

# 150年以来红原雨养型泥炭中高分辨的汞同位素沉积记录

侍文芳<sup>①②</sup>, 冯新斌<sup>①\*</sup>, 张干<sup>③</sup>, 明荔莉<sup>②③</sup>, 尹润生<sup>①②</sup>, 赵志琦<sup>①</sup>, 王静<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 550002;

② 中国科学院研究生院, 北京 100049;

③ 中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室, 广州 510640

\* 联系人, E-mail: fengxinbin@vip.skleg.cn

2010-08-19 收稿, 2010-12-09 接受

国家自然科学基金资助项目(40825011)

**摘要** 利用 LUMEX 915 和多接收等离子体质谱(MC-ICP-MS)等仪器, 分别对红原一个约 150 a ( $^{210}\text{Pb}$  定年)时间跨度的泥炭剖面进行总汞含量和汞同位素比值测定. 发现泥炭中汞含量从底部到表层逐渐增加, 汞同位素  $\delta^{202}\text{Hg}$  从底部至表层呈变轻的趋势, 变化范围分别在 16.7~101.3 ng/g 和  $(-0.44\% \pm 0.14\%) \sim (-1.45\% \pm 0.22\%)$  之间. 研究表明, 工业革命不仅使研究区大气受到明显汞的污染, 也使汞同位素组成呈现出变轻的趋势, 这说明人类活动排放的汞同位素与自然排放的汞同位素有差异.

**关键词**

泥炭  
雨养型  
汞  
同位素  
工业化

泥炭是沼泽植物遗体在沼泽中经泥炭化作用形成的一种松散富含水分的有机质聚积物<sup>[1,2]</sup>, 且其基本不受到如地表径流等外界干扰<sup>[3]</sup>, 雨养型泥炭作为特殊的媒介, 其中的养分几乎全部来自于大气降水<sup>[4]</sup>, 而汞作为一种可以在大气中长距离迁移的重金属污染物, 可以通过湿沉降(雨雪)、干沉降、植物落叶等方式进入到泥炭中. 因此, 雨养型泥炭中汞的含量从一定程度上可以代表大气中汞污染的特征<sup>[5-8]</sup>. 通过雨养型泥炭沉积记录, 可以用来研究大气中重金属污染历史. 自 Martinez-Cortizas 等人<sup>[4]</sup>对西班牙泥炭中汞的含量进行研究以来, 很多学者对泥炭中总汞、甲基汞的含量、沉降通量、汞与其他重金属的关系, 以及定年方式对泥炭中汞沉降通量计算的影响、不同处理方法对泥炭中汞的含量的影响、汞在历史时期的分布、汞对气候的响应等许多方面进行了研究<sup>[7,9-16]</sup>.

近年来随着分析测试技术的进步, 同位素测定技术也得到了很大的突破, 而 MC-ICP-MS 技术的广泛应用, 使铜、铁、锌、铬、钼、硒、汞等重元素的稳

定同位素比值的准确测定成为现实. 汞在自然界有 7 种稳定同位素, 分别是  $^{196}\text{Hg}(0.15\%)$ ,  $^{198}\text{Hg}(10.02\%)$ ,  $^{199}\text{Hg}(16.84\%)$ ,  $^{200}\text{Hg}(23.13\%)$ ,  $^{201}\text{Hg}(13.22\%)$ ,  $^{202}\text{Hg}(29.80\%)$  和  $^{204}\text{Hg}(6.85\%)$ . 据已有的研究发现, 汞在自然界不仅广泛存在同位素质量分馏, 如陨石<sup>[17,18]</sup>、火山热液系统<sup>[19]</sup>、汞矿<sup>[20]</sup>、煤<sup>[21]</sup>、土壤<sup>[22]</sup>等; 同时汞也存在同位素非质量分馏, 如沉积物<sup>[23]</sup>、植物<sup>[24]</sup>、水生系统<sup>[25,26]</sup>等. 这些研究无疑说明汞的同位素在示踪环境汞污染来源及指示汞的生物地球化学过程的研究中有着广阔的应用前景.

目前汞同位素的研究已经在很多方面都有所突破, 但对于大气中汞同位素组成的研究却非常少. 由于大气中汞的含量非常低( $\text{ng}/\text{m}^3$ ), 而测定汞同位素时必须要求溶液中汞浓度达到  $\text{ng}/\text{mL}$  的量级<sup>[27,28]</sup>, 因此直接对大气的汞同位素特征的研究较少<sup>[29]</sup>. 本文以红原地区时间跨度为 150 a 的泥炭柱为研究对象, 进行高精度的汞浓度及同位素组成测定, 旨在探索工业化对大气中汞的污染及人为源和自然源汞的同

**英文版见:** Shi W F, Feng X B, Zhang G, et al. High-precision measurement of mercury isotope ratios of atmospheric deposition over the past 150 years recorded in a peat core taken from Hongyuan, Sichuan Province, China. *Chinese Sci Bull*, 2011, 56, doi: 10.1007/s11434-011-4396-0

位素组成特征.

## 1 研究区概况

研究区位于四川省阿坝羌族自治州,地处我国高原泥炭沼泽发育最为典型的区域——若尔盖-红原泥炭聚集区,该区是青海、甘肃、四川三省的交接地带,在地貌单元上位于青藏高原东北缘的红原-若尔盖平坦高原区红原丘状高原区,处于白河上游南侧欧穷玛柯洼地(图1).洼地高程3490~3532 m,地势南高北低、东高西低,比降大、由南向北流向白河.周围山脊舒缓,海拔3700 m左右.该区属亚高山草甸草原带,大陆性高原寒温带季风型气候,长冬无夏,春秋短促,区内年平均气温1.1℃,1月均温-10.3℃,7月均温10.9℃,昼夜温差大,日照时间长<sup>[1,2,30~33]</sup>.

由于汞在若尔盖高原显示为明显的低背景分布,是四川省西部典型的表生元素缺乏的地球化学区<sup>[34]</sup>,所以河流冲刷作用带入泥炭地的汞量相当少,另外,红原研究区泥炭属河流阶地泥炭地<sup>[35]</sup>,此处植物主要依靠大气降水生长,泥炭也主要因大气降水而发育,并同时接受大气物质沉积,因此该区泥炭中汞主要来源是大气干湿沉降(雨水、雪水、颗粒物等).

## 2 实验部分

### 2.1 样品采集及预处理

泥炭样品的采集于2006年5月24日完成,采样点位于32°46.774'N, 102°30.964'E,海拔3510 m.使

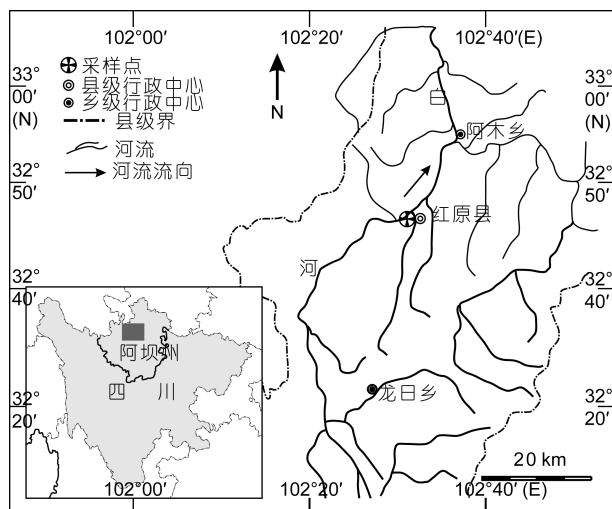


图1 采样点位置

用不锈钢 Wardenaar 取样器采集了一根 10 cm×11 cm×25 cm 的泥炭柱样,样品采集后以铝箔密封带回实验室置于-18℃保存.冷冻的泥炭柱按 0.5 cm 的厚度分样,经冷冻干燥 48 h 后,研磨至小于 80 目后保存待测.

### 2.2 铅同位素定年

泥炭样  $^{210}\text{Pb}$  活度采用美国 EG&GORTEC 公司生产的高纯锗井型探测器(HP Ge GWL-120-15)测定.通过直接测量  $^{210}\text{Pb}$  能量为 46.5 keV 的  $\gamma$  光子来确定  $^{210}\text{Pb}$  的含量.定年采用稳定初始放射性通量模式(constant initial  $^{210}\text{Pb}$  concentration, CIC)进行计算,得出沉积速率  $V=0.16$  cm/a.

### 2.3 总汞测定

样品中总汞含量用俄罗斯生产的 LUMEX RA915 和 PYRO915 测定.该方法是基于高频调制偏振光的塞曼原子吸收技术(ZAAS-HFM),采用热解法检测样品中的汞含量<sup>[36]</sup>.样品按 10% 的比例进行重复测定,相对误差在 10% 以内;同时以标准物质(GBW07305, GBW07405)进行校正,回收率为 80%~120%.

### 2.4 汞同位素测定

泥炭样品用 10 mL 超纯浓硫酸和浓硝酸(2:8(v/v))溶解,静置 24 h 后在 95℃ 水浴消解 6~8 h 至无明显反应,取出前 0.5 h 加入 BrCl 溶液 1 mL,用超纯水定容至 15 mL、静置遮光保存 24 h 后,用 0.45  $\mu\text{m}$  的滤膜(Milipore)将消解液过滤,然后将消解液中总汞浓度调整在 1.5~5 ng/mL 范围待测.消解液中汞浓度采用  $\text{SnCl}_2$  还原,冷蒸气原子荧光光谱法(CVAFS, Tekran 2500)测定,同时进行空白及标准物质的分析,标准物质(GBW07305, GBW10020)回收率为 80%~120%.由于部分样品量很少(<0.2 g),达不到测定同位素所需的要求(0.6~2 g),因此我们对相邻的样品进行了合并,最后对 27 个混合样品进行汞同位素比值测定.

样品中汞的同位素比值用 NU Plasma MC-ICP-MS (NU Plasma, Nu Instrument Ltd., UK)进行测定.汞标准溶液(NIST 3133)和样品的消解液采用汞蒸气发生器(CETAC HGX200)进行在线连续流进样,利用  $\text{SnCl}_2$  将汞还原为  $\text{Hg}^0$ ;利用 Apex-Q (Elemental Scientific Inc., USA)将 Tl(NIST 997)气溶胶引入到汞

蒸气发生器(CETAC HGX200)与 Hg<sup>0</sup> 混合, 并由载气高纯 Ar 将混合气体携带到等离子源进行检测. 测得的 <sup>205</sup>Tl/<sup>203</sup>Tl 比值对仪器进行质量歧视校正. 具体的仪器参数、法拉第杯的设置、计算方法、测试过程等均参照文献[28].

本次研究只对 Hg 的 4 个同位素比值(<sup>202</sup>Hg/<sup>198</sup>Hg, <sup>201</sup>Hg/<sup>198</sup>Hg, <sup>200</sup>Hg/<sup>198</sup>Hg, <sup>199</sup>Hg/<sup>198</sup>Hg)和 <sup>205</sup>Tl/<sup>203</sup>Tl 的比值进行测定. 汞的同位素比值用 δ<sup>XXX</sup>Hg(‰)表示, 汞的非质量分馏用 Δ<sup>XXX</sup>Hg(‰)表示, 计算公式分别如下<sup>[27]</sup>:

$$\delta^{XXX}\text{Hg}(\text{‰})=1000\times\left[\frac{({}^{XXX}\text{Hg}/{}^{198}\text{Hg})_{\text{unknown}}/({}^{XXX}\text{Hg}/{}^{198}\text{Hg})_{\text{NIST 3133}}-1}{},\right] \quad (1)$$

$$\Delta^{199}\text{Hg}(\text{‰})=\delta^{199}\text{Hg}-(0.252\times\delta^{202}\text{Hg}), \quad (2)$$

$$\Delta^{200}\text{Hg}(\text{‰})=\delta^{200}\text{Hg}-(0.502\times\delta^{202}\text{Hg}), \quad (3)$$

$$\Delta^{201}\text{Hg}(\text{‰})=\delta^{201}\text{Hg}-(0.752\times\delta^{202}\text{Hg}), \quad (4)$$

其中 XXX 分别指 202, 201, 200, 199.

### 3 结果与讨论

#### 3.1 泥炭剖面总汞变化

样品总汞含量随深度增加呈逐渐降低的趋势, 最底部泥炭汞含量为 16.7 ng/g, 顶部泥炭汞含量则升高至大于 100 ng/g(图 2). 泥炭汞含量可以明显分为 3 个阶段: (1) 1840~1900 年, 泥炭柱中总汞浓度基本稳定, 汞含量平均值为 19 ng/g; (2) 1900~1985 年, 泥炭汞含量增加了近 1 倍, 平均为 37 ng/g; (3) 1985 年以来, 汞含量迅速升高, 最高值已超过 100 ng/g.

这表明, 1900 年以前, 研究区大气汞含量维持在较稳定的水平, 欧洲和北美早期的工业化汞排放对该区域的影响还很小, 因此泥炭中汞可能主要来自

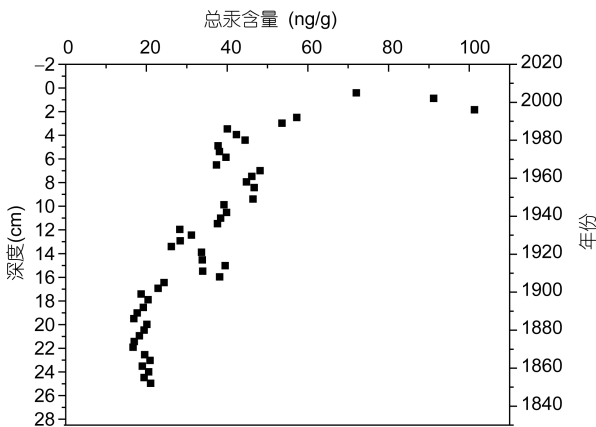


图 2 泥炭中总汞含量随深度和时间的变化

自然源; 进入 20 世纪后, 随着工业化进程迅速相继在欧洲和美洲等地区展开, 特别是煤等化石燃料的燃烧向环境中释放了大量的汞, 而大气中的汞随季风等参与到全球大气循环中, 对偏远地区也产生了影响并导致研究区大气汞含量的增加. 20 世纪 80 年代后, 我国经济迅猛发展, 使得研究区大气汞含量大幅增加.

#### 3.2 泥炭剖面汞同位素变化

在泥炭剖面中, 汞同位素比值 δ<sup>202</sup>Hg 在 (-0.44‰±0.14‰)~(-1.45‰±0.22‰) 范围内变化. 从下到上可分为 3 个阶段(图 3): (1) 1840~1900 年, 泥炭中汞的同位素比值 δ<sup>202</sup>Hg 介于 -0.44‰~-0.84‰ 之间, 平均值为 -0.57‰±0.13‰; (2) 1900~1985 年, 泥炭中汞的同位素比值 δ<sup>202</sup>Hg 明显变轻, 平均值为 -0.87‰±0.16‰; (3) 1985 年以来, δ<sup>202</sup>Hg 比值进一步变轻, 平均值为 -0.99‰±0.05‰.

运用 Foucher 等人<sup>[22]</sup>提出的二元汞同位素的混合模型, 并结合不同时期泥炭中总汞含量的变化, 对上述泥炭中汞的同位素比值进行重新运算, 可以分别得出欧洲和北美工业化排放汞的同位素组成与我国人为活动排放汞的同位素组成. 计算公式如下:

$$\delta^{202}\text{Hg}_{\text{样品}}=X_{\text{自然源}}\times\delta^{202}\text{Hg}_{\text{自然源}}+X_{\text{人为源}}\times\delta^{202}\text{Hg}_{\text{人为源}}, \quad (5)$$

$$X_{\text{自然源}}+X_{\text{人为源}}=1, \quad (6)$$

其中 δ<sup>202</sup>Hg<sub>自然源</sub> 和 δ<sup>202</sup>Hg<sub>人为源</sub> 分别代表自然源和人为源排放的汞的同位素组成特征, X<sub>自然源</sub> 和 X<sub>人为源</sub> 分别代表自然源和人为源排放的汞在不同时期泥炭中的贡

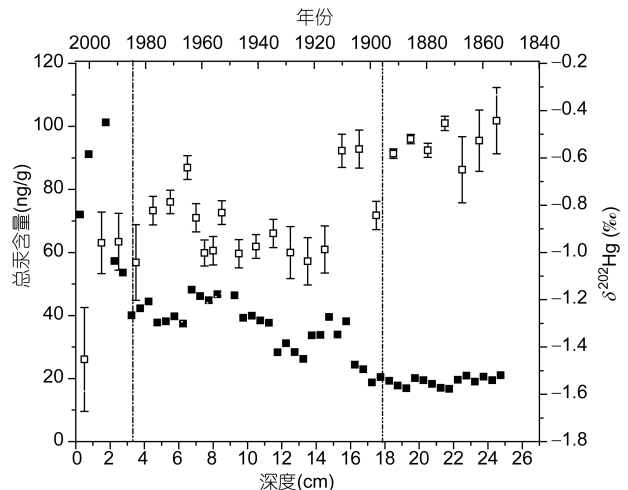


图 3 泥炭中总汞含量、汞同位素 δ<sup>202</sup>Hg 随深度和时间的变化

献率. 我们认为 1900 年前, 泥炭中的汞全部来源于自然排放源, 而之后的时期, 泥炭中的汞则是人为源与自然源排放的二元混合. 经过计算得出, 欧洲和北美工业化过程中排放的汞的同位素  $\delta^{202}\text{Hg}$  比值为  $-1.16\text{‰} \pm 0.15\text{‰}$ , 而改革开放以来我国人为活动排放的汞的同位素  $\delta^{202}\text{Hg}$  比值为  $-1.12\text{‰} \pm 0.08\text{‰}$ . 这一结论充分证明人为源排放汞与自然源排放汞具有显著不同的同位素组成特征, 同时也表明人为源排放的汞较自然源排放的汞组成稍轻.

图 4 表示的是奇数同位素  $^{199}\text{Hg}$  和  $^{201}\text{Hg}$  的非质量相关分馏. 几乎所有的样品中奇同位素  $\delta^{199}\text{Hg}$  和  $\delta^{201}\text{Hg}$  表现为正的非质量相关分馏, 即落于质量分馏线(MDF line)上方, 说明样品倾向于富集奇同位素.

对于非质量分馏, 国外已经有了一些报道<sup>[37,38]</sup>. Bergquist 和 Blum<sup>[25]</sup>发现汞( $\text{Hg}^{2+}$ 和  $\text{MeHg}$ )在水环境中发生光致还原反应的过程中会导致非质量分馏, 奇同位素倾向于富集在剩余液体中, 并且  $\Delta^{201}\text{Hg}$  与  $\Delta^{199}\text{Hg}$  之间分别呈 1:1 和 1:1.36 的线性关系, 产生这一关系的原因是由于磁同位素效应(magnetic isotope effect). Zheng 等人<sup>[38]</sup>又对水环境中不同浓度的  $\text{Hg}^{2+}$  在不同 DOC 浓度下发生光致还原反应产生的非质量分馏进行了研究, 发现  $\Delta^{199}\text{Hg}/\Delta^{201}\text{Hg}$  值不是恒定的, 在一定条件下可以达到 1:1.543. Estrade 等人<sup>[39]</sup>在进行液态汞的平衡态热力学蒸发的实验中也发现了 Hg 同位素非质量分馏的存在, 但是该实验结果却显示奇同位素倾向于富集在产物气态汞中, 并且其  $\Delta^{199}\text{Hg}$  与  $\Delta^{201}\text{Hg}$  比值约为  $2.0 \pm 0.6$ , 这与根据核体积效应(nuclear volume effect)理论计算得出的数值( $\Delta^{199}\text{Hg}/\Delta^{201}\text{Hg} =$

2.47)十分相似.

研究得出的  $\Delta^{201}\text{Hg}/\Delta^{199}\text{Hg}$  数据如图 5 所示. 空心的点表示位于剖面 16 cm 以下(20 世纪之前)的样品的同位素, 从图 5 上可看出, 这 8 个样品的  $\Delta^{201}\text{Hg}/\Delta^{199}\text{Hg}$  分布较为规律, 均位于呈 1:1 的线性关系线附近, 说明 16 cm 以下, 也即 20 世纪之前, 主要来源于自然源排放的泥炭中的汞同位素非质量分馏应该是磁同位素效应主导产生的, 也即泥炭中汞的同位素非质量分馏是由光致还原主导造成的. 在 20 世纪后, 样品的  $\Delta^{201}\text{Hg}$  与  $\Delta^{199}\text{Hg}$  比值分布比较散乱, 原因可能是工业革命之后, 各种不同人为排汞源排放汞的非质量分馏机制不同.

泥炭中汞同位素的非质量分馏产生影响的原因会很多, 例如: 甲基化作用、去甲基化作用、光致氧化<sup>[40]</sup>、泥炭中 Hg 的再释放<sup>[10,15]</sup>等. 但是到目前为止, 对于上述这些过程对汞同位素分馏的影响尚不清楚, 也无法确定各个影响因素的贡献率.

虽然无法肯定工业化后泥炭中汞同位素的非质量分馏是何种原因起主导作用造成, 但我们的结果可以说明, 自然源和人为源向大气排放的汞具有不同的同位素组成. 这是因为这两种源向大气排放汞的过程和机理方面存在显著差异<sup>[41]</sup>, 多数自然源排汞是在常温下缓慢进行, 而人为源则是在高温下快速排放; 自然源是通过在微生物还原、光致还原和化学还原等作用下将二价汞转化成单质汞排放到大气中的; 而人为源则是在高温下通过热还原作用将二价汞转化成单质汞排放到大气中<sup>[41]</sup>. 由于以上排汞过程和机理的差异, 最终导致不同来源汞的同位素组成的差异.

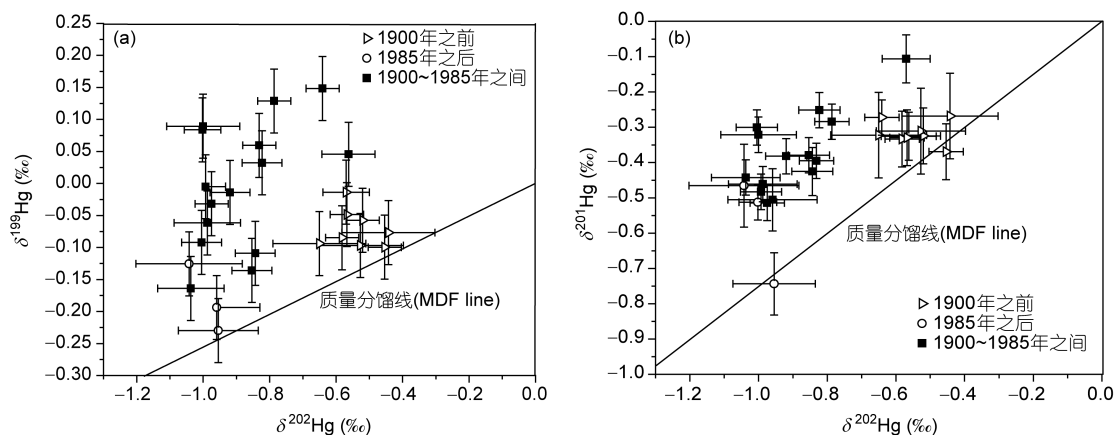


图 4 泥炭中汞同位素  $^{199}\text{Hg}$ (a)和  $^{201}\text{Hg}$ (b)的非质量分馏

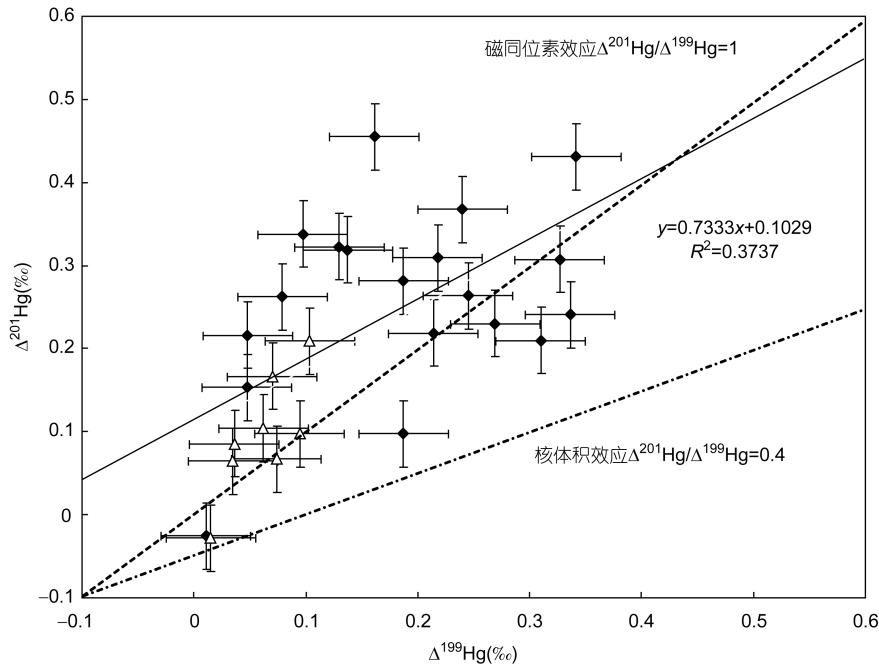


图5 泥炭中汞同位素 $\Delta^{199}\text{Hg}$ 和 $\Delta^{201}\text{Hg}$ 的关系

#### 4 结语

本文对青藏高原东北部的红原泥炭中汞的含量及同位素组成进行了测定,在工业革命之后,汞含量在泥炭中呈逐渐增加的现象,这明显说明了工业化之后,人类向大气的排汞逐渐增加.通过研究汞同位素的特征,发现工业革命前后,汞同位素 $\delta^{202}\text{Hg}$

具有明显的差异,人为源的汞稍轻于自然源的汞;这一差异同时也表现出汞的奇同位素 $^{201}\text{Hg}$ 和 $^{199}\text{Hg}$ 的非质量分馏, $\Delta^{201}\text{Hg}/\Delta^{199}\text{Hg}$ 在工业革命前后也呈现不同的特征,表示不同源(人为源和自然源)排放的汞具有不同的同位素组成特征及分馏机制.这为我们将来进一步研究来自各种排放源的汞的特征奠定初步基础.

#### 参考文献

- 1 王华,洪冰,朱咏焯,等.青藏高原泥炭腐殖化度的古气候意义.科学通报,2004,49:686-691
- 2 洪冰,林庆华,朱咏焯,等.红原泥炭苔草的碳同位素组成与全新世季风变化.矿物岩石地球化学通报,2003,22:99-103
- 3 Rey-Salgueiro L, Pontevedra-Pombal X, Alvarez-Casas M, et al. Comparative performance of extraction strategies for polycyclic aromatic hydrocarbons in peats. J Chromatogr A, 2009, 1216: 5235-5241
- 4 Martinez-Cortizas A, Pontevedra-Pombal X, Garcia-Rodeja E, et al. Mercury in a Spanish peat bog: Archive of climate change and atmospheric metal deposition. Science, 1999, 284: 939-942
- 5 Givélet N, Roos-Barraclough F, Goodsite M E, et al. A 6000-years record of atmospheric mercury accumulation in the high Arctic from peat deposits on Bathurst Island, Nunavut, Canada. J Phys, 2003, 107: 545-548
- 6 Roos-Barraclough F, Martinez-Cortizas A, Garcia-Rodeja E, et al. A 14500 year record of the accumulation of atmospheric mercury in peat: Volcanic signals, anthropogenic influences and a correlation to bromine accumulation. Earth Planet Sci Lett, 2002, 202: 435-451
- 7 Biester H, Kilian R, Franzen C, et al. Elevated mercury accumulation in a peat bog of the Magellanic Moorlands, Chile (53 degrees S)—An anthropogenic signal from the Southern Hemisphere. Earth Planet Sci Lett, 2002, 201: 609-620
- 8 Jensen A, Jensen A. Historical deposition rates of mercury in Scandinavia estimated by dating and measurement of mercury in cores of peat bogs. Water Air Soil Poll, 1991, 56: 769-777
- 9 Golovatskaya E A, Lyapina E E. Distribution of total mercury in peat soil profiles in West Siberia. Contemp Probl Ecol, 2009, 2: 156-161
- 10 Farmer J G, Anderson P, Cloy J M, et al. Historical accumulation rates of mercury in four Scottish ombrotrophic peat bogs over the past 2000 years. Sci Total Environ, 2009, 407: 5578-5588

- 11 Bulgariu L, Ratoi M, Bulgariu D, et al. Adsorption potential of mercury(II) from aqueous solutions onto Romanian peat moss. *J Environ Sci Heal A*, 2009, 44: 700–706
- 12 Klaminder J, Yoo K, Rydberg J, et al. An explorative study of mercury export from a thawing palsamire. *J Geophys Res-Biogeophys*, 2008, 113: 1–9
- 13 Ettler V, Navrátil T, Mihaljević M, et al. Mercury deposition/accumulation rates in the vicinity of a lead smelter as recorded by a peat deposit. *Atmos Environ*, 2008, 42: 5968–5977
- 14 Liu R H, Wang Q C, Lu X G, et al. Distribution and speciation of mercury in the peat bog of Xiaoxing'an Mountain, northeastern China. *Environ Pollut*, 2003, 124: 39–46
- 15 Biester H, Martinez-Cortizas A, Birkenstock S, et al. Effect of peat decomposition and mass loss on historic mercury records in peat bogs from Patagonia. *Environ Sci Technol*, 2003, 37: 32–39
- 16 Roos-Barracough F, Givélet N, Martinez-Cortizas A, et al. An analytical protocol for the determination of total mercury concentrations in solid peat samples. *Sci Total Environ*, 2002, 292: 129–139
- 17 Lauretta D S, Klaue B, Blum J D, et al. Inductively coupled plasma mass spectrometry measurements of bulk mercury abundances and isotopic ratios in Murchison (CM) and Allende (CV). *Meteor Planet Sci*, 2000, 35: A95–A96
- 18 Lauretta D S, Klaue B, Blum J D, et al. Mercury abundances and isotopic compositions in the Murchison (CM) and Allende (CV) carbonaceous chondrites. *Geochim Cosmochim Acta*, 2001, 65: 2807–2818
- 19 Sherman L S, Blum J D, Nordstrom D K, et al. Mercury isotopic composition of hydrothermal systems in the Yellowstone Plateau volcanic field and Guaymas Basin sea-floor rift. *Earth Planet Sci Lett*, 2009, 279: 86–96
- 20 Smith C N, Kesler S E, Blum J D, et al. Isotope geochemistry of mercury in source rocks, mineral deposits and spring deposits of the California Coast Ranges, USA. *Earth Planet Sci Lett*, 2008, 269: 399–407
- 21 Biswas A, Blum J D, Bergquist B A, et al. Natural mercury isotope variation in coal deposits and organic soils. *Environ Sci Technol*, 2008, 42: 8303–8309
- 22 Foucher D, Ogrinc N, Hintelmann H. Tracing mercury contamination from the Idrija mining region (Slovenia) to the gulf of Trieste using Hg isotope ratio measurements. *Environ Sci Technol*, 2009, 43: 33–39
- 23 Feng X B, Foucher D, Hintelmann H, et al. Tracing mercury contamination sources in sediments using mercury isotope compositions. *Environ Sci Technol*, 2010, 44: 3363–3368
- 24 Carignan J, Estrade N, Sonke J E, et al. Odd isotope deficits in atmospheric Hg measured in lichens. *Environ Sci Technol*, 2009, 43: 5660–5664
- 25 Bergquist B A, Blum J D. Mass-dependent and -independent fractionation of Hg isotopes by photoreduction in aquatic systems. *Science*, 2007, 318: 417–420
- 26 Bergquist B A, Blum J D. Mass-dependent and mass-independent fractionation of Hg isotopes in aquatic systems. *Geochim Cosmochim Acta*, 2007, 71: A83–A83
- 27 Blum J D, Bergquist B A. Reporting of variations in the natural isotopic composition of mercury. *Anal Bioanal Chem*, 2007, 388: 353–359
- 28 尹润生, 冯新斌, Foucher D, 等. 多接收电感耦合等离子体质谱法高精密度测定汞同位素组成. *分析化学*, 2010, 38: 929–934
- 29 Sherman L S, Blum J D, Johnson K P, et al. Mass-independent fractionation of mercury isotopes in Arctic snow driven by sunlight. *Nat Geosci*, 2010, 3: 173–177
- 30 何光荣. 论红原 I、II 泥炭地的地质特征. *四川地质学报*, 1998, 18: 126–130
- 31 孙广友, 罗新正, Turner R E, 等. 青藏东北部若尔盖高原全新世泥炭沉积年代学研究. *沉积学报*, 2001, 19: 177–181
- 32 徐海, 洪业汤, 林庆华, 等. 红原泥炭纤维素氧同位素指示的距今 6 ka 温度变化. *科学通报*, 2002, 47: 1181–1185
- 33 周卫健, 卢雪峰, 武振坤, 等. 若尔盖高原全新世气候变化的泥炭记录与加速器放射性碳测年. *科学通报*, 2001, 46: 1040–1041
- 34 唐文春. 若尔盖草原环境地球化学特征及其研究意义. *物探化探计算技术*, 2001, 23: 353–356
- 35 于学峰, 周卫健, 刘晓清, 等. 青藏高原东部全新世泥炭灰分的粒度特征及其古气候意义. *沉积学报*, 2006, 24: 864–865
- 36 Rodriguez L, Rincon J, Asencio I, et al. Capability of selected crop plants for shoot mercury accumulation from polluted soils: Phytoremediation perspectives. *Int J Phytoremediat*, 2007, 9: 1–13
- 37 Stetson S J, Gray J E, Wanty R B, et al. Mercury stable isotope variability in ore, mine-waste calcine, and leachates of mine-waste calcine within a historical mercury mining district. *Geochim Cosmochim Acta*, 2009, 73: A1274
- 38 Zheng W, Hintelmann H. Mercury isotope fractionation during photoreduction in natural water is controlled by its Hg/DOC ratio. *Geochim Cosmochim Acta*, 2009, 73: 6704–6715
- 39 Estrade N, Carignan J, Sonke J E, et al. Mercury isotope fractionation during liquid-vapor evaporation experiments. *Geochim Cosmochim Acta*, 2009, 73: 2693–2711
- 40 Zheng W, Foucher D, Hintelmann H. Mercury isotope fractionation during volatilization of Hg(0) from solution into the gas phase. *J Anal Atom Spectrom*, 2007, 22: 1097–1104
- 41 Lindberg S, Bullock R, Ebinghaus R, et al. A synthesis of progress and uncertainties in attributing the sources of mercury in deposition. *Ambio*, 2007, 36: 19–32