量分布特征及影响因素研究. *农业环境科学学报*, 33(6): 1082-1088
- 张华. 2010. 汞矿区陆地生态系统汞对汞的生物地球化学循环影响与制约. 博士学位论文. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所
- 朱宗强. 2018. 喀斯特地区汞污染土壤生物有效态分析方法及修复技术研究. 硕士学位论文. 北京: 中国科学院大学

(本文责任编辑:刘莹;英文审校:肖保华)