

贵阳大气降水中 Hg 同位素的质量分馏和非质量分馏研究

王柱红^{1,2}, 陈玖斌^{1,*}, 冯新斌¹, Holger Hintelmann³,
袁圣柳^{1,2}, 蔡虹明^{1,2}, 黄强¹, 王书肖⁴, 王凤阳⁴

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10039

3. Chemistry Department, Trent University, Canada

4. 清华大学环境学院, 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室

Hg 同位素技术被越来越多地应用于示踪大气 Hg 的来源及其迁移转化途径。中国被认为是全球最大的大气 Hg 排放国, 但关于我国大气降水的 Hg 同位素组成鲜有报道。我们于 2012 年 9 月到 2013 年 8 月共收集了贵阳的雨水样品 15 个进行汞同位素分析, 所有样品具有明显偏负的质量分馏 (MDF, $\delta^{202}\text{Hg}$) 以及明显偏正的奇数汞同位素非质量分馏 (odd-MIF, $\Delta^{199}\text{Hg}$), $\delta^{202}\text{Hg}$ 值变化范围为 $-4.27\text{‰} \sim -0.44\text{‰}$, 平均为 -1.11‰ , 而 $\Delta^{199}\text{Hg}$ 变化范围为 $+0.19\text{‰} \sim +1.16\text{‰}$, 均值为 $+0.62\text{‰}$ 。同时, 在部分样品中也观察到轻微偏正的偶数汞同位素非质量分馏 (even-MIF, $\Delta^{200}\text{Hg}$), $\Delta^{200}\text{Hg}$ 变化范围为 -0.01 到 $+0.20\text{‰}$ 之间, 平均为 $+0.08\text{‰}$ 。研究中, 我们还首次报道了水泥厂各个生产环节的固体样品并计算了水泥厂烟气排放的 Hg 同位素组成, 并估算了西南地区火电厂烟气中的 Hg 同位素组成特征。

通过仔细分析大气降水中 Hg 同位素的质量分馏和 odd-MIF、当地人为源 (水泥厂和火电厂) 的 Hg 同位素组成特征与逆轨迹运移模型 (NOAA-HYSPLIT), 对降水中 Hg 的来源进行了详细的源解析。研究表明贵阳市大气降水中的汞主要来自于当地火电厂和水泥厂的释放, 部分来自西藏地区的远距离大气输送, 而大气中的过程对 Hg 同位素分馏的影响不大。结合已有研究, 低纬度亚热带地区 $\Delta^{200}\text{Hg}$ (平均值为 $+0.08\text{‰}$) 比中纬度地区的要低。这种 even-MIF 随着纬度增加而增加的趋势符合 Chen 等^[1]提出的概念模型。本研究首次对中国大气降水中的汞同位素组成进行了报道, 这也是首次在全球范围内对除北美以外的其他地区大气降水汞同位素的研究, 对准确建立全球汞及其同位素循环模型具有重要意义。研究表明 Hg 同位素分馏尤其是非质量分馏在示踪大气 Hg 的来源及其迁移转化过程等方面具有良好的应用前景。

参考文献:

1. Chen, J., et al. Unusual fractionation of both odd and even mercury isotopes in precipitation from Peterborough, ON, Canada. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2012. 90: 33-46.