

# 元素-铅同位素示踪在云浮硫铁矿区 土壤铊污染研究中的应用

刘敬勇<sup>1 2 3</sup>, 常向阳<sup>1 2</sup>, 涂湘林<sup>1</sup>

(1. 中国科学院 广州地球化学研究所, 广东 广州 510640; 2. 广州大学 环境科学与工程学院, 广东 广州 510006; 3. 中国科学院 研究生院, 北京 100039)

**摘要:**不同源区铅同位素的组成不同,因此可以利用铅同位素的这种“指纹”特征来示踪铅的不同源区。近年来铅同位素示踪在研究土壤中相关重金属来源及其运移途径起到独特的作用。由于铊和铅具有相似的地球化学性质,并且在云浮硫铁矿区污染土壤中其分布与铅有很好的相关性,笔者利用铅同位素作为示踪工具探讨了土壤中铊的污染特征,初步研究表明铊污染主要累积在土壤深度0~16.5 cm范围内,深度为16.5 cm以下土壤受到废渣中铊污染的影响较小,但废渣周围土壤深度约44 cm范围已经受到来自废渣中铊的影响。

**关键词:**华南地区; 云浮硫铁矿; 铅同位素示踪; 铊污染

**中图分类号:** P632 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-8918(2006)04-0348-06

随着富铊矿床的开发利用,已经引起一系列铊环境污染问题,如水体和土壤铊污染<sup>[1-3]</sup>,人畜慢性铊中毒等<sup>[4]</sup>,铊已经成为潜在的矿区污染元素。由于铊是典型的剧毒元素,对哺乳动物的毒性远大于汞、铅、砷等<sup>[5-6]</sup>,曾有多起职业性铊中毒及环境铊污染造成铊中毒事件的报道,近年来矿区铊污染倍受重视。已有研究表明云浮硫铁矿在开发利用过程中铊进入环境的现象十分明显<sup>[4,7-8]</sup>,铊将成为未来环境中的“化学定时炸弹”源。

国内外学者利用硫、碳、锶、铅等示踪环境中污染源,并对污染物污染范围、污染程度、释放通量、传输规律进行半定量、定量区分,以及定量评价人为活动释放污染物对环境质量的相对贡献和影响<sup>[9-12]</sup>。由于铅同位素几乎不存在同位素分馏效应,具有比其他元素更能抗地质干扰和保持稳定性等优点而被广泛应用。笔者对铅稳定同位素示踪的基本原理及其在土壤重金属污染中的地球化学判别和示踪进行了简要介绍,并结合铊和铅的地球化学性质及其在研究区土壤中的分布及环境样品铅同位素组成特征,利用铅同位素示踪分析了土壤中铊的污染情况。

## 1 样品采集与实验分析方法

采集研究区冶炼废渣3个,选择具代表性的污染土壤剖面 and 背景土壤剖面各1条进行系统分层采

样,在2条剖面相似的垂直位置处共采集18个土壤样品。所有样品均用不锈钢铲采集,室温自然风干后,粉碎,过2 mm筛子以除掉较大的碎屑、砾石和植物残体等,然后装入样品袋中存放,留待分析用。

称取土壤约100 mg(废渣约10 mg),分别置于Teflon溶样器中,加入0.8 mL的HNO<sub>3</sub>和0.8 mL的HF,超声波振荡1 h,置电热板上120 °C加热蒸干,然后加入2 mL 1:1的HCl,使样品充分溶解。上述溶液加入500 μL 1.2 N的HBr,蒸干后再加入500 μL 1.2 N的HBr,100 °C微热溶液呈橙红色,冷却,离心。此溶液在离子交换柱Dowex-I(200~400目)上进行铅的分离与纯化。

由中科院广州地球化学研究所同位素实验室,在VG354多接收热离子发射质谱仪上完成同位素比值测定,全流程本底铅为10<sup>-9</sup>量级。用国际标准物质NBS981监控分析质量,NBS981的N(<sup>206</sup>Pb)/N(<sup>204</sup>Pb),N(<sup>207</sup>Pb)/N(<sup>204</sup>Pb),N(<sup>208</sup>Pb)/N(<sup>204</sup>Pb)测定值分别为16.934±0.007、15.486±0.012、36.673±0.033,这与其标准值16.932 2、15.485 5、36.685 6吻合,分析精度优于0.05%(2σ)。

## 2 在土壤重金属污染中的应用

### 2.1 基本原理

在自然体系中铅同位素由于其质量重,同位素

间的相对质量差较小,不像氧、硫、氢、碳等轻同位素,在次生过程中容易受到所在系统的温度、压力、pH 值、 $E_h$  和生物等作用而发生变化。源区铅同位素的组成变化主要取决于放射性元素铀和钍的含量、衰变时间的长短、铅的初始含量及外来源区的混合,即环境物质形成的时间及其  $N(U)/w(Pb)$  和  $N(Th)/N(Pb)$  比值的大小。由于  $^{238}U$ 、 $^{235}U$  及  $^{232}Th$  的衰变常数不同,这就决定了其相应的子体同位素  $N(^{206}Pb)$ 、 $N(^{207}Pb)$  及  $N(^{208}Pb)$  之间的比值将随时间的增长呈有规律的变化;而  $N(U)/N(Pb)$  和  $N(Th)/N(Pb)$  比值则是物质源区的特征参数,它与物质形成时间参数一起,不仅可反映不同环境介质来源区物质的铅同位素特征,而且还决定着外来源区物质对原有物质混合时所发生的铅同位素组成不同程度的变化,故铅同位素组成的变化不仅遵循放射性衰变规律,而且还与其形成的环境密切相关。由于现有不同的环境介质的物质来源、成因机制、形成环境及形成时间不一,因而就各自具有不同的铅同位素标记特征。这一特征使铅同位素比值成为含铅物质的一种“指纹”。由于不同源区铅同位素的组成不同,因此可以利用铅同位素的这种“指纹”特征来示踪铅的不同源区。

## 2.2 应用实例

自从 Chow 等<sup>[13]</sup>首先将铅同位素示踪应用到环境污染源示踪领域以来,铅同位素在示踪和鉴定大气环境铅污染源和远距离传输等方面发挥了很大的作用。近年来,铅同位素广泛应用于环境监测,如土壤、淡水、大气颗粒物、湖底沉积物等,以检测和研究的来源和变化<sup>[14-18]</sup>,并取得一定的成果。

铅同位素可以将各种铅源对环境污染贡献进行定量评价,判定土壤是否受到污染<sup>[19-20]</sup>。汽油铅是公路两侧土壤铅的主要来源,并且受污染的程度与汽车流量和距公路的远近有关;土壤深部及其远离高速公路的背景土壤剖面,铅的浓度及其同位素与未被污染的土壤很相似,认为没有受到汽油铅的污染,但若考虑到土壤各种成分中铅同位素的比值,则只有硅酸盐成分铅的同位素比值与自然背景铅同位素比值一致,其他所有土壤成分铅同位素均偏离了自然背景土壤铅而向汽油铅方向演化,这表明土壤还是受到汽油铅的污染<sup>[15]</sup>。Gulson 等<sup>[21]</sup>对澳大利亚南部 Adelaide 土壤中铅的源区和危害进行研究,结果表明果园喷洒、发电站和冶炼厂都是表层土壤中铅的污染源,而主要污染源是汽油铅,土壤中铅污染扩散深度不会超过 30~40 cm,污染物可以从源区扩散到至少 50 km 的地方。

土壤中重金属各种赋存相态铅同位素的变化,可以对土壤中重金属的迁移性进行评价。土壤中铅的化学行为受到土壤理化性质的制约,如土壤酸碱度、有机质、机械组成、阳离子代换量等,自然背景土壤中铅大部分存在于土壤表层,被有机质强烈吸附,很难向下迁移。通过对香港城区土壤中铅的化学形态、含量及铅同位素比值进行分析,表明交通要道旁边土壤已经受到严重的重金属污染,土壤中铅的浓度增加而  $N(^{206}Pb)/N(^{207}Pb)$  降低,说明了铅污染主要是由于过去含铅汽油的燃烧引起的,  $N(^{206}Pb)/N(^{207}Pb)$  按碳酸盐态、可交换态、铁锰氧化态、有机态、残留态顺序增加,进一步说明土壤中人类输入的铅更具有溶解和迁移性,对环境有很大的危害<sup>[20]</sup>。由于土壤中重金属的活动性、生物可利用性、毒性与重金属的形态有密切的关系,研究土壤中重金属元素的有效态,对于揭示土壤重金属污染源及土壤金属元素污染风险评价更具有实际的意义<sup>[22]</sup>。

铅同位素示踪可以追踪污染源并且为污染程度提供了快速评价方法。铅同位素组成特征可以把珠江三角洲地区的天然背景铅、汽车尾气铅和工业污染铅区分开,而且证明其铅污染主要来自各种工业中铅金属的使用和汽车尾气的排放<sup>[23]</sup>。通过对广佛公路边两侧土样铅同位素组成分析,酸可溶铅同位素组成趋向于汽车尾气口沉淀物,土壤中酸不溶残留铅的同位素组成则纳入华夏地块铅同位素背景值的范围,污染源铅占总铅量约 40%~50%<sup>[24]</sup>。

矿山资源在开发利用过程中酸性废水的排放加大了重金属的释放,利用铅同位素方法可以确定土壤中重金属与矿业活动密切相关<sup>[25-27]</sup>。贵阳榨子厂附近土壤和沉积物中  $N(^{206}Pb)/N(^{207}Pb)$  为 1.182 3~1.185 3,平均为 1.183 9,所有数据与本区矿石中的比值 1.173 6~1.187 0 非常一致,显示出土壤和沉积物中铅的矿山物质来源。铅同位素的这种研究能找到铅污染的真正源头,为从源头控制重金属污染提供了帮助,在矿区重金属污染研究中尤为重要。

利用铅的含量及其同位素组成可以估计铅在土壤剖面的迁移速率<sup>[28]</sup>。以色列一高速公路整个土壤剖面汽油铅在 40 a 的时间向下迁移了 20~30 cm,平均迁移速率为 0.5 cm/a<sup>[15]</sup>;在具有 555 a 历史的英国 Derbyshire 铅冶炼厂,地下断裂发育,发现在 4.5 m 深处铅同位素组成与冶炼厂废渣铅非常一致,这说明此期间内铅垂向迁移了 4.5 m,迁移速率为 8.11 mm/a<sup>[29]</sup>。结合矿山冶炼历史,铅同位素在判定铅在土壤剖面的迁移速率的同时,进而可以评

价铅对地下水的危害性。

矿业的加速开发,一个直接的负面影响是矿区土壤中重金属元素的不断积累而形成的地球化学异常,大型矿区土壤重金属污染问题越来越受到人们的关注。以往对土壤重金属污染的研究大都局限于重金属的分布、赋存相态和生态环境危害等方面,在追踪重金属来源方面研究较少。这些研究不能够找出污染源,对从源头控制重金属污染是个很大遗憾。铅同位素示踪在判定污染物来源,评价土壤重金属污染范围、污染程度、传输途径及迁移速率具有独到的作用,可以弥补以往研究的不足<sup>[30]</sup>。

### 3 云浮硫铁矿区土壤铊污染

#### 3.1 铊、铅地球化学性质及其伴生关系

铊是一种高度分散的重金属元素,在地壳中的丰度为 0.75 mg/kg。在元素周期表中,铊的两侧为典型的亲硫元素汞和铅,特别是在低温 (<200 ℃) 高硫环境中,铊表现出强烈的亲硫性质,并且表现出亲硫性比亲石性强的特征<sup>[31]</sup>。在低温成矿过程中,因其地球化学性质与汞、砷、铜、铅等相似,故常以微量元素形式进入方铅矿、黄铁矿、黄铜矿和硫酸盐类矿物中。在世界上已知含铊矿物的一些矿床中,与铊共生的主要金属元素有 Hg、As、Sb、Cu、Pb、Zn、Ag 等,根据这些元素在不同矿床中的分布特征,可大致划分出 10 种元素组合<sup>[32]</sup>:①Tl-Hg-As-Sb-S;②Tl-Hg-As-S;③Tl-As-S;④Tl-As-Pb-S;⑤Tl-Sb-Pb-S;⑥Tl-As-Sb-Au-S;⑦Tl-As-Sb-S;⑧Tl-As-Pb-Zn-S;⑨Tl-Hg-U-As-Mo-S;⑩Tl-Sb-Cu-S。云浮硫铁矿是我国超大型矿床,其矿石矿物组成主要为黄铁矿、方铅矿、闪锌矿等。根据铊元素的地球化学性质及云浮硫铁矿的矿物组成,可知该矿床中铊与铅有很好的密切共生关系。

#### 3.2 土壤中铊、铅污染源及污染特征

粤西云浮硫铁矿是亚洲少有的特大型黄铁矿床,其储量为 2 亿 t,其中冶炼废渣中铊含量范围为 10~56.4 mg/kg,围砂矿中铊含量达 50 mg/kg<sup>[33]</sup>,矿石中铅的平均含量高达 5 273.4 mg/kg<sup>[34]</sup>。目前云浮硫铁矿的主要开采对象为黄铁矿,主要用于工业制造硫酸,浮选后的贫矿、尾砂被作为废弃矿物堆放在尾矿库。研究表明铊的分布除了黄铁矿外,相当量的铊赋存于石英等硅酸盐矿中,而且在粗颗粒黄铁矿中铊含量低于细颗粒中的<sup>[35]</sup>。因此在开发矿产资源时,矿石在挖掘、选矿和运输过程中,铊更容易随着粉尘和矿石渣扩散进入矿区环境,污染矿区空气、土壤、水体和河流。特别是尾砂矿中,铊的

平均含量远高于块状黄铁矿<sup>[33]</sup>,遇雨时,铊容易经过淋滤进入水体和土壤中,造成大面积环境污染。

硫酸生产过程中产生的废渣也是铊的一个重要污染源。在硫酸生产焙烧过程中,矿石中铊通过气态挥发进入大气,经过酸洗或水洗工序进入水体。炉尘和炉渣也可能由粉尘和气溶胶形式迁移进入大气,在环境中通过雨水淋滤释放进入土壤和水体,造成大面积的环境铊污染。研究区某大型硫酸厂堆渣区已经形成了一层厚为 25~30 cm,面积为 150 m × 200 m 的露天冶炼废渣堆,其中,铊的平均含量为 27.32 mg/kg,铅的平均含量是 2 280.9 mg/kg,在自然淋滤作用下,该废渣中铊有很强的迁移释放能力<sup>[36]</sup>。测得该堆渣外围 5 m 处土壤剖面及背景土壤剖面的铊、铅含量分布特征见表 1<sup>[36]</sup>、图 1。

表 1 堆渣 5 m 处土壤中铊、铅含量

污染土壤剖面			背景土壤剖面		
取样深度 cm	$u(Tl)$ $10^{-6}$	$u(Pb)$ $10^{-6}$	取样深度 cm	$u(Tl)$ $10^{-6}$	$u(Pb)$ $10^{-6}$
0~1	591	15.4	0~2	42.5	1.87
4~5	149	7.77	4.5~6.5	35.7	1.85
9~10.5	58.5	5	9~11	34.5	1.81
14.5~16	49.5	2.72	13.5~15.5	36.6	1.92
29.5~31	94.2	2.42	29.5~32	43.4	2.02
44~46	51.9	2.23	44.5~46.5	26.9	1.71
59~61	95.8	2.36	65~66.5	31.1	1.63
73.5~75.5	47.1	2.83	75.5~77.5	28.8	1.83

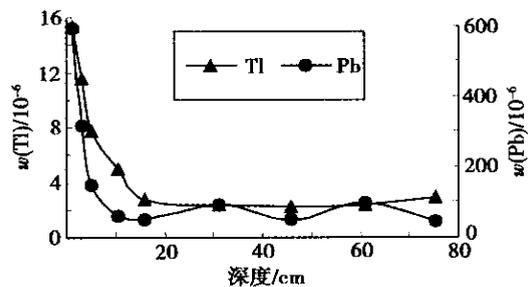


图 1 堆渣周围 5 m 处土壤铊、铅分布特征

从图 1 可以看出,土壤深度在 0~16.5 cm,铊、铅大量富集,并且随着土壤深度的增加其含量快速递减,在 16.5 cm 深度以下,铊、铅的含量基本不变,并且与背景值比较接近(表 1)。研究区污染土壤及背景土壤中,铊与铅的含量关系表明铊、铅的高度富集显然受到周围废渣的影响,铊、铅污染物主要集中在表层土壤约 16.5 cm 范围内。在土壤深度为 0~10.5 cm 范围和整个土壤剖面深度为 0~75.5 cm 范围中,计算求得铊与铅的相关性系数分别为 0.99 和 0.95。铊与铅在土壤中的含量分布及其相关性

表明,云浮硫铁矿矿石在开发利用过程中,铈与铅的污染物进入土壤后的迁移性很相似。

### 3.3 样品铅同位素组成特征

云浮硫铁矿为一典型的同生热水沉积-后期热液叠加改造型层控矿床,研究表明条带状矿石铅同位素组成与矿区地层一致,而块状矿石来源于条带状矿石铅与区内基底混合岩铅的混合<sup>[37]</sup>。表1列举了云浮硫铁矿主要污染源铅、背景铅及污染土壤铅的同位素组成。

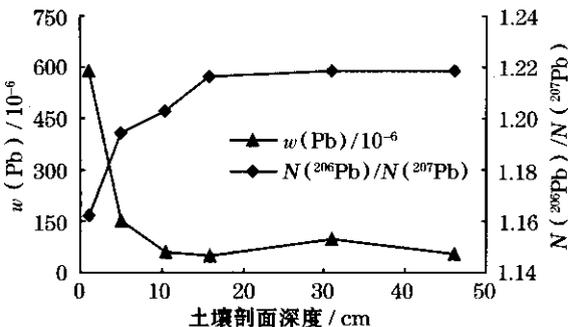
从表2、图2可以看出,该背景土壤中铅同位素组成变化不大, $N(^{206}\text{Pb})/N(^{207}\text{Pb})=1.2199\sim$

$1.2284$ ,平均值为 $1.2238$ ;冶炼废渣的 $N(^{206}\text{Pb})/N(^{207}\text{Pb})$ 为 $1.1572\sim 1.1591$ ,平均值为 $1.1580$ ,这与黄铁矿矿石的 $(N(^{206}\text{Pb})/N(^{207}\text{Pb}))=1.1604\sim 1.1607$ 比较接近,反映出废渣中铅同位素与其矿石铅同位素组成的一致性。对污染土壤剖面进行 $N(^{206}\text{Pb})/N(^{207}\text{Pb})$ 与 $N(^{206}\text{Pb})/N(^{208}\text{Pb})$ 相关性分析,两者达到显著的正相关(相关系数 $r=0.99$ , $n=6$ )表明研究区污染土壤剖面中铅是二元混和,其中一部分来源于废渣(云浮硫铁矿矿石冶炼后的产物),另一部分来源于自然背景土壤,其他铅源可以忽略不计。

表2 研究区污染源铅、背景铅及污染土壤铅的同位素组成

来源	样品		参数	$\frac{N(^{206}\text{Pb})}{N(^{204}\text{Pb})}$	$\frac{N(^{207}\text{Pb})}{N(^{204}\text{Pb})}$	$\frac{N(^{208}\text{Pb})}{N(^{204}\text{Pb})}$	$\frac{N(^{206}\text{Pb})}{N(^{207}\text{Pb})}$
	性质	件数					
污染源	云浮硫铁矿	条带状矿石	范围	18.293 ~ 18.431	15.712 ~ 15.871	38.697 ~ 39.035	
			平均值	18.348	15.812	38.829	1.160*
		块状矿石	范围	18.141 ~ 18.280	15.622 ~ 15.792	38.299 ~ 38.673	
			平均值	18.222	15.698	38.499	1.161*
		冶炼废渣	范围	18.178 ~ 18.316	15.686 ~ 15.708	38.442 ~ 38.865	
			平均值	18.225	15.738	38.610	1.158
地质背景	云浮地区背景土壤	范围	19.136 ~ 19.376	15.687 ~ 15.821	38.198 ~ 39.102		
		平均值	19.271	15.747	38.797	1.2238	
研究区污染土壤	垂直剖面	1	0 ~ 1 cm	$18.281 \pm 0.013$	$15.728 \pm 0.014$	$38.719 \pm 0.032$	1.1623
			4 ~ 5 cm	$18.737 \pm 0.006$	$15.686 \pm 0.006$	$38.699 \pm 0.014$	1.1945
			9 ~ 10.5 cm	$18.926 \pm 0.005$	$15.732 \pm 0.003$	$38.872 \pm 0.008$	1.2030
			14.5 ~ 16 cm	$19.062 \pm 0.002$	$15.668 \pm 0.002$	$38.748 \pm 0.006$	1.2167
			29.5 ~ 31 cm	$19.197 \pm 0.010$	$15.756 \pm 0.012$	$39.041 \pm 0.030$	1.2184
			44 ~ 46 cm	$19.173 \pm 0.030$	$15.641 \pm 0.017$	$38.759 \pm 0.044$	1.2187

注:云浮硫铁矿条带状、块状矿石样品的数据引自[37],\*是笔者根据文献[37]计算出的平均值



2 研究区污染土壤剖面铅总量及 $N_{206\text{Pb}}/N_{207\text{Pb}}$ 分布

研究区污染土壤剖面中, $N(^{206}\text{Pb})/N(^{207}\text{Pb})$ 随着土壤深度的增加呈现明显的规律性。土壤在深度为 $0\sim 16.5\text{ cm}$ 范围,随着深度的增加其 $N(^{206}\text{Pb})/N(^{207}\text{Pb})$ 一直在增加,特别是在深度为 $0\sim 5\text{ cm}$ 范围内 $N(^{206}\text{Pb})/N(^{207}\text{Pb})$ 急剧升高,表明污染物多集中在这个范围。 $16.5\text{ cm}$ 以下土壤 $N(^{206}\text{Pb})/N(^{207}\text{Pb})$ 值变化较小,与自然背景值 $1.2238$ 比较

接近,说明上部废渣中污染物在自然淋滤条件下对深度为 $16.5\text{ cm}$ 以下土壤影响较小。

铅同位素的二元混和模型可以定量评价外来污染源铅对土壤污染的贡献及影响,其主要计算公式如下<sup>[38]</sup>:

$$X = (X_a - X_b)(X_a - X_c),$$

其中 $X$ 代表废渣来源铅在土壤中所占的百分比; $X_a$ 、 $X_b$ 、 $X_c$ 分别表示背景土壤、污染土壤、废渣中的 $N(^{206}\text{Pb})/N(^{207}\text{Pb})$ 值。根据表1可知,在本研究中 $X_a=1.2238$ , $X_c=1.1580$ 。

来源于废渣中的铅在污染土壤中的比例贡献见图3。由于铈与铅在整个剖面分布有很好的相关性(特别是在土壤深度 $0\sim 10.5\text{ cm}$ 范围)及其相似的元素地球化学性质,从图3可以推论出来源于废渣中的铈主要累积在土壤深度为 $0\sim 16.5\text{ cm}$ 范围内,而在深度为 $16.5\sim 44\text{ cm}$ 范围内受到外来污染源的影响很小。这与元素含量分析结果一致,从而为预

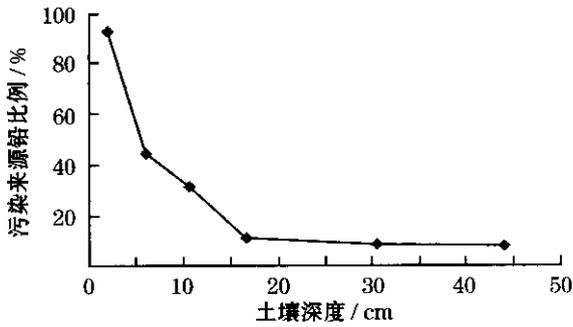


图 3 源于废渣的铅在土壤铅中所占比例

防及治理该类土壤铊污染提供重要信息。

### 4 结论

(1) 云浮硫铁矿区堆渣周围土壤已受到了明显的铊污染,且铊污染物主要分布在土壤深度为 0 ~ 16.5 cm 范围内,铊含量随着土壤深度的增加迅速降低。

(2) 铅同位素示踪表明铊污染物主要累积在土壤深度 0 ~ 16.5 cm 范围内,深度 16.5 cm 以下土壤受到废渣铊污染的影响较小,但废渣周围土壤深度至少约 44 cm 范围已经受到上部废渣中铊淋滤释放的影响。

本研究工作中,得到了解中国科学院广州地球化学研究所杨春霞博士、同位素实验室孙亚莉研究员及胡光黔、刘颖、曾文老师等人的帮助,在此一并感谢。

### 参考文献:

[ 1 ] Xiao T ,Boyle D ,Guha J ,et al. Groundwater-related thallium transfer processes and their impact on the ecosystem southwest Guizhou Province ,China[ J ]. Applied Geochemistry 2003 ,18 :675.

[ 2 ] Xiao T ,Guha J ,Boyle D ,et al. Environmental concerns related to high thallium levels in soils and thallium uptake by plants in southwest Guizhou ,China[ J ]. The Science of the Total Environment , 2004 ,318 :223.

[ 3 ] Yang C X ,Chen Y H ,Peng P A ,et al. Distribution of natural and anthropogenic thallium in highly weathered soils[ J ]. The Science of Total Environment 2005 ,341 :159.

[ 4 ] Brockhaus A ,Dolgnier R ,Ewers V ,et al. Intake and health effects of thallium among a population living in the vicinity of cement plant emitting thallium-containing dust[ J ]. Intern Arch Occup Environ Health ,1981 ,84 :375.

[ 5 ] Smith I C ,Carson B L. Trace Metals in the Environment[ A ]. Volume 1-Thallium[ C ]. Michigan :Ann. Arbor Science Publishers Inc. 1997. 307.

[ 6 ] Ziko V. Toxicity and pollution potential of thallium[ J ]. The Science of the Total Environment. 1975 ,4 :185.

[ 7 ] 杨春霞,陈永亨,彭平安,等.含铊黄铁矿冶炼废渣在自然淋滤

过程中铊的迁移与释放[ J ].环境科学研究,2005 ,18( 2 ) :99.

[ 8 ] 吴颖娟,陈永亨,刘汝峰,等.云浮硫铁矿废渣中铊的模拟淋滤试验[ J ].环境化学,2000 ,19( 5 ) :14.

[ 9 ] Mukai H ,Tanaka A ,Fujii T ,et al. Regional Characteristics of Sulfur and Lead Isotope Ratios in the Atmosphere at Several Chinese Urban Sites[ J ]. Environ Sci Technol 2001 ,35 :1064.

[ 10 ] Cristina R M ,Mercedes G E ,Estela B D. Effects of heavy metals on microbial activity of water and sediment communities[ J ]. Water , Air&Soil Pollution ,1999 ,15( 2 ) :179.

[ 11 ] Krusche A V ,Camargo P B ,Cerri C E ,et al. Acid rain and nitrogen deposition in a sub-tropical watershed( Piracicaba ) ecosystem consequences[ J ]. Environmental Pollution 2003 ,121( 3 ) :389.

[ 12 ] 陈好寿,裴辉东,张霄宇,等.杭州市区土壤铅、镉同位素示踪研究[ J ].浙江地质,1999 ,15( 1 ) :43.

[ 13 ] Chow T J ,Patterson C C. Lead isotopes in gasoline and aerosols of Los Angeles basin ,California[ J ]. Science ,1965 ,147 :502.

[ 14 ] Hansmann W ,Köppel V. Lead-isotopes as tracers of pollutants in soils[ J ]. Chemical Geology 2000 ,171( 1 - 2 ) :123.

[ 15 ] Teutsch N ,Erel Y ,Hallicz L ,et al. Distribution of natural and anthropogenic lead in Mediterranean soils[ J ]. Geochimica et Cosmochimica ACTA 2001 ,17 :2853.

[ 16 ] Trefry J H ,Metz S ,Trociene R P ,et al. A decline in lead transport by the Mississippi River[ J ]. Science ,1985 ,230 :439.

[ 17 ] Chiaradia M ,Gulson B L ,James M ,et al. Identification of secondary lead sources in the air of an urban environment [ J ]. Atmospheric Environment ,1997 ,31( 21 ) :3511.

[ 18 ] Outridge P M ,Hermanson M H ,Lockort W L. Regional variations in atmospheric deposition and sources of anthropogenic lead in sediments across the Canada Arctic[ J ]. Geochimica et Cosmochimica ACTA ,2000 ,66( 20 ) :3521.

[ 19 ] Duzgoren-Aydin N S ,Li X D ,Wong S C. Lead contamination and isotope signatures in the urban environment of Hong Kong[ J ]. Environmental international 2004 ,30 :209.

[ 20 ] Wong C S C ,Li X D. Pb contamination and Isotopic composition of urban soils in Hong Kong[ J ]. The science of the total Environmental 2004 ,319( 7 ) :185.

[ 21 ] Gulson B L ,Filler K G ,Mizon K J. Use of lead isotopes in soils to identify the source of lead contamination near Adelaide ,south Australia[ J ]. Environmental Science &Technology ,1981 ,15( 6 ) :691.

[ 22 ] Williams D E. Trace element accumulation ,movement , and distribution in the soil profile from massive application of sewage sludge [ J ]. Soil Science ,1980 ,129( 2 ) :114.

[ 23 ] Zhu B Q ,Chen Y W ,Peng J. Lead isotope geochemistry of the urban environmental in the Pearl River Delta[ J ]. Applied Geochemistry 2001 ,16( 8 ) :409.

[ 24 ] 陈毓蔚,江帮杰,陈鸿德,等.广州和佛山城区汽车尾气铅环境地球化学研究[ A ].赵振华.环境地球化学研究进展[ C ].广州:华南理工大学出版社,1996.29.

[ 25 ] Ketterer M E ,Lowry J H ,Humphries K ,et al. Lead isotopic and chalcophile element compositions in the environment near a zinc smelting-secondary zinc recovery facility ,Palmerton ,Pennsylvania , USA[ J ]. Applied Geochemistry 2001 ,16 :207.

- [ 26 ] Sonke J E ,Hoogewerff J A ,Van S R ,et al. A chemical and mineralogical reconstruction of Zn-smelter emissions in the Kempen region ( Belgium ) ,based on organic pool sediment cores [ J ]. The Science of the Total Environment 2002 292 :101.
- [ 27 ] 杨元根,刘丛强,张国平,等. 土壤和沉积物中重金属积累极其 Pb、S 同位素示踪 [ J ]. 地球与环境 2004 32( 1 ) :76.
- [ 28 ] Miller E K ,Friedland A J. Lead migration in forest soil response to changing atmospheric input[ J ]. Environmental science Technology 1994 28 :62.
- [ 29 ] Whitehead K ,Ramsey M H ,Maskall J ,et al. Determination of the extent of anthropogenic Pb migration through fractured sandstone using Pb isotope tracing[ J ]. Applied Geochemistry 1997 12 :75.
- [ 30 ] 姚玉增,金成洙. 铅同位素示踪技术及其在辽宁省矿业环境影响评价中的应用前景 [ J ]. 地质与资源 2004 13( 4 ) :242.
- [ 31 ] 刘英俊,曹励明,李兆麟,等. 元素地球化学 [ M ]. 北京: 科学出版社,1984. 393.
- [ 32 ] 颜文,刘孝义,龙江平. 铊 ( Tl )——一个不可忽视的土壤污染元素 [ J ]. 土壤学进展 1995 23( 3 ) :21.
- [ 33 ] 陈永亨,谢文彪,吴颖娟,等. 铊的环境生态迁移于扩散 [ J ]. 广州大学学报( 自然科学版) 2002 1( 3 ) :62.
- [ 34 ] 张宝贵,张乾,潘家永. 粤西大降坪超大型黄铁矿床微量元素特征及其成因意义 [ J ]. 地质与勘探 1994 30 ( 4 ) :66.
- [ 35 ] 王正辉,罗世昌,林朝惠,等. 含铊黄铁矿的苹果酸淋滤实验研究 [ J ]. 地球化学 2000 29( 3 ) :283.
- [ 36 ] 杨春霞. 含铊黄铁矿利用过程中毒害重金属铊的迁移释放行为研究 [ D ]. 广州: 中国科学院广州地球化学研究所 2004.
- [ 37 ] 潘家永,张乾,张宝贵. 粤西大降坪硫铁矿床地球化学特征及其成因探讨 [ J ]. 矿床地质 1994 13( 3 ) :231.
- [ 38 ] Bacon J R ,Hewitt I. Heavy metals deposited from the atmosphere on upland Scottish soils :chemical and lead isotope studies of the association of metals with soil components[ J ]. Geochimica et Cosmochimica Acta 2005 69( 1 ) :19.

## THE APPLICATION OF ELEMENT AND LEAD ISOTOPE TRACING TO THALLIUM CONTAMINATION IN SOIL OF THE YUNFU PYRITE MINE

LIU Jing-yong<sup>1 2 3</sup>, CHANG Xiang-yang<sup>1 2</sup>, TU Xiang-lin<sup>1</sup>

( 1. Guangzhou Institute of Geochemistry , Chinese Academy of Sciences , Guangzhou 510640 , China ; 2. School of Environmental Science and Engineering , Guangzhou University , Guangzhou 510006 , China ; 3. Graduate School of Chinese Academy of Sciences , Beijing 100039 , China )

**Abstract :** The environmental pollutant has the same lead isotope composition as its source , and hence we can determine the accurate contaminative source through the study of lead isotope composition. In recent years lead isotope tracing has been playing its unique role in studying the source and migration of heavy metals in soil. As Tl and Pb have similar geochemical characteristics , the distribution and migration of Tl in the surface soil of the Yunfu pyrite mine have good correlation with Pb. In this study , therefore , the element and lead isotope tracing was used to study the migration of thallium in soil. Element and lead isotope tracing shows that thallium pollutants are mainly accumulated in top soil of about 0 - 16.5 cm , and that the soil is subjected less pollution in deeper soil. The soil around the slags at the depth of some 44 cm is affected by Tl leaching from the slags.

**Key words** South China ; Yunfu pyrite deposit ; lead isotope tracing ; Tl pollution

作者简介: 刘敬勇( 1979 - ) 男, 硕士。2003年毕业于中国地质大学( 武汉) , 研究方向为环境地球化学。

上接 347 页

**Abstract :** Based on a systematic investigation into the environmental quality of soils on the outskirts of a city , it has been found that the pollution of heavy metals in soils in the study area is mainly composed of Hg , Cu , Pb , Zn , Sn and Cd. The pollution is characterized by large extension and low content , being the typical dispersive pollution type. There also locally exist some hot pollution points with high contents of pollutants. The study of the occurrence modes of pollutants shows that there may exist " chemical time bombs " of heavy metals in the study area.

**Key words** soil ; pollution of heavy metals ; potential harmfulness ; chemical time bomb

作者简介: 赵传数据( 1969 - ) 男, 高级工程师, 博士, 主要从事环境地球化学和铂族元素勘查地球化学工作, 发表论文 10 余篇。