

· 专题 9: 同位素新技术、新理论及新应用 ·

## 单次降雨事件连续样品 Hg 同位素组成的显著变化

袁圣柳<sup>1,2</sup>, 陈玖斌<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, 100039

近年来, 汞(Hg)同位素在新一代多接收电感耦合等离子体质谱仪(MC-ICP-MS)上的精确检测为深入研究全球汞生物地球化学循环开辟了新的途径。现有研究已经在自然界样品中发现了 Hg 同位素质量分馏(MDF,  $\delta^{202}\text{Hg}$ )和非质量分馏(MIF), 其中主要是奇数 Hg 的非质量分馏(Odd-MIF,  $\Delta^{199}\text{Hg}$  和  $\Delta^{201}\text{Hg}$ ), 主要由二价 Hg 的光还原、非生物暗反应及甲基汞的光降解等特殊生物地球化学过程产生(Bergquist and Blum 2007, Blum, Sherman *et al.*, 2014)。目前, 仅有少量文献报道了北美、中国等地区降水样品中的 Hg 同位素组成, 奠定了大气及降水中 Hg 及其同位素全球循环的基础(Gratz, Keeler *et al.*, 2010, Chen, Hintelmann *et al.*, 2012, Sherman, Blum *et al.*, 2012, Sherman, Blum *et al.*, 2015, Wang, Chen *et al.*, 2015)。然而, 单次降雨过程汞同位素组成是否变化、其产生机制及其相关气象数据对其的影响等还是当前待解难题。

研究还表明, 地表风向甚至是风速的轻微变化(尤其是对应污染源方向的风向), 都能够导致降水中 Hg 浓度的巨大变化(White, Landis *et al.*, 2013)。那么, 气象条件的改变是否也能够引起单一降水事件中 Hg 同位素组成的变化呢? 造成这种变化的成因是什么? 本课题组针对贵阳市大气降水研究已经

证实, 当地原位 Hg 的排放及长距离传输 Hg 是 Hg 的主要来源, 且正是 Hg 贡献源的不同导致了不同降雨事件中 Hg 同位素组成的巨大变化。在此基础上, 我们对贵阳市区 3 次大的降雨事件进行了连续样品采集, 系统分析了气象因子以及 Hg 浓度和稳定同位素组成。我们研究发现: 1) 3 次降水事件中 Hg 的浓度差别较大( $3.9 \sim 31.1 \text{ ng L}^{-1}$ ); 单次事件中 Hg 随着时间推移逐渐降低, 最大下降幅度达到 56%; 2) Hg 同位素组成( $\delta^{202}\text{Hg}$ :  $-2.21\text{‰} \sim -0.25\text{‰}$ ;  $\Delta^{199}\text{Hg}$ :  $0.22\text{‰} \sim 0.81\text{‰}$ ) 涵盖在先前贵阳市全年降水 Hg 同位素范围内; 3) 单次降水事件的连续性样品中 Hg 的同位素组成具有显著变化,  $\delta^{202}\text{Hg}$  和  $\Delta^{199}\text{Hg}$  的最大变化均能够达到 0.40‰(远大于样品测试过程中的 2 sd)。

研究表明, 单次降雨事件 Hg 浓度及同位素组成的巨大变化无法用地球化学过程汞同位素分馏予以解释, 应该是当地的气候及其气象条件变化过程中, 具有不同同位素组成的 Hg 源(当地的人为 Hg 排放及长距离传输 Hg)的相应贡献比例的变化造成。这表明 Hg 同位素尤其是非质量分馏是研究大气 Hg 源、沉降动力学甚至气象以及气候条件变化的有力工具。

基金项目: 国家自然科学基金项目(41273023)

第一作者简介: 袁圣柳(1985-), 男, 博士研究生, 研究方向: 同位素环境地球化学. E-mail: yuanshl05@163.com.

\* 通讯作者简介: 陈玖斌, 男, 博士, 研究员. E-mail: chenjiubin@vip.gyg.ac.cn.