

DOI: 10.7524/j.issn.0254-6108.2018092501

张定熙, 孙涛, 王永敏, 等. 不同长度秸秆还田对土壤汞甲基化与水稻植株甲基汞富集的影响[J]. 环境化学, 2019, 38(7): 1488-1496.

ZHANG Dingxi, SUN Tao, WANG Yongmin, et al. Effect of straw returning with different lengths on mercury methylation in paddy soil and methylmercury accumulation in rice plants[J]. Environmental Chemistry, 2019, 38(7): 1488-1496.

## 不同长度秸秆还田对土壤汞甲基化与 水稻植株甲基汞富集的影响\*

张定熙<sup>1</sup> 孙涛<sup>1</sup> 王永敏<sup>1,2\*\*</sup> 李广智<sup>1</sup> 董玉丹<sup>1</sup> 唐振亚<sup>1</sup>  
尹德良<sup>1</sup> 王定勇<sup>1,2</sup>

(1. 西南大学资源环境学院, 重庆, 400715; 2. 重庆市农业资源与环境研究重点实验室, 重庆, 400715)

**摘要** 为降低秸秆还田引起稻田系统甲基汞(MeHg)升高的风险, 采用盆栽试验, 研究了添加不同长度水稻秸秆(5 cm、2 cm、粉末)条件下, 在水稻整个生长期土壤汞的甲基化以及水稻植株各组织中 MeHg 的含量变化特征. 结果表明, 添加秸秆能显著促进稻田土壤汞的甲基化, 并能提升稻米 MeHg 的富集. 不同长度秸秆对土壤 MeHg 净增长的影响时间不同, 较长秸秆能长时间内对土壤汞的甲基化产生促进作用, 在水稻生长后期土壤 MeHg 含量持续偏高, 致使晚熟期稻米中 MeHg 质量浓度偏高; 粉碎的秸秆在土壤中能快速降解, 尽管在短时间内能引起土壤 MeHg 含量升高, 但在水稻生长后期土壤 MeHg 含量明显下降, 完熟期稻米中 MeHg 含量也远低于其他两种处理方式. 因此, 秸秆进行粉碎处理后再还田有利于降低稻米的 MeHg 富集风险.

**关键词** 汞, 秸秆还田, 甲基化, 稻米, 富集.

## Effect of straw returning with different lengths on mercury methylation in paddy soil and methylmercury accumulation in rice plants

ZHANG Dingxi<sup>1</sup> SUN Tao<sup>1</sup> WANG Yongmin<sup>1,2\*\*</sup> LI Guangzhi<sup>1</sup>  
DONG Yudan<sup>1</sup> TANG Zhenya<sup>1</sup> YIN Deliang<sup>1</sup> WANG Dingyong<sup>1,2</sup>

(1. College of Resources and Environment, Southwest University, Chongqing, 400715, China;

2. Chongqing Key Laboratory of Agricultural Resources and Environment, Chongqing, 400715, China)

**Abstract:** To explore a reasonable straw returning pattern to alleviate the methylmercury (MeHg) exposure risk in paddy ecosystems, pot experiments were conducted in this study by adding rice straw with three different lengths (5 cm, 2 cm and pulverized rice straw) into paddy soil. The methylation of mercury (Hg) in soil and MeHg distribution in rice plants were investigated during the whole growing period of paddy. The results showed that rice straw returning could promote soil Hg methylation and increase the MeHg levels in rice. The length of straw for returning to field could influence the net MeHg production. The longer straw (5 cm) showed a prolonged promotion for Hg

2018 年 9 月 25 日收稿 (Received: September 25, 2018).

\* 国家自然科学基金(41671469, 41603103), 中央高校基本科研业务费专项基金项目(XDJK2017B035, XDJK2017D202)和西南大学国家级大学生创新创业训练计划项目(201710635061)资助.

**Supported by** the National Natural Science Foundation of China (41671469, 41603103), the Fundamental Research Funds for the Central Universities (XDJK2017B035, XDJK2017D202) and the National Undergraduate Training Program for Innovation and Entrepreneurship of Southwest University (201710635061).

\* \* 通讯联系人: E-mail: wangym540@swu.edu.cn

**Corresponding author**, E-mail: wangym540@swu.edu.cn

methylation in paddy soil, resulting in higher MeHg concentrations in soil at later growth stage and increased MeHg accumulation in rice. The pulverized rice straw could bring about a MeHg increase in soil in a shorter incubation time, however, MeHg concentrations in soil decreased at later growth stage, which further made a lower rice MeHg compared to other treatments with 5 cm and 2 cm straw. Therefore, it is clear from this study that straw smashing before returning to field could alleviate the methylmercury (MeHg) exposure risk of rice induced by straw returning.

**Keywords:** mercury, straw returning, methylation, rice, accumulation.

稻米是当今世界最重要的粮食作物之一,全球有近一半的人口以稻米为主食.我国是世界上主要的稻米生产国之一,2017 年我国稻米的生产总量约占世界总产量的 30%.而我国的水稻种植主要以水淹地的方式进行耕作,长期或周期性的淹水使得稻田系统形成了有利于汞(Hg)甲基化的环境.众所周知,Hg 是一种高毒性的重金属,甲基汞(MeHg)又是其毒性较强的形态.水稻对 MeHg 有很强的富集能力,而且主要累积在稻米中,其 MeHg 浓度可达  $180 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ <sup>[1-3]</sup>.有研究表明,稻米的食用已成为我国西南汞矿区居民 MeHg 暴露的主要途径<sup>[4-5]</sup>.因此探究稻田系统 Hg 的转化及稻米 MeHg 富集具有重要意义.

目前,已有很多学者针对稻田系统 Hg 暴露风险问题以及汞甲基化机制等方面开展了系统的研究<sup>[4-7]</sup>,并取得了一系列成果,如发现稻米对 MeHg 的富集能力高出无机汞的 1000 倍左右<sup>[5]</sup>,土壤是水稻体内 MeHg 的主要来源<sup>[7-8]</sup>等等.同时,也有研究发现秸秆还田会促进稻田土中 Hg 的甲基化<sup>[9-10]</sup>.秸秆还田一方面加速厌氧环境的形成,另一方面秸秆腐解过程中释放出有机质、碳、氮等营养元素以及小分子有机酸等<sup>[11]</sup>,其不仅能影响土壤中生物可利用性汞的含量,还可促进 Hg 甲基化微生物的生长<sup>[12-13]</sup>.秸秆还田同样有利于稻米 MeHg 的富集,土壤中 MeHg 可通过水稻根部的吸收,进而转运、储存至植株不同部位,并在成熟期向稻米中转移<sup>[7, 14-15]</sup>,导致稻米中 MeHg 含量升高,进而提高其暴露风险.

秸秆还田作为当今世界上普遍重视的一项培肥地力的增产措施,是当前绿色农业的一个重要生产方式.据统计,我国每年稻米的产量可达 144000 吨,而每生产 1 吨稻米大约有 1.35 吨秸秆被还田<sup>[15]</sup>,可见每年我国有大量的秸秆被施于稻田中.相较焚烧后还田的传统方法,秸秆还田不但能减少焚烧产生的大气污染,降低其带来的环境压力,还能改善土壤团粒、增强土壤肥力、改善土壤微生物群落和提高作物产量<sup>[16-18]</sup>.目前,秸秆直接还田的方式在农业生产上得到了广泛的应用,其主要采取秸秆粉碎翻压还田和覆盖还田(不同长度或整株还田).而不同长度的秸秆在土壤中的腐解速率存在一定的差异<sup>[19]</sup>,施入土壤后,使得土壤有机质含量及构成、微生物群落结构等在水稻的不同生长时期发生变化,而这一变化势必影响稻田系统 Hg 的甲基化过程.那么是否可在不严重影响秸秆还田对稻米生产所带来的经济效益和环境效益的条件下,通过对还田秸秆进行不同长度处理,控制其在稻田土中的分解时间,达到减缓秸秆还田带来的稻米 MeHg 累积的效果?但这一问题研究目前还尚缺乏.

本文利用盆栽试验,通过向土壤中添加不同长度的秸秆,于水稻不同生长期,对土壤和水稻植株不同组织的 Hg 进行分析,探索在该条件下稻田系统中 Hg 的迁移转化,并以此寻找有效的处理措施,达到减轻秸秆还田对稻田 Hg 污染带来的 MeHg 暴露风险的目的,同时也为降低 MeHg 暴露风险提供科学依据.

## 1 材料与方法 (Materials and methods)

### 1.1 供试材料

盆栽试验于 2017 年 5 月 10 日至 8 月 20 日在西南大学国家紫色土肥力与肥料效益监测基地的试验场进行.水稻生长各时期分布及生长期的气温变化如图 1 所示.

供试土壤为侏罗纪系沙溪庙组紫色泥页岩母质发育而成的紫色水稻土,其理化性质、总汞 (THg) 和甲基汞 (MeHg) 含量如表 1 所示.水稻插秧前 1 个月,采集供试土壤,自然风干,磨碎,过 2 mm 网筛,然后以每公斤干土添加 5 mg 氯化汞 ( $\text{HgCl}_2$ )、150 mg 尿素、100 mg 过磷酸钙、100 mg 氯化钾的比例添加外源 Hg 和化学肥料,将供试土壤混匀后,分装入聚乙烯塑料桶中(直径 250 mm、深 25 cm;每桶装入 6 kg 土

以保证淹水后至少 5 cm 的淹水深度)进行陈化处理.

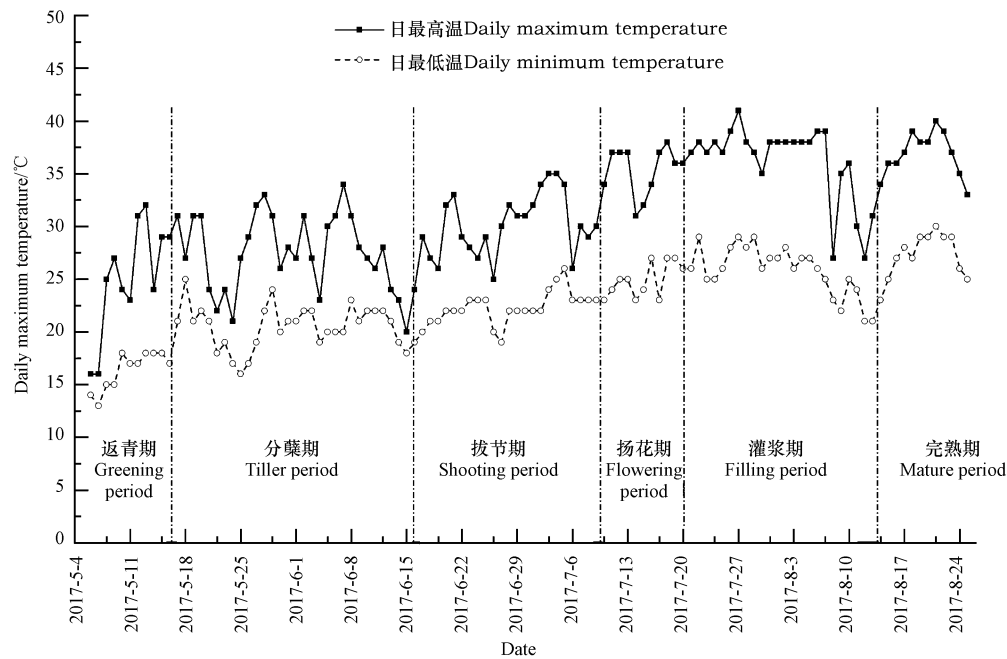


图 1 水稻生长各时期分布以及生长期气温变化图

Fig.1 Growth periods of rice and corresponding temperature variation

水稻秸秆为国家紫色土基地内上年度水稻种植收获保存的秸秆 (THg: 3.66  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ; MeHg: 1.30  $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ),通过剪切和粉碎机处理分别得到长度约 5 cm、2 cm 和粉末状的秸秆,然后按每公斤干土 20 g 秸秆的添加量将不同长度秸秆添加至以上盆栽土壤中并混匀,最后加入自来水 (THg: 2.8  $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ; MeHg: 0.02  $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ ) 浇灌.其中粉末状秸秆是指将秸秆用粉碎机进行粉碎处理 (由于水稻秸秆含有大量的木质素,无法完全粉碎,考虑到实验对照的准确性,并没有将无法粉碎的残骸挑选出来,所有统称为粉末状).于 2017 年 5 月 10 日将培育好的水稻幼苗 (品种为丰优香占),移栽至陈化好的盆栽土中.

表 1 试供土壤的基本理化性质及其汞含量

| Table 1 Physicochemical properties of soil and the Hg levels in soil and straw |     |                                                        |                                                             |                                |          |           |                                              |                                               |
|--------------------------------------------------------------------------------|-----|--------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------|--------------------------------|----------|-----------|----------------------------------------------|-----------------------------------------------|
| 土壤类型<br>Soil type                                                              | pH  | 阳离子交换量<br>CEC/<br>( $\text{cmol}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) | 有机质<br>Organic matter/<br>( $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) | 机械组成%<br>Mechanical components |          |           | THg/<br>( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) | MeHg/<br>( $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) |
|                                                                                |     |                                                        |                                                             | >0.25 mm                       | <0.02 mm | <0.002 mm |                                              |                                               |
| 紫色土                                                                            | 4.6 | 18.65                                                  | 10.5                                                        | 2.7                            | 28.3     | 13.5      | 76.35                                        | 0.09                                          |

1.2 实验设计及采样方法

本实验共设计 4 个处理组,分别为添加 5 cm、2 cm 和粉碎处理的秸秆以及不添加秸秆的对照组,依次标记为 5 cm、2 cm、粉末和 CK.

于 2017 年 5 月 10 日,移栽紫色土基地培育的水稻幼苗,每盆移栽 3 株.在水稻生长时期始终保持淹水环境,淹水深度保持在 5 cm 左右.并以国际水稻研究所按照水稻生长所划分的营养生长期和生殖生长期的 2 个阶段为依据,于水稻返青期 (移栽后 10 d 左右)、分蘖期 (返青期后 50 d 左右)、拔节期 (分蘖期后 25 d 左右)、扬花期 (拔节期后 7 d 左右)、灌浆期 (扬花期后 30 d 左右) 以及完熟期 (灌浆期后 10 d 左右) 采集土壤和水稻样品.利用手持去心土壤采集器采集 0—20 cm 土壤样品,然后立即装入自封袋,同时破坏性采集盆内整株水稻,并现场将水稻植株按照不同部位分为根、茎、叶、稻壳和稻米 (灌浆期和完熟期),用去离子水洗净后装入自封袋,立即冷藏,尽快带回实验室进行处理.

1.3 样品分析方法

土壤样品采用冷冻干燥机 (FD-1A-50,北京博医康仪器有限公司,北京) -60  $^{\circ}\text{C}$  下避光冷冻干燥后,用玛瑙研磨磨细,过 0.150 mm 目筛,干燥冷藏保存待测.土壤总汞 (THg) 采用固体进样自动测汞仪

(DMA-80, Milestone, Italy) 进行测定;土壤 MeHg 参照美国 EPA1630 标准方法<sup>[20]</sup>,采用硝酸和硫酸铜溶液浸提,二氯甲烷萃取并结合水相乙基化等温气相色谱-冷原子荧光法(GC-CVAFS)进行测定。

水稻样品的不同组织同样采用冻干机(−60 ℃)避光冷冻干燥后,玛瑙研磨后过 0.1 mm 孔径筛.水稻各组织 MeHg 采用 KOH/CH<sub>3</sub>OH 溶液萃取,并结合水相乙基化等温气相色谱-冷原子荧光法(GC-CVAFS)测定。

1.4 质量控制

室内分析对所使用的硼硅酸玻璃器皿均进行超净处理,即洗净后在 30%(V/V)的稀硝酸溶液中浸泡 24 h,冲洗后在马弗炉 500 ℃下处理 40 min,然后在超净工作台冷却后使用.测定中所使用试剂均为优级纯,水为超纯水(Millpore, 18.2 MΩ·cm)。

试验过程采用空白试验、平行试验和标准物质进行质量控制.THg 测定所用标准物质为 GBW07428 (GSS-14, 四川盆地土壤, THg = 89.0±4.0 ng·g<sup>−1</sup>),回收率为 95%—105%.MeHg 测定所用标准物质为 TORT-2(Lobster hepatopancreas, MeHg = 152.0±13.0 ng·g<sup>−1</sup>),标准物质加标回收为 90%—110%.另外,测定空白值相对样品含量较小,仅为 0.5%—6.2%,平行样相对标准偏差(RSD) < 8%(n = 3)。

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 土壤中 Hg 的变化特征

由图 2a 可知,在整个水稻生长周期,各处理土壤 THg 质量浓度均呈现了一定程度的下降趋势.然而,添加秸秆的盆栽中,THg 浓度的降低程度要弱于 CK 组,主要因为秸秆加入后,有机质能够结合土壤中 Hg<sup>[21-23]</sup>,一方面减弱了 Hg 向植物运输的能力,另一方面也降低了向其他环境介质的转移(如向大气的释放)。

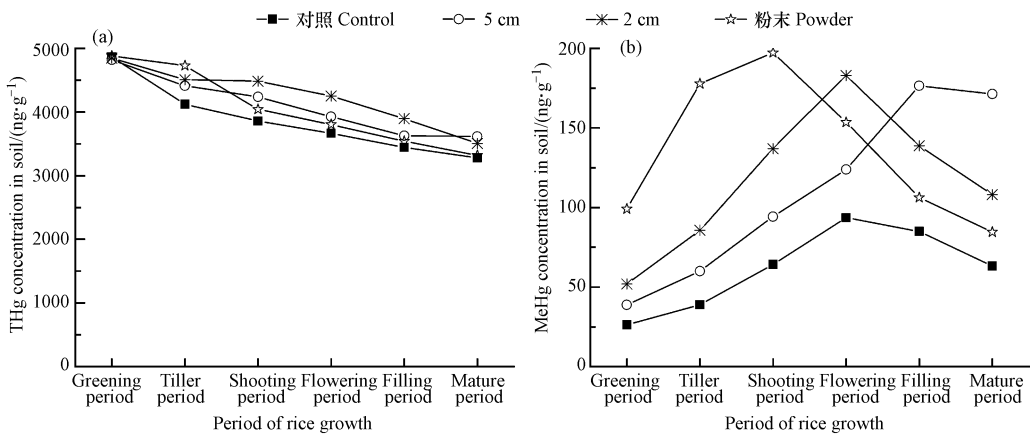


图 2 土壤中 THg(a) 和 MeHg(b) 含量变化  
Fig.2 Variation of THg (a) and MeHg (b) levels in soil

从图 2b 中可看出,添加秸秆后,水稻每个生长时期的土壤 MeHg 含量均高于对照,主要由于秸秆腐解过程中释放的营养物质促进了微生物的活性,导致土壤 MeHg 含量升高<sup>[11-13]</sup>.并且从该图中还可看出,土壤中 MeHg 浓度变化不同于 THg(图 2a),其随着秸秆在土壤中的降解时间出现了先升高后下降的趋势.其中,添加粉末秸秆处理组土壤 MeHg 最先出现最大值,然后依次是 2 cm 和 5 cm 处理组.CK 组虽没添加秸秆,但在扬花期,也出现了较小的 MeHg 峰值,主要因为水稻生长过程中,释放的根系分泌物促进了根际土壤中微生物的活性或增加了土壤可利用性 Hg 的含量,导致 CK 组中土壤 MeHg 含量升高<sup>[24]</sup>.但在水稻生长后期,不同处理组土壤中 MeHg 浓度均呈现了一定程度的下降,一方面可能由于随着时间的推移,土壤中的秸秆矿化程度逐渐升高,可释放有机质降低,导致对甲基汞生成的促进作用有所降低,另外水稻进入生殖期后对营养物质的需求也有所提升,导致土壤中更多的 MeHg 伴随营养物质的吸收被转移至水稻植株中.以上分析结果表明,土壤中添加秸秆能够显著促进土壤中 MeHg 质量浓度的增加,且随着时间的推移,不同长度的秸秆所产生的促进效应不同.水稻秸秆中含有较多的木质素、纤

纤维素和硅酸盐,在自然环境中腐解周期较长<sup>[25]</sup>.土壤中秸秆的腐解是一个复杂的物质和能量相互转化的生物化学过程,受自身和外界环境条件的共同影响<sup>[26]</sup>,如温度、还田量、还田时间、秸秆大小以及还田深度等<sup>[27-29]</sup>,其中大小是影响秸秆腐解的一个重要因素.秸秆的大小,可影响秸秆与土壤的接触程度,进而影响微生物的分解速率,秸秆越小,比表面越大,与土壤的接触面积越大,微生物的附着点也越多,腐解速率也就越快<sup>[30]</sup>.稻田系统,作为一种特殊的湿地生态系统,已被证实是汞甲基化的重要场所,而秸秆还田后,一方面秸秆腐解过程中会不断消耗氧气,加快厌氧环境的形成,促进 Hg 甲基化<sup>[31-33]</sup>;另一方面秸秆腐解释放的有机质,为土壤 Hg 甲基化微生物提供碳源、氮源<sup>[12]</sup>,并且产生的溶解性有机质(DOM)有助于土壤中甲基汞解吸进入间隙水中,进而促进植物的吸收.因此,秸秆还田对稻田土壤 Hg 甲基化作用的影响应引起足够的重视.而根据以上结果可知,对秸秆进行不同长度的物理处理,可控制秸秆还田对稻田土壤中 Hg 甲基化的促进作用以及持续时间,如粉末状秸秆还田能将土壤 MeHg 峰值出现时间提前.

土壤中 MeHg 浓度与 THg 浓度的比值(MeHg/THg)通常被认为是衡量土壤 Hg 甲基化能力的一个重要指标<sup>[35]</sup>.不同处理组土壤 Hg 甲基化能力与土壤中 MeHg 的质量浓度变化趋势基本一致,由于土壤中 THg 的变化幅度较小(25%—33%),MeHg/THg 的变化趋势主要受土壤中甲基汞浓度的变化影响,因此,影响土壤 MeHg 含量的因素在一定程度上影响着土壤 Hg 甲基化能力的变化.从图 3 中可看出,在水稻生长前期(拔节期以前),不同处理中土壤 Hg 的甲基化能力表现为粉末>2 cm>5 cm>CK.原因可能是还田水稻秸秆的长度越小,与土壤接触面积越多,腐解速率越快,在水稻生长前期释放的营养物质、DOM 等越多,对土壤 Hg 甲基化的促进作用也越明显.在水稻生长末期土壤中 Hg 的甲基化能力为:5 cm>2 cm>粉末>CK,可归因于秸秆的长度越长,腐解速率越慢,碳源、氮源的释放时间也就越长,能够长时间地为微生物提供养分<sup>[32-34]</sup>,所以在水稻生长末期,秸秆长度较长的处理组,土壤 Hg 的甲基化能力仍能保持较高的水平.

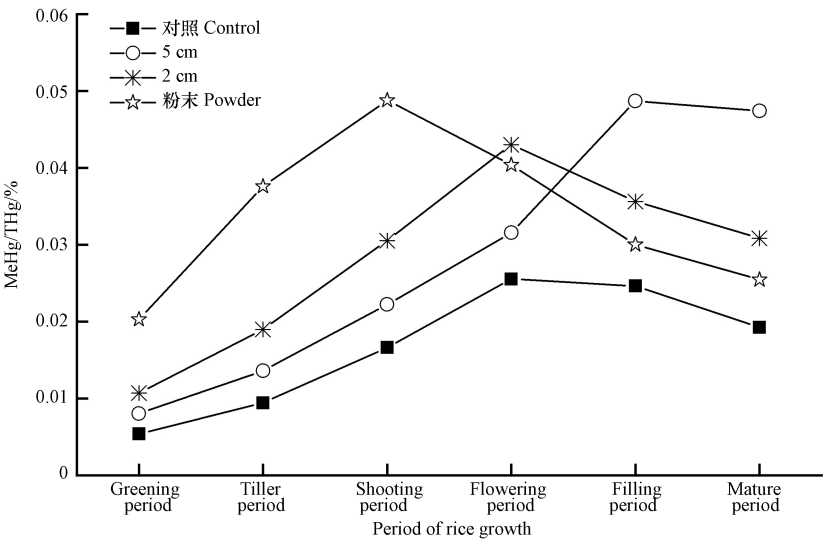


图 3 土壤中 MeHg/THg 的含量趋势  
Fig.3 Variation of MeHg/THg in soil

2.2 水稻植株各组织中 MeHg 的分布特征

由水稻根部 MeHg 的质量浓度分布图(图 4)可知,添加秸秆处理组的水稻根部 MeHg 浓度均高于 CK 组,说明土壤中秸秆的添加能够促使水稻根部 MeHg 的累积;且不同处理中水稻根部 MeHg 的动态变化特征与土壤中 MeHg 的变化有相似的趋势,添加秸秆的长度同样会影响根部 MeHg 最大浓度的出现时间.研究发现,植物根部对土壤中 MeHg 的吸收即可通过由浓度梯度差而产生的被动吸收,也有通过转运蛋白作用产生的主动吸收<sup>[36-37]</sup>,因此土壤中 MeHg 的浓度能够直接或间接影响水稻根部 MeHg 的含量.

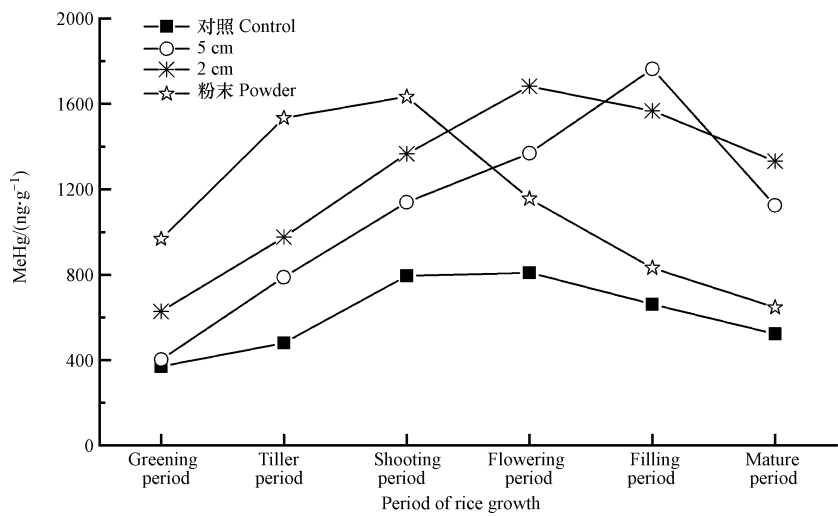


图 4 不同处理水稻根中 MeHg 质量浓度的分布特征

Fig.4 Distribution of MeHg concentration in different soil\rice treatments

从不同处理中水稻各组织 MeHg 的分布来看(图 5),各组织 MeHg 的浓度均高于土壤,并均呈现了稻米>根>壳>茎>叶的趋势.其中稻米中 MeHg 浓度最高,这与之前的研究结果相似.稻米表现出较强的 MeHg 富集能力,主要由于 MeHg 具有很强的亲脂性,易与含巯基(-SH)的蛋白质或氨基酸结合<sup>[38]</sup>,在水稻生殖期,随各组织营养物质向籽粒中的转移,最终储存在稻米中.

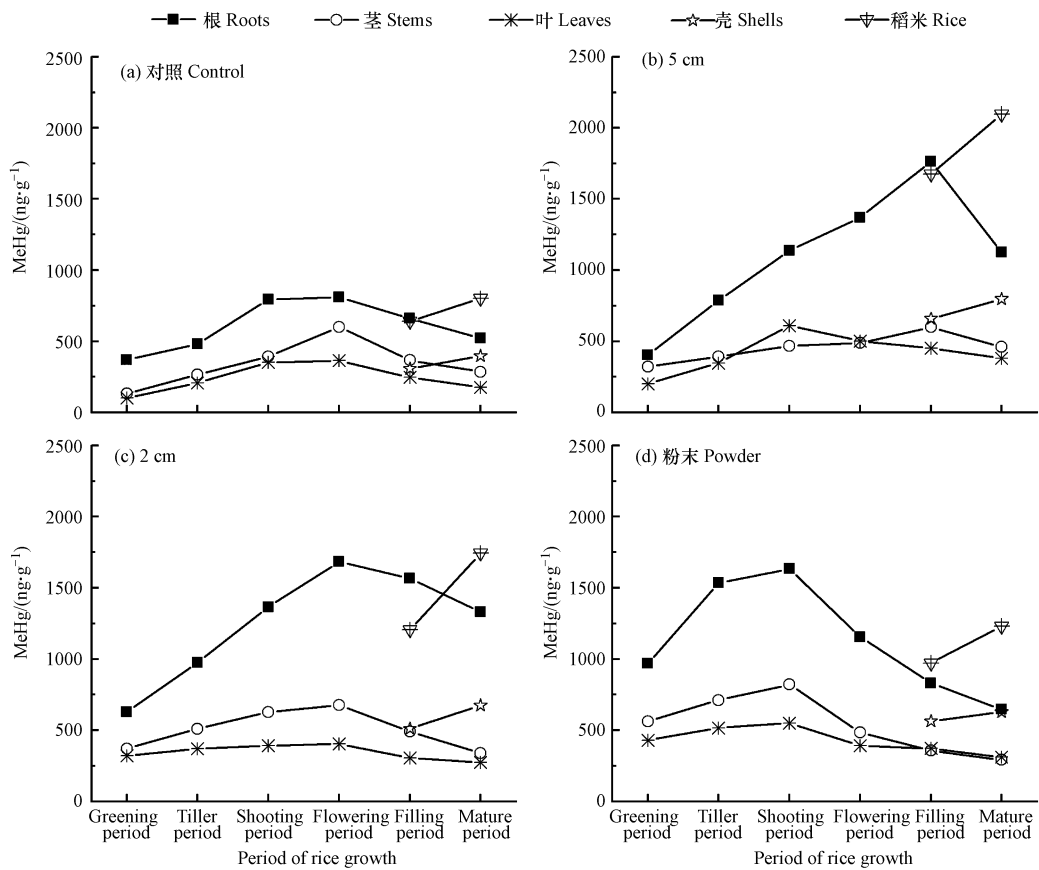


图 5 不同处理水稻各组织 MeHg 质量浓度分布特征

Fig.5 Distribution of MeHg concentration in different soil-rice treatments

并且秸秆的添加同样也能促使水稻植株各组织 MeHg 的增加,不同长度秸秆的添加会导致各处理

水稻组织中 MeHg 浓度有不同程度的增加,其变化趋势与各处理中土壤 MeHg 含量的变化类似.施用秸秆的长度会影响稻米中 MeHg 的含量,其中 5 cm 秸秆添加组中稻米 MeHg 含量最高.在以上讨论中已经知道,不同长度秸秆在土壤中的腐解时间不同,其影响土壤及水稻植株中 MeHg 的变化.同时,秸秆腐解过程中不仅为植物的生长提供碳源,还可释放出矿物质元素,同样影响着水稻植株的生长.粉碎处理的秸秆腐解过程中能够在较短的时间内释放出碳源和矿质元素,促进水稻前期生长,而较长秸秆需要经过相对较长的时间腐解,作用时间比较持久,能长时间的对水稻植株的生长起到促进的作用.因此,较长秸秆处理添加到土壤中,具有持久的对土壤 Hg 甲基化以及水稻植株生长的双重促进作用,导致稻米中 MeHg 的含量更高.

2.3 水稻植株各组织 MeHg 的富集系数

表 2 列出了水稻各组织中 MeHg 的富集系数(BAFs=各组织中 MeHg 质量浓度/对应土壤中 MeHg 的质量浓度)<sup>[39]</sup>.从该表可知,不同处理组水稻的根、茎、叶和稻壳 MeHg 的 BAFs 随着生长时期的推进呈现先下降后略微上升的趋势,稻米中 MeHg 的 BAFs 则随稻米的成熟呈现上升的趋势.在生长发育时期,水稻的根、茎和叶的生物量持续增加,在营养物质充足的条件下其生长速度较快,而水稻植株中的 MeHg 是伴随着营养物质的吸收转移或储存在不同组织中<sup>[40]</sup>,因此水稻生殖期前植株的快速生长对 MeHg 含量产生一定的生物稀释作用.然而,水稻生长进入生殖期后,水稻吸收的营养物质以及前期储存在根、茎、叶和壳中的营养物质均向稻米进行转移,进而造成水稻进入生殖期后,水稻根、茎、叶和壳的 BAFs 有所下降,而稻米中 MeHg 的 BAFs 大幅升高的现象.

表 2 水稻各组织中 MeHg 的富集系数(BAFs)  
Table 2 MeHg BAFs of different rice tissues

| 生长时期<br>Growth period | 实验处理<br>Experimental treatments | 根<br>Roots | 茎<br>Stems | 叶<br>Leaves | 壳<br>Shells | 稻米<br>Rice |
|-----------------------|---------------------------------|------------|------------|-------------|-------------|------------|
| 返青期                   | CK                              | 14.09      | 5.06       | 3.09        |             |            |
|                       | 5 cm                            | 10.40      | 8.35       | 5.24        |             |            |
|                       | 2 cm                            | 12.10      | 7.16       | 6.20        |             |            |
|                       | 粉末                              | 9.77       | 5.69       | 4.34        |             |            |
| 拔节期                   | CK                              | 12.34      | 6.88       | 5.39        |             |            |
|                       | 5 cm                            | 13.15      | 6.58       | 5.82        |             |            |
|                       | 2 cm                            | 11.40      | 5.96       | 4.34        |             |            |
|                       | 粉末                              | 8.63       | 4.01       | 2.91        |             |            |
| 抽穗期                   | CK                              | 12.38      | 6.13       | 5.49        |             |            |
|                       | 5 cm                            | 12.09      | 4.96       | 6.49        |             |            |
|                       | 2 cm                            | 9.97       | 4.59       | 2.86        |             |            |
|                       | 粉末                              | 8.28       | 4.16       | 2.79        |             |            |
| 扬花期                   | CK                              | 8.65       | 6.43       | 3.90        |             |            |
|                       | 5 cm                            | 11.05      | 3.95       | 4.06        |             |            |
|                       | 2 cm                            | 9.20       | 3.69       | 2.22        |             |            |
|                       | 粉末                              | 7.53       | 3.15       | 2.55        |             |            |
| 灌浆期                   | CK                              | 7.80       | 4.34       | 2.92        | 3.63        | 7.55       |
|                       | 5 cm                            | 9.99       | 3.40       | 2.56        | 3.74        | 9.49       |
|                       | 2 cm                            | 11.30      | 3.54       | 2.19        | 3.68        | 8.69       |
|                       | 粉末                              | 7.82       | 3.36       | 3.51        | 5.30        | 9.15       |
| 完熟期                   | CK                              | 8.27       | 4.54       | 2.80        | 6.29        | 12.69      |
|                       | 5 cm                            | 6.57       | 2.69       | 2.23        | 4.66        | 12.24      |
|                       | 2 cm                            | 12.31      | 3.14       | 2.53        | 6.24        | 16.13      |
|                       | 粉末                              | 7.65       | 3.45       | 3.68        | 7.43        | 14.56      |

### 3 结论 (Conclusion)

秸秆的添加能显著提高土壤 Hg 的甲基化能力,并且不同长度的秸秆对土壤 Hg 甲基化能力以及水稻植株不同组织甲基汞分布的影响不同.秸秆尺寸越大,对土壤 Hg 甲基化的促进作用也越持久,导致水稻生长后期的稻米甲基汞含量较高.虽粉末状秸秆能在较短时间内迅速提高土壤甲基汞含量,但持久性较低,导致完熟期稻米甲基汞含量低于其他处理.因此,秸秆还田时,对秸秆进行粉碎处理,可达到降低秸秆还田造成的稻米 MeHg 暴露风险的目的.

#### 参考文献 (References)

- [ 1 ] LI P, FENG X, SHANG L, et al. Mercury pollution from artisanal mercury mining in Tongren, Guizhou, China [J]. *Applied Geochemistry*, 2008, 23: 2055-2064.
- [ 2 ] GTHENBERG S E, FENG X, DONG B, et al. Characterization of mercury species in brown and white rice (*Oryza sativa* L.) grown in water-saving paddies [J]. *Environmental Pollution*, 2011, 159(5): 1283-1289.
- [ 3 ] MENG B, FENG X, QIU G, et al. Inorganic mercury accumulation in rice (*Oryza sativa* L.) [J]. *Environmental Toxicology & Chemistry*, 2012, 31: 2093-2098.
- [ 4 ] 朱金山,高润霞,王定勇,等.稻田水体中汞的非生物甲基化研究[J]. *环境化学*, 2017, 36(9): 1997-2004.  
ZHU J S, GAO R X, XU, et al. The progress in research on mechanism of microbial mercury methylation and de-methylation [J]. *Environmental Chemistry*, 2017, 36(9): 1997-2004 (in Chinese).
- [ 5 ] ZHANG H, FENG X, LARSEN T, et al. Bioaccumulation of methylmercury versus inorganic mercury in rice (*Oryza sativa* L.) Grain [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 44(12): 4499-4504.
- [ 6 ] QIU G, FENG X, LI P, et al. Methylmercury accumulation in rice (*Oryza sativa* L.) grown at abandoned mercury mines in Guizhou, China [J]. *Journal of Agricultural & Food Chemistry*, 2008, 56(7): 2465-2468.
- [ 7 ] MENG B, FENG X, QIU G, et al. Localization and speciation of mercury in brown rice with implications for Pan-Asian public health [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(14): 7974-7981.
- [ 8 ] 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).
- [ 9 ] ZHU H, ZHONG H, EVANS D, et al. Effects of rice residue incorporation on the speciation, potential bioavailability and risk of mercury in a contaminated paddy soil [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2015, 293: 64-71.
- [ 10 ] ZHU H, ZHONG H, WU J. Incorporating rice residues into paddy soils affects methylmercury accumulation in rice [J]. *Chemosphere*, 2016, 152: 259-264.
- [ 11 ] 曹湛波,王磊,李凡,等.土壤呼吸与土壤有机碳对不同秸秆还田的响应及其机制[J]. *环境科学*, 2016, 37(5): 1908-1914.  
CAO Z B, WANG L, LI F, et al. Response of soil respiration and organic carbon to returning of different agricultural straws and its mechanism [J]. *Environmental Science*. 2016, 37(5): 1908-1914 (in Chinese).
- [ 12 ] ULLRICH S M, TANTON T W, ABDRAHITOVA S A. Mercury in the aquatic environment: a review of factors affecting methylation [J]. *C R C Critical Reviews in Environmental Control*, 2001, 31: 241-293.
- [ 13 ] DEB S K, SHUKLA M K. A review of dissolved organic matter transport processes affecting soil and environmental quality [J]. *Journal of Environmental & Analytical Toxicology*, 2011, 1(2): 1-11.
- [ 14 ] MENG B, FENG X, QIU G, et al. The process of methylmercury accumulation in rice (*Oryza sativa* L.) [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(7): 2711-2717.
- [ 15 ] WANG X, YE Z, LI B, et al. Growing rice aerobically markedly decreases mercury accumulation by reducing both Hg bioavailability and the production of MeHg [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(3): 1878-1885.
- [ 16 ] 江永红, 宇振荣, 马永良. 秸秆还田对农田生态系统及作物生长的影响[J]. *土壤通报*, 2001, 32(5): 209-213.  
JIANG Y H, NING Z R, MA Y L. Effect of straw returning on farmland ecosystem and crop growth [J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2001, 32(5): 209-213 (in Chinese).
- [ 17 ] 杨滨娟, 黄国勤, 钱海燕. 秸秆还田配施化肥对土壤温度、根际微生物及酶活性的影响[J]. *土壤学报*, 2014, 51(1): 150-157.  
YANG B J, HUANG G Q, QIAN H Y. Effects of straw incorporation plus chemical fertilizer on soil temperature, root micro-organisms and enzyme activities [J]. *Acta Pedologica Sinica*, 2014, 51(1): 150-157 (in Chinese).
- [ 18 ] GRAYDON J A, ST LOUIS V L, LINDBERG S E, et al. Investigation of mercury exchange between forest canopy vegetation and the atmosphere using a new dynamic chamber [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(15): 4680-4688.
- [ 19 ] 匡恩俊, 迟凤琴, 宿庆瑞, 等. 不同长度作物秸秆腐解规律的研究[C]. 中国植物营养与肥料学会 2012 年学术年会, 2012.

- KUANG E J, CHI F Q, SU Q R, et al. Decomposition Regularities of Crop Straws under Different Length [C]. China Society of Plant Nutrition and Fertilizer 2012 Annual Conference, 2012 (in Chinese).
- [20] EPA U. Method 1630, Methyl mercury in water by distillation, aqueous ethylation, purge and trap, and CVAFS [J]. US Environmental Protection Agency, Washington, DC, 2001.
- [21] GU B, BIAN Y, Miller C L, et al. Mercury reduction and complexation by natural organic matter in anoxic environments [J]. *Proc Natl Acad Sci U S A*, 2011, 108(4): 1479-1483.
- [22] 孙涛, 马明, 王永敏, 等. 西南地区典型森林水库土壤和沉积物汞的迁移转化特征 [J]. *环境科学*, 2018, 39(4): 1880-1887.
- SUN T, MA M, WANG Y M, et al. Migration and transformation of mercury in unsubmerged soil and sediment at one typical forest reservoir in Southwest China [J]. *Environmental Science*, 2018, 39(4): 1880-1887 (in Chinese).
- [23] REGNELL O, ELERT M, HÖGLUND L O, et al. Linking cellulose fiber sediment methyl mercury levels to organic matter decay and major element composition [J]. *Ambio*, 2014, 43(7): 878-890.
- [24] YIN D, WANG Y, JIANG T, et al. Methylmercury production in soil in the water-level-fluctuating zone of the Three Gorges Reservoir, China: The key role of low-molecular-weight organic acids [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 235: 186-189.
- [25] 赵蒙蒙, 姜曼, 周祚万. 几种农作物秸秆的成分分析 [J]. *材料导报*, 2011, 25(16): 122-125.
- ZHAO M M, JANG M, ZHOU Z W. The components analysis of several kinds of agricultural residues [J]. *Materials Review*. 2011, 25(16): 122-125 (in Chinese).
- [26] 葛选良, 于洋, 钱春荣. 还田作物秸秆腐解特性及相关影响因素的研究进展 [J]. *农学学报*, 2017, 7(7): 17-21.
- GE X L, YU Y, QIAN C R. Returning crop straw: A review of decomposing features and influencing factors [J]. *Journal of Agriculture*, 2017, 7(7): 17-21 (in Chinese).
- [27] 颜丽, 宋杨, 贺靖, 等. 玉米秸秆还田时间和还田方式对土壤肥力和作物产量的影响 [J]. *土壤通报*, 2004, 35(2): 143-148.
- YAN L, SONG Y, HE J, et al. Effects of maize stems returning back to the field on the yield of plants and soil fertility [J]. *Chinese Journal of Soil Science*, 2004, 35(2): 143-148 (in Chinese).
- [28] 郑立巨, 解宏图, 张威, 等. 秸秆不同还田方式对土壤中溶解性有机碳的影响 [J]. *生态环境学报*, 2006, 15(1): 80-83.
- ZHENG L, XIE H, ZHANG W, et al. Effects of different ways of returning straw to the soils on soluble organic carbon [J]. *Ecology & Environment*, 2006, 15(1): 80-83 (in Chinese).
- [29] 张静, 温晓霞, 廖允成, 等. 不同玉米秸秆还田量对土壤肥力及冬小麦产量的影响 [J]. *植物营养与肥料学报*, 2010, 16(3): 612-619.
- ZHANG J, WEN X X, LIAO Y C, et al. Effects of different amounts of maize straw returning on soil fertility and yield of winter wheat [J]. *Plant Nutrition & Fertilizer Science*, 2010, 16(3): 612-619 (in Chinese).
- [30] HENRIKSEN T M, BRELAND T A. Carbon mineralization, fungal and bacterial growth, and enzyme activities as affected by contact between crop residues and soil [J]. *Biology & Fertility of Soils*, 2002, 35(1): 41-48.
- [31] GILMOUR C C, HENRY E A. Mercury methylation in aquatic systems affected by acid deposition [J]. *Environmental Pollution*, 1991, 71: 131-169.
- [32] ZHAO L, ANDERSON C W N, QIU G, et al. Mercury methylation in paddy soil: source and distribution of mercury species at a Hg mining area, Guizhou Province, China [J]. *Biogeosciences*, 2016, 13(8): 1-31.
- [33] ZHAO L, QIU G, ANDERSON C W N, et al. Mercury methylation in rice paddies and its possible controlling factors in the Hg mining area, Guizhou Province, Southwest China [J]. *Environmental Pollution*, 2016, 215: 1-9.
- [34] GRAHAM A M, CAMERONBURR K, HAJIC H, et al. Sulfurization of dissolved organic matter increases Hg-sulfide-DOM bioavailability to a Hg-Methylating bacterium [J]. *Environmental Science & Technology*, 2017, 51: 9080-9088.
- [35] MOINGT M, LUCOTTE M, PAQUET S, et al. Deciphering the impact of land-uses on terrestrial organic matter and mercury inputs to large boreal lakes of central Québec using lignin biomarkers [J]. *Applied Geochemistry*, 2014, 41: 34-48.
- [36] MENG B, FENG X, QIU G, et al. Localization and speciation of mercury in brown rice with implications for Pan-Asian public health [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48(14): 7974-7981.
- [37] MENG B, FENG X, QIU G, et al. The process of methylmercury accumulation in rice (*Oryza sativa* L.) [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(7): 2711-2717.
- [38] XU X, ZHAO J, LI Y, et al. Demethylation of methylmercury in growing rice plants: An evidence of self-detoxification [J]. *Environmental Pollution*, 2016, 210(210): 113-120.
- [39] GNAMUŠ A, BYRNE A R, HORVAT M. Mercury in the soil-plant-deer-predator food Chain of a temperate forest in Slovenia [J]. *Environmental Science & Technology*, 2000, 34(16): 3337-3345.
- [40] TANG Z, FAN F, WANG X, et al. Mercury in rice (*Oryza sativa* L.) and rice-paddy soils under long-term fertilizer and organic amendment [J]. *Ecotoxicology & Environmental Safety*, 2018, 150: 116-122.