

专题17: 环境地球化学示踪

扩散体系下污染物降解途径的“升维”破译

何雨旻^{1*}, 鲍惠铭²

1. 中国科学院力学研究所高温气体动力学国家重点实验室, 北京 100190; 2. Louisiana State University, 70803, Baton Rouge, LA, USA

随着工农业的发展,大量的有机物被排放至环境中。2009年对8个省份,641口水井的水质分析显示,我国有73.8%的地下水处于不同程度的污染状态(《全国地下水污染防治规划(2011-2020年)》)。地下水污染不仅影响了饮用水安全,同时也对地下水生态系统造成了巨大的威胁。生物降解是地下环境中最重要的污染物自然修复过程之一。这一技术已被逐渐应用到了环境修复工作中。但是目前对于相关成本和技术挑战的定量化评估还不够充分。本真同位素动力学效应仅由分子尺度上的成键、断键过程决定。然而,生物化学反应网络、物质传输等因素会对在不同研究尺度下观测到的表征同位素分馏值带来不确定的影响(Thullner, 2012)。分子尺度上的本真同位素动力学效应不一定能够在细胞尺度上直接观察到。因为生物活性、反应物浓度及其在细胞膜上的传输等过程都会影响到细胞尺度上可观测的表征同位素分馏值。微生物的个体或种群之间的竞争将进一步影响群落尺度上表征同位素分馏值的不确定性。此外,在流域尺度上采样时,我们观察到的是经历了一系列反应和传输过程的空间同位素值分布。因此,试图通过流域尺度上观察到的同位素效应来还原分子尺度上的本真同位素动力学效应,是一个巨大的挑战,反之亦然(He and Bao, 2019)。除了同位素动力学效应,亲联同位素效应也可以用来确定特定的化学或物理过程。亲联同位素效应即同一离子或分子中,两个或两个以上的元素之间的关系(He and Bao, 2019)。它可以提供更多关于生物降解途径、源和汇、酶反应机制的信息。在研究同位素空间分布时,越来越多的研究表明直接使用瑞利公式来解释空间分布的数据点会低估同位素分馏值。即使如此,实验室观测到种群尺度上亲联同位素效应随时间的变化,和野外观测到地质尺度上亲联同位素效应随空间的变化往往呈现出较好的一致性。因此,许多研究中经常忽略传输效应,而将时空混合数据投在 δ - δ 图上,并通过该曲线来推断反应过程的分馏系数及其亲联同位素效应。为了验证直接对比实验室和野外亲联同位素效应的有效性,我们通过模拟反硝化过程中,比较了瑞利蒸馏模型反应传输模型硝酸根的 $\delta^{18}\text{O}$ - $\delta^{15}\text{N}$ 曲线。结果显示,通过瑞利蒸馏公式获得的反应传输体系表征同位素分馏值仅为其本真同位素分馏值的50%。但是两个模型的 $\delta^{18}\text{O}$ - $\delta^{15}\text{N}$ 斜率近似相等。但是在复杂反应体系下,反应传输模型的 $\delta^{18}\text{O}$ - $\delta^{15}\text{N}$ 斜率很少大于1。文献中 $\delta^{18}\text{O}$ - $\delta^{15}\text{N}$ 斜率大于1的情况,多是由于不同的硝酸根来源混合而产生,而不是扩散过程或复杂反应体系本身。我们的结果强调了在解释高维同位素关系之前,将基础物理模型与数据联系起来的重要性。

*通信作者简介:何雨旻(1990-),女,博士后,研究方向:高维度稳定同位素效应及表生环境反应传输模型研究。
E-mail: yhe@imech.ac.cn