

氮氧同位素示踪南海大气气溶胶硝酸盐的来源和化学过程

肖红伟¹, 肖化云², 龙爱民¹, 刘丛强²

1. 中国科学院南海海洋研究所热带海洋环境国家重点实验室, 广州 510301

2. 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

氮是陆地、海洋生态系统动植物生长和繁殖的必需元素之一。在大部分开阔海域, 特别是贫营养海域, 活性氮(主要包括 NH_4^+ 、 NO_3^- 和水溶性有机氮 DON) 是初级生产力限制因素, 并且很大程度上可能控制着生物泵的效率以及海洋向大气碳的输出。 NO_x 是大气活性氮的主要成分之一, 主要来源于化石燃料燃烧、闪电固氮、生物质燃烧和土壤微生物释放, 通过一系列的化学反应, 最终以 NO_3^- 形式沉降。

本研究于 2013 年 2 月至 2014 年 1 月, 在南海西沙采集了为期一年的气溶胶样品; 在南海北部夏(2012 年 8 月)、冬(2013 年 11 月) 采集了两个航次的气溶胶样品, 分析了 NO_3^- 浓度和 NO_3^- 的 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$, 以探讨南海 NO_3^- 的来源和可能的化学过程。西沙 NO_3^- 的 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 范围分别为 $-2.5\text{‰} \sim +4.9\text{‰}$ 和 $+48.1\text{‰} \sim +99.0\text{‰}$, 年平均值分别为 $+1.5\text{‰}$ 和 $+83.2\text{‰}$ 。 $\delta^{15}\text{N}$ 和 $\delta^{18}\text{O}$ 值均在冬季较高, 反应了 NO_x 在不同季节其来源和参与反应的氧化物存在差别。在冬季, NO_x 主要来源于人为释放, 特别是中国南方城市燃煤释放。冬季高的 $\delta^{18}\text{O}$ 值反映了 NO_x 在远距离传输过程中, 主要由 O_3 氧化成 NO_3^- 。在夏季, 自然来源如闪电固氮、生物土壤释放等比例增加, OH 的氧化效率也增加。比较西沙和南海北部同期气溶胶样品发现, 南海北部气溶胶样品具有更高的 NO_3^- 浓度和 $\delta^{15}\text{N}$ 值, 但更低的 $\delta^{18}\text{O}$ 值反映了 NO_x 从沿岸地区到偏远海域传输过程中, 大气物理化学过程(如与卤素反应生成粗颗粒 NO_3^- 盐) 引起了 NO_3^- 浓度和 $\delta^{15}\text{N}$ 值降低, 而 $\delta^{18}\text{O}$ 值的增加。假设 NO_3^- 的氧原子在冬季全部来源于 O_3 , 西沙沉降 47.9% 的 NO_3^- 在从沿岸地区到偏远海域传输过程中由 NO_x 生成的, 并且在传输过程中, 有 89% 的 NO_x 和 87% 的 NO_3^- 损失。