

硒对土壤中汞形态及其生物有效性的影响*

燕敏^{1,2} 郭建阳¹ 冯新斌¹ 张超^{1,2} 仇广乐^{1**}

(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 550002; ²中国科学院大学, 北京 100049)

摘要 利用连续浸提法研究了硒对稻田土壤中汞的形态分布及其生物有效性的影响。结果显示: 加硒前后土壤中汞均以有机结合态、元素态和硫化物态为主, 这三者占土壤总汞含量的90%以上, 而生物有效态汞(包括模拟胃酸提取态和水溶态)仅占土壤总汞含量的0.27%。加硒对土壤中有机结合态和元素态汞的影响最为显著, 随着硒添加浓度的增加, 有机结合态汞的相对含量呈逐渐下降的趋势, 而元素态汞相反, 但土壤中其他形态的汞含量变化不显著。加硒可有效降低土壤中无机汞和甲基汞的生物有效性。结合土壤中汞形态及其生物有效性的变化可以推测: 有机结合汞是维持土壤中生物有效态汞的重要补偿来源, 当其转化成更为惰性的元素汞后, 影响有机结合态汞与生物有效态汞之间的平衡, 可能是导致土壤中汞生物有效性降低的主要因素。

关键词 汞; 硒; 化学形态; 生物有效性; 土壤

中图分类号 X53 文献标识码 A 文章编号 1000-4890(2015)5-1402-05

Effects of selenium on mercury speciation and its bioavailability in paddy soils. YAN Min^{1,2}, GUO Jian-yang¹, FENG Xin-bin¹, ZHANG Chao^{1,2}, QIU Guang-le^{1**} (¹State Key Laboratory of Environmental Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guiyang 550002, China; ²University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China). *Chinese Journal of Ecology*, 2015, 34(5): 1402-1406.

Abstract: The influence of selenium (Se) supplementation on mercury (Hg) speciation and its bioavailability in paddy soil was investigated using the sequential selective extraction method. Results showed that organo-chelated Hg, elemental Hg, and sulfide Hg were dominant, accounting for more than 90% of the total Hg in soils both with and without Se supplementation. The bioavailable portion of Hg in soil was limited, accounting for only 0.27% of the total. Se supplementation had a significant influence on the abundances of organo-chelated Hg and elemental Hg, but little influence on its other forms. The abundance of organo-chelated Hg was gradually decreased with the increase of Se supplementation in soils, while the change of elemental Hg was opposite. Se supplementation greatly mitigated the bioavailability of Hg in soils. We postulate that organo-chelated Hg is the important source for the bioavailable portion of Hg in soils. The shift of the balance between organo-chelated Hg and bioavailable Hg in soils is probably the main reason for the decreased bioavailability of Hg when the soils were added with Se.

Key words: mercury; selenium; chemical speciation; bioavailability; soil.

DOI:10.13292/j.1000-4890.20150311.040

自1967年Parizek等(1967)首次报道了硒汞拮抗作用以来, 针对水生食物链中硒-汞相互作用的研究一直备受关注(Jin *et al.*, 1997; Belzile *et al.*, 2006; Yang *et al.*, 2008)。近年来, 针对陆地生态系统中硒-汞相互作用的研究亦逐渐增多。据报道, 低

浓度的Se可有效降低Hg对马齿苋(*Portulaca oleracea* L.)的毒性(Thangavel *et al.*, 1999)。Zhang等(2012)发现, 贵州万山汞矿区的稻米中无机汞、甲基汞含量与硒的含量呈明显的负相关关系, 而Zhao等(2014)和Wang等(2014)的工作进一步证实土壤添加Se在一定程度上可减少水稻对汞的吸收积累。这些工作均显示硒对土壤中汞的毒性及其生物有效性有一定的拮抗作用, 但对于其内在的原因却鲜有

* 国家重点基础研究发展计划项目(2013CB430004)、国家自然科学基金项目(41373135、41273152和41173126)资助。

** 通讯作者 E-mail: qiuguangle@vip.skleg.cn

收稿日期: 2015-01-02 接受日期: 2015-02-27

报道。

笔者认为, 硒对汞的拮抗作用很可能源于硒的存在改变了土壤中汞的地球化学形态, 进而影响了其生物累积性和毒性。为此, 本研究选择贵州万山土法炼汞区稻田土壤为研究对象, 通过盆栽实验, 利用化学连续浸提法研究加硒条件下土壤中不同形态汞的变化规律, 初步探索硒对土壤中汞生物有效性的影响机理, 以期丰富陆地生态系统硒-汞相互作用认识, 并为我国农田汞污染防治提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 试验材料

土壤采自贵州万山垢溪土法炼汞区, 经风干、研磨、过筛(2 mm)后保存备用。添加的硒为亚硒酸钠(Na_2SeO_3 , 优级纯, 上海一基实业有限公司)。连续浸提液分别为去离子水、 $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{CH}_3\text{COOH} + 0.01 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{HCl}$ 、 $1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{KOH}$ 、 $12 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{HNO}_3$ 、王水和氢氟酸, 所用酸和碱均为优级纯。

1.2 试验方法

试验为野外土壤盆栽实验, 地点在垢溪当地水稻种植田边, 时间为2013年6—9月, 为整个水稻生长季。盆栽实验过程中, 每盆4 kg土装盆, 设1个对照样(CK)和6个添加不同浓度亚硒酸钠的实验样(S1~S6), 硒添加的浓度依次为: 20、40、60、100、300和500 $\text{mg Se} \cdot \text{kg}^{-1}$ 土。添加Se在插秧前1个月实施, 淹水老化平衡4周后进行水稻移栽。移栽水稻的管理按当地生产管理的方式进行。水稻收获后, 稻米经脱米皮、去米糠后变为精米, 精米用植物碎样机粉碎, 待测。土壤样品在室温条件下自然风干, 研磨后过200目筛待测。

1.3 土壤中汞形态化学连续提取

提取方法主要参考Bloom等(2003)的方法并做了一定修改。将土壤中的汞形态划分为以下7种形态(操作定义): 水溶态(F1)、模拟胃酸提取态(F2)、有机结合态(F3)、元素态(F4)、硫化物态(F5)、氢氟酸提取态(F6)和残渣态(F7), 在Bloom等(2003)方法上增加2种形态F6和F7。F6代表土壤中与原生或次生矿物牢固结合的那部分汞, F7类似于土壤中干酪根类的物质, 称为残渣态。具体浸提步骤如下:

水溶态(F1): 取约1 g样品置于离心管中, 加入50 mL去离子水后常温下震荡24 h后, 在 $3500 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 转速下离心20 min, 再用25 mL去离子水淋洗

2遍, 收集上清液于100 mL的硼玻璃瓶中定容。

模拟胃酸提取态(F2): 剩余残渣中加入50 mL $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{CH}_3\text{COOH} + 0.01 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{HCl}$ 常温下震荡24 h后, 在 $3500 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 转速下离心20 min, 再用25 mL $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{CH}_3\text{COOH} + 0.01 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{HCl}$ 淋洗2遍, 收集上清液于100 mL的硼玻璃瓶中定容。

有机结合态(F3): 剩余残渣中加入50 mL $1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{KOH}$ 常温下震荡12 h后, 在 $3500 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 转速下离心20 min, 再用25 mL $1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{KOH}$ 淋洗2遍, 收集上清液; 上清液用 $6 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{HCl}$ 调整pH约为8, 最后于100 mL的硼玻璃瓶中定容。

元素态(F4): KOH 浸提后的残渣中加入50 mL $12 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{HNO}_3$ 常温下震荡12 h后, 在 $3500 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 转速下离心20 min, 再用25 mL $12 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{HNO}_3$ 淋洗2遍, 收集离心液于100 mL的硼玻璃瓶中定容。

硫化物态(F5): 剩余残渣加入50 mL王水常温下震荡12 h后, 在 $3500 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 转速下离心20 min, 再用25 mL王水淋洗2遍, 收集离心液于100 mL的硼玻璃瓶中定容。

氢氟酸提取态(F6): 剩余残渣加入50 mL浓盐酸+氢氟酸(1:1 v/v) 常温下震荡12 h后, 在 $3500 \text{ r} \cdot \text{min}^{-1}$ 转速下离心20 min, 再用25 mL浓盐酸+氢氟酸(1:1 v/v) 淋洗2遍, 收集离心液调节pH值约为中性, 稀释50倍后于100 mL的聚四氟乙烯瓶中定容。

残渣态(F7): 剩余残渣为干酪根类的物质, 其中所含的汞称为残渣态汞。

1.4 总汞测定与数据质量控制

土壤总汞和残渣态汞用LumexRA915+PYRO915+热解系统, 并参照LumexRA915+测汞仪标准操作程序(Kelly 2005)进行测定。其他化学形态的汞用冷原子荧光法(CV-AFS, Tekran 2500, Canada)进行分析, 最低绝对检出限为0.1 pg。

稻米总汞用LumexRA915+PYRO915+热解系统测定(Kelly 2005), 稻米甲基汞经水相乙基化反应-Tenax富集后使用气相色谱分离冷原子荧光(GC-CVAFS, Brooks Rand Model III, USA)测定(仇广乐等2005)。

以空白实验、标准工作曲线、标准物质(CRM021、GBW10020、TORT-2)对实验数据进行质

量控制,土壤标准物质的总汞测定值为 $4.68 \pm 0.02 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($n=4$),参考值为 $4.70 \pm 0.18 \text{ mg} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。与燃烧法直接测定土壤总汞含量的结果相比,连续萃取法的回收率在 86%~98%。

植物标准物质(GBW 10020)的总汞测定值为 $145.75 \pm 1.77 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($n=4$),参考值为 $150 \pm 20 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。甲基汞标准物质(TORT-2)的甲基汞测定值为 $145.35 \pm 6.12 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($n=4$),参考值为 $151 \pm 7.1 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 。

2 结果与分析

2.1 不同形态汞的分布特征

从表1可以看出,不同样品中总汞的含量介于 $3233 \sim 3523 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 相对标准偏差为 3.1%,说明实验取样相对均匀。在对照样品中,有机结合态汞的含量最高(F3, $1952 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$),其次为元素态汞(F4, $625 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)和硫化汞(F5, $606 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$),分别占总汞含量的 55.8%、18.2%和 17.6%,三者之和占总汞含量的 90%以上。土壤加硒后,样品中不同形态汞的含量虽然有所变化,但仍均以 F3、F4 和 F5 为主,三者之和占样品中总汞含量的 94.6%。

2.2 加硒对汞形态的影响

2.2.1 水溶态(F1)、模拟胃酸提取态(F2) 由表1可知,随着硒添加浓度的增加,F1的含量没有发生有规律的变化(S3和S6除外),基本上稳定在 $1.4 \sim 1.9 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,其相对丰度也基本上稳定在 0.04%~0.06%,这说明添加硒对土壤中水溶态汞的含量并没有太大的影响。同样,随着土壤中硒添加浓度的增加,F2的含量在 $4.8 \sim 8.1 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 波动,没有明显的规律性变化,其相对丰度也基本上稳定在 0.21%~0.24%(F3和F5除外)。这说明硒的添加对土壤中模拟胃酸提取态的汞也没有太大的影

响。如果把 F1 和 F2 看作是土壤中生物可利用的汞,很显然,硒的添加对土壤中生物有效态汞的含量及其相对丰度并不会产生明显的影响。

2.2.2 有机结合态(F3) F3 实际上是从土壤中提取的腐殖酸,故这部分汞我们从操作上定义为有机结合态汞。从表1可以看出,与 F1 和 F2 不同,随着土壤中添加硒浓度的增加,F3 的含量呈现非常有规律的变化,由对照样品(CK)中的 $1952 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 逐渐减少到 S6 中的 $748 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,其相对丰度也由 56.8% 逐渐减少到 22.4%。这说明硒添加可有效降低土壤中有机结合态的汞。

2.2.3 元素态(F4) 从表1可以看出,F4和F3一样,其含量也呈现非常有规律的变化。随着土壤中硒添加浓度的增加,F4的含量由对照样品(CK)中的 $625 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 逐渐增加到 S6 中的 $1929 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$,其相对丰度也由 18.2% 逐渐增加到 57.8%。通过相关性分析发现,F3和F4的含量变化显著相关($P=0.001 < 0.01$)。这表明加硒后,土壤中有有机结合态的汞很可能逐渐转化成了元素态汞,但具体的转化机制需要进一步的研究。

2.2.4 硫化物态(F5)、氢氟酸提取态(F6) 从表1可以看出,添加硒前后,F5和F6的含量没有发生明显的变化,它们的波动范围均较小(分别为 $576.6 \sim 839.4 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 和 $67.8 \sim 125.3 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$);同样,F5和F6的相对丰度也在一个较小的范围内波动(分别为 16.6%~25.4%和 2.03%~6.78%)。因此,加硒对土壤中硫化物态的汞和氢氟酸提取态的汞的影响也较小。

2.2.5 残渣态(F7) F7 实际上类似于土壤中干酪根类的物质,由于是最后残留的部分,我们在这里仍定义这部分物质结合的汞称为残渣态的汞。如上所述,传统连续提取方法定义的残渣态汞实际上相当于本方法的 F5+F6+F7。从表1可以看出,土壤中残渣态汞在加硒前后波动较小,在 $5.6 \sim 11.0 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 波动,没有明显的变化趋势。同样,加硒前后其相对丰度也没有明显的变化。这说明加硒对于土壤中残渣态汞的含量及其相对丰度也没有很大的影响。

总之,加硒前后,土壤中活性态的汞(F1和F2)和稳定态的汞(F5、F6和F7)的变化均较小,但强烈影响汞在有机结合态和元素态之间的分布。随着硒添加浓度的增加,土壤中有有机结合态的汞含量显著下降。与之相反,土壤中元素态的汞含量显著上升。

表1 土壤样品中不同形态汞的含量($\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$)

Se 含量 ($\text{mg} \cdot \text{kg}^{-1}$)	F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	总汞
CK	1.9	7.9	1952	625	606	233	8.9	3435
20	1.5	7.7	1678	1122	583	125	5.6	3523
40	1.8	6.7	1268	1168	649	131	9.2	3233
60	4.9	5.1	1154	1397	578	92.4	11	3243
100	1.4	8.1	1001	1382	839	67.8	8.5	3307
300	1.4	4.8	919	1609	696	127	10	3368
500	2.9	7.2	748	1929	577	67.9	8.9	3341

F1 水溶态; F2 模拟胃酸提取态; F3 有机结合态; F4 元素态; F5 硫化物态; F6 氢氟酸提取态; F7 残渣态。

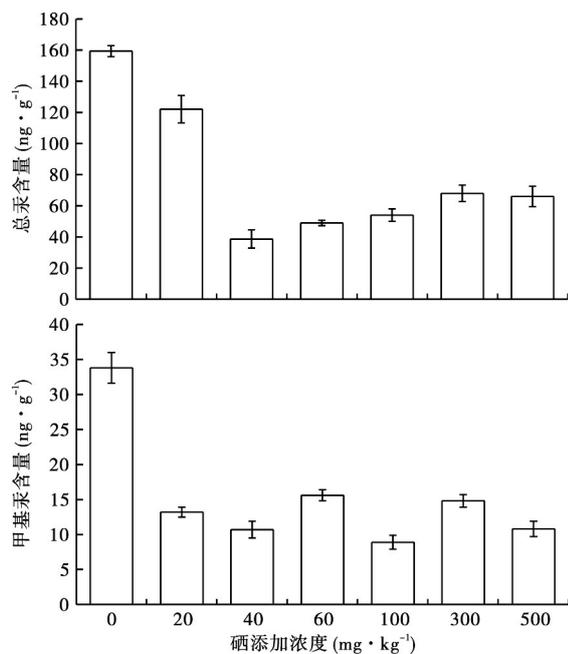


图1 不同硒添加浓度下稻米总汞和甲基汞的含量
Fig.1 Concentrations of THg and MeHg in rice grain with various levels of Se treatments

2.3 土壤中汞形态的变化对其生物有效性的影响

为探讨土壤中汞形态的变化对其生物有效性的影响,我们同时测定了土壤培育的水稻稻米中总汞和甲基汞的含量,其结果如图1所示。从图1可以看出,对照组稻米总汞和甲基汞含量分别高达159和33.8 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ 均高于我国食品卫生限量标准中规定的粮食中最大总汞浓度20 $\mu\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ (GB 2762—2012)。而添加硒后,稻米中总汞和甲基汞的含量均显著下降。不同处理组与对照组的差异显著性分析发现,稻米总汞、甲基汞含量与CK间差异显著($P < 0.05$)。总汞和甲基汞含量最大减少比例达69%和74%,这表明添加硒可有效降低土壤中汞的生物可利用性。

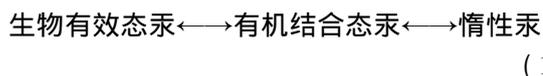
3 讨论

硒对土壤中汞生物有效性的影响已有过相关的研究。Wang等(2014)认为,添加硒可加大土壤对汞的固定作用,使得汞的生物可利用性降低同时抑制无机汞向甲基汞的转化,最后使得植物吸收和可利用的无机汞和甲基汞均减少。Feng等(2013)认为,硒可与汞形成对特殊物质(如,蛋白质中的半胱氨酸醇基)的相互竞争,以此来抵御重金属的伤害。

土壤中水溶态汞(F1)以游离态的 Hg^{2+} 为主,是最容易发生迁移和被生物利用的汞形态(Issaro

et al. 2009),而模拟胃酸提取态汞(F2)则代表汞在生物体内的可利用性(Bloom et al. 2003)。元素态汞是指被土壤快速固定而不能进一步氧化或释放的零价汞(Bloom et al. 2003),但这部分汞易向大气迁移(Revis et al. 1989)。硫化物态汞(F5)是 Hg^{2+} 与 S^{2-} 、 Se^{2-} 结合的部分,是非常稳定的汞形态。而氢氟酸提取态汞(F6)是土壤中与原生或次生矿物牢固结合的那部分汞(Bloom et al. 2003),也非常稳定。目前,关于硒如何影响植物对汞的吸收、土壤中汞的地球化学形态的转化及相关的机制还未见报道。

本研究证实,加硒会对土壤中汞的地球化学形态产生影响,进而影响土壤中汞的生物有效性。笔者认为,加硒后土壤中有机结合态的汞含量明显下降,转化成了更为惰性的元素态汞,这可能是导致土壤中汞的生物可利用性降低的重要原因。我们假设土壤中不同地球化学形态的汞之间实际上处于一个动态的平衡(式1)。在加硒条件下土壤中有机结合态汞大部分向元素汞转化,影响了有机结合态汞和生物有效态汞之间的平衡,使水稻生长过程中土壤中生物有效性汞的含量显著下降,从而导致土壤中汞的生物可利用性明显下降。



然而,从研究结果来看,加硒对土壤中汞的生物有效性影响的内在机制并非这么简单。首先,从土壤中生物有效态汞的变化来看,加硒前后土壤中生物有效态汞的含量并没有发生明显变化,这似乎与文中稻米中无机汞和甲基汞的显著下降相矛盾,这可能涉及到一个动力学的问题。由于本研究测定结果是一个加硒前后土壤中不同形态汞的平衡浓度,无法反映动力学的状态。可能的情况是,土壤中生物有效态的汞在加硒后发生了明显的下降,使水稻在生长过程中暴露的生物有效态汞的含量较低,导致土壤中汞生物有效性的降低。当水稻收获后,土壤中生物有效态汞与有机结合态汞重新达到平衡,因而最终测定的生物有效态汞的水平并没有明显下降,但这需要进一步的实验来证实。其次,从土壤加硒后生物有效性降低的内在机制来看,由于缺乏土壤中硒和汞具体的化学形态的分析,使得在推导过程中缺乏有力的证据支持,这也需要进一步的工作来验证。

值得一提的是,本试验对照样品中有机结合态汞占样品中总汞含量的56.8%,这与传统的BCR连

续提取法(Rauret *et al.* ,1999) 和 Tessier 连续浸提法等(Tessier *et al.* ,1979) 的研究结果有明显的差异。根据传统的连续提取法,该地区土壤样品中有机结合态的汞仅占样品中总汞含量的 20% 左右(包正铎等 2011) 。本研究中,F5+F6+F7 相当于传统意义上的残渣态,而本研究中 F5+F6+F7 在不同样品中占总汞含量的 23.2% ,这与传统提取方法得到的残渣态汞的相对含量(79.65% ~ 85.77%) 也有很大差异(李永华等 2007; 包正铎等 2011) 。导致这种差异的原因与不同方法所用的提取液和具体的提取方法有关,同时也可能与土壤本身的性质(如土壤是否含有较多矿渣等) 有关。针对不同方法之间导致的差异可通过对同一标准物质进行对比研究来进一步验证。

4 结论

加硒对于土壤中活性态的汞和稳定态的汞的影响均较小,但强烈影响汞在有机结合态和元素态之间的分布。随着加硒浓度的增加,土壤中有机结合态的汞含量显著下降。与之相反,土壤中元素态的汞含量显著上升。

加硒可有效降低土壤中汞的生物可利用性,这可能与土壤中有机结合态汞含量的下降,从而影响土壤中有机结合态和生物有效态汞之间的平衡,导致水稻生长过程中暴露的生物有效态汞含量的下降有关。

加硒强烈影响土壤中汞的地球化学形态,尤其有机结合态汞和元素态汞之间的相互转化,这为以后的研究指出新的方向: 加硒可显著降低土壤中有机结合态汞的含量,这可能是导致土壤中汞生物有效性降低的重要原因,但具体的内在机制仍需要进一步工作来证实。

参考文献

包正铎,王建旭,冯新斌,等. 2011. 贵州万山汞矿区污染土壤中汞的形态分布特征. *生态学杂志*, **30**(5): 907-913.

李永华,杨林生,李海蓉,等. 2007. 湘黔汞矿区土壤汞的化学形态及污染特征. *环境科学*, **28**(3): 654-658.

仇广乐,冯新斌,梁 琰,等. 2005. 溶剂萃取-水相乙基化衍生 GC-CVAFS 联用测定苔藓样品中的甲基汞. *分析测试学报*, **24**(1): 29-32.

Bloom NS, Preus E, Katon J, *et al.* 2003. Selective extractions to assess the biogeochemically relevant fractionation of inorganic mercury in sediments and soils. *Analytica Chimica*

Acta, **479**: 233-248.

Belzile N, Chen YW, Gunn JM, *et al.* 2006. The effect of selenium on mercury assimilation by freshwater organisms. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences*, **63**: 1-10.

Feng R, Wei C, Tu S. 2013. The roles of selenium in protecting plants against abiotic stressed. *Environmental and Experimental Botany*, **87**: 58-68.

Issaro N, Abi-Ghanem C, Bermond A. 2009. Fractionation studies of mercury in soils and sediments: A review of the chemical reagents used for mercury extraction. *Analytica Chimica Acta*, **631**: 1-12.

Jin LJ, Guo P, Xu XQ. 1997. Effect of selenium on mercury methylation in anaerobic lake sediments. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, **59**: 994-996.

Kelly H. 2005. Standard Operating Procedures, Ohio Lumex Mercury Analyzer (Lumex RA 915). Manhattan, US: Lower Manhattan Development Corporation.

Parizek J, Ostádalová I. 1967. The protective effect of small amounts of selenite in sublimate intoxication. *Experientia*, **23**: 142-143.

Rauret G, Lopez-Sanchez JF, Sahuquillo A, *et al.* 1999. Improvement of the BCR three step sequential extraction procedure prior to the certification of new sediment and soil reference materials. *Journal of Environmental Monitoring*, **1**: 57-61.

Revis NW, Osborne TR, Holdsworth G, *et al.* 1989. Distribution of mercury species in soil from a mercury contaminated site. *Water, Air, and Soil Pollution*, **45**: 105-113.

Tessier A, Campbell PGC, Bisson M. 1979. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Analytical Chemistry*, **51**: 844-851.

Thangavel P, Sulthana AS, Subburam V. 1999. Interactive effects of selenium and mercury on the restoration potential of leaves of the medicinal plant, *Portulaca oleracea* Linn. *Science of the Total Environment*, **243-244**: 1-8.

Wang X, Tam NFY, Fu S, *et al.* 2014. Selenium addition alters mercury uptake, bioavailability in the rhizosphere and root anatomy of rice (*Oryza sativa*). *Annals of Botany*, **114**: 271-278.

Yang DY, Chen YW, Gunn JM, *et al.* 2008. Selenium and mercury in organisms: Interactions and mechanisms. *Environmental Reviews*, **16**: 71-92.

Zhang H, Feng XB, Zhu JM, *et al.* 2012. Selenium in soil inhibits mercury uptake and translocation in rice (*Oryza sativa* L.). *Environmental Science and Technology*, **46**: 10040-10046.

Zhao JT, Li YF, Li YY, *et al.* 2014. Selenium modulates mercury uptake and distribution in rice (*Oryza sativa* L.), in correlation to mercury species and exposure level. *Metallomics*, **6**: 1951-1957.

作者简介 燕 敏,女,1989年生,硕士研究生,研究方向为表生环境汞的生物地球化学。E-mail: 997536366@qq.com
责任编辑 魏中青