

用碳稳定同位素估算大气细颗粒物中 多环芳烃的来源

姚 剑 耿彦红 王广华 林 俊 刘 卫

(中国科学院上海应用物理研究所 上海 201800)

摘要 建立了用碳稳定同位素比估算大气颗粒物中多环芳烃(PAHs)的方法,该方法包括二氯甲烷提取、薄层色谱纯化和气相色谱-燃烧系统-同位素质谱测定碳稳定同位素组成($\delta^{13}\text{C}$);并用该方法对上海市大气颗粒物 $\text{PM}_{2.5}$ 中 PAHs 的来源进行估算。结果表明:采样点 $\text{PM}_{2.5}$ 中 PAHs 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值随着分子量的增加而减小;与潜在污染源中相应值相比,更接近于燃煤和生物质燃烧的相应值,表明采样点处 $\text{PM}_{2.5}$ 中的 PAHs 受燃煤和生物质燃烧的影响大于机动车尾气。PAHs 来自燃煤、机动车尾气和生物质的贡献分别为3%–21%、29%–33%和46%–67%。这一结果与采样点的特殊环境一致,表明碳稳定同位素比能够定量估算大气细颗粒物中 PAHs 的来源。

关键词 PAHs, 细颗粒物, 源相分析, 碳稳定同位素

中图分类号 R122.7, TU317+7

多环芳烃(PAHs)是一类数量大、种类多、分布广、对人体有极大危害的半挥发永久性有机污染物,多种 PAHs 具有致癌作用^[1]。由于其疏水亲颗粒特性,环境空气中的 PAHs 多数吸附在颗粒物上^[2–4]。颗粒物粒径不同,进入人体的部位不同,对人体造成的危害也就不同。细颗粒物(动力学直径 $D_a \leq 2.5 \mu\text{m}$, $\text{PM}_{2.5}$)与粗颗粒物($2.5 \mu\text{m} \leq D_a \leq 10 \mu\text{m}$)相比,更易沉积到肺叶、呼吸细支气管及肺泡,从而造成呼吸道和肺部疾病^[5]。大气颗粒物中的 PAHs 含有量随颗粒物粒径减少而增加^[6],可见富集在细颗粒中的 PAHs 可能对人体有更大的危害。因此,研究细颗粒中 PAHs 的源相很有必要。近年来,对大气颗粒物中 PAHs 的研究已从分析方法^[7–11]、城市中分布^[12]转移到重点识别其来源^[13]。

判别颗粒物中 PAHs 来源的现有方法多为定性或半定量方法(比值法,轮廓图法,特征化合法)^[14]。近年来,化学质量平衡法(CMB)^[15]已应用于定量解析颗粒物的 PAHs 来源,但 PAHs 是易降解物质,CMB 法的应用受到一定限制。大气颗粒物中 PAHs 的主要来源是含碳物质的不完全燃烧^[16],即石化燃料燃烧产物和生物质燃烧产物^[17]。从污染源到受体的过程中,大气颗粒物中 PAHs 的碳同位素分馏现象不明显,而且不同污染源产生的 PAHs 的碳稳定

同位素比 $\delta^{13}\text{C}$ ^[17]不同,利用 PAHs 中碳同位素组成可示踪其来源。PAHs 的来源中不仅有燃煤和机动车尾气,还有生物燃烧产物的贡献,故基于 $\delta^{13}\text{C}$ 的二元复合同位素比模型难以准确定量估算出大气颗粒物中 PAHs 的来源。我国对大气颗粒物中 PAHs 源相研究尚停留在定性估算总悬浮颗粒物(TSP)中 PAHs 的来源,亟需就大气细颗粒物和更细颗粒物中 PAHs 来源进行研究。本文建立了基于 $\delta^{13}\text{C}$ 定量估算大气细颗粒物中 PAHs 来源的方法;并估算上海市嘉定区 $\text{PM}_{2.5}$ 中 PAHs 的来源。

1 方法与实验

1.1 基本原理

大气颗粒物中 PAHs 的 $\delta^{13}\text{C}$ 可表示为:

$$\delta^{13}\text{C} = [({}^{13}\text{C}/{}^{12}\text{C})_{\text{sample}}/({}^{13}\text{C}/{}^{12}\text{C})_{\text{PDB}} - 1] \times 1000\% \quad (1)$$

其中, $({}^{13}\text{C}/{}^{12}\text{C})_{\text{sample}}$ 和 $({}^{13}\text{C}/{}^{12}\text{C})_{\text{PD}}$ 分别代表各样品中 PAHs 和标准样品(PDB, Pee Dee Belemnite)的 ${}^{13}\text{C}/{}^{12}\text{C}$ 比。大气颗粒物中 PAHs 来自燃煤、机动车尾气和生物质燃烧,基于碳稳定同位素质量守恒,我们有:

上海市科委基础研究重点项目(10JC1417200)和国家自然科学基金青年科学基金(11005144)资助

第一作者:姚 剑,女,1984年生,现为中国科学院上海应用物理研究所博士研究生

通讯作者:刘 卫, liuwei@sinap.ac.cn

收稿日期:2012-01-05, 修回日期:2012-03-12

$$\delta^{13}\text{C}_i = \delta^{13}\text{C}_{\text{icoal}} f_{\text{icoal}} + \delta^{13}\text{C}_{\text{ivehicle}} f_{\text{ivehicle}} + \delta^{13}\text{C}_{\text{ibio}} f_{\text{ibio}} \quad (i=1,2) \quad (2)$$

$$f_{\text{coal}} + f_{\text{vehicle}} + f_{\text{bio}} = 1 \quad (3)$$

式中, $\delta^{13}\text{C}_i$ 是样品测得的某种 PAHs 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值; $\delta^{13}\text{C}_{\text{icoal}}$ 、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{ivehicle}}$ 、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{ibio}}$ 分别为燃煤、机动车尾气和生物质燃烧中这种 PAHs 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值; f_{coal} 、 f_{vehicle} 、 f_{bio} 分别为燃煤、机动车尾气和生物质燃烧对这种 PAHs 的分担率, i 代表两种 PAHs 的编号。任意选用样品中测得的两种 PAHs 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值, 并用文献中的源相中对应 PAHs 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值, 由式(2)–(4)得到不同源相的分担率。设一种源对每种 PAHs 的贡献一致^[18], 即认为燃煤(或机动车尾气、生物质燃烧)的分担率对 BaP、IcdP、BghiP 等都一样, 并对测得的 PAHs 的 $\delta^{13}\text{C}$ 值进行两两组合, 得到不同源相分担率的范围。

1.2 样品和分析

1.2.1 样品

大气中 $\text{PM}_{2.5}$ 采样地点位于上海市嘉定区的上海应用物理研究所 102 楼楼顶 ($31^\circ 24' \text{N}$, $121^\circ 17' \text{E}$), 高约 18 m。该采样距上海市中心约 30 km, 属郊区农村。周围地势开阔, 无工业厂房, 无高大建筑物, 东、南面靠近公路, 周边有三个村庄及大片农田。每个村庄有一个以废木材为燃料的小锅炉, 距离采样点 500 m 处还有一个烧煤的锅炉。

采样仪器为 $\text{PM}_{2.5}$ -2 型可吸入颗粒物采样器(北京地质仪器厂)。采样膜为纤维素微孔滤膜(美国 Millipore 公司生产, 孔径为 0.22 μm , 直径为 90 mm), 采样日期为 2010 年 12 月至 2011 年 3 月, 每次连续采样 48 h, 空气流速为 70 L/min。

1.2.2 样品的预处理

将采样膜剪碎, 加入 30 mL 二氯甲烷, 超声抽提 20 min (KQ3200E 型超声波清洗器), 重复 2 次, 合并提取液。提取液经旋转蒸发设备浓缩至 1 mL 左右, 待纯化。

用硅胶-氧化铝 2:1 层析柱纯化 PAHs。硅胶柱规格: 1.0 cm i.d. $\times$ 30 cm。采用正己烷湿法装柱。从下至上依次为硅胶 12 cm, 氧化铝 6 cm, 无水硫酸钠 1–2 cm。将浓缩后的提取液加入层析柱上端, 用 40 mL 正己烷淋洗, 得到脂肪烃, 弃去淋洗液; 再用 60 mL 正己烷/二氯甲烷 1:1(V/V)淋洗, 得到 PAHs, 收集淋洗液, 用旋转蒸发仪浓缩至 500 μL , 置于冰箱中保存至分析。

1.2.3 样品纯化方法的确定

运用 PAHs 单体化合物的碳稳定同位素来解析 PAHs 的不同来源, 需要对样品中的 PAHs 进行纯化, 因为颗粒物样品基体复杂, 其中的一些与 PAHs 性质相似的物质在色谱分离过程中会与单体 PAHs 一起流出, 干扰单体 PAHs 碳稳定同位素的测定; 而且样品杂质太多, 色谱图上会出现很大的“鼓包”, 产生鼓包的物质称为 UCM (unresolved complex mixture), UCM 会影响单体 PAHs 碳稳定同位素的测定。因此, 对 PAHs 进行纯化非常必要^[19]。

仅经过硅胶柱纯化的样品不能达到测试单体 PAHs 碳稳定同位素的要求, 本研究采用薄层色谱法(TLC)来进一步纯化。TLC 是快速分离和定性分析痕量有机物的一种很重要的实验技术, 并且具有操作简便、分离效率高、需要样品少的特点, 特别适用于挥发性小的化合物。

本实验采用 Glass plates 20 cm $\times$ 20 cm, TLC Silica gel 60 F₂₅₄(Merck KGaA, Germany)薄层色谱, 选取硅胶为固定相, 以石油醚/二氯甲烷 1:1 做展开剂。将经过前处理的样品和 PAHs 标样分别以长条状点在距薄层底端 2 cm 处, 然后放入盛有石油醚/二氯甲烷 1:1 展开剂的层析缸中, 待溶剂展开至薄层顶端时, 取出, 晾干后在 UV254 nm 下, 对照标样在薄层上的位置, 将待纯化样品的显色部分划线标识, 将标识部分刮下, 用 30 mL 二氯甲烷超声 20 min, 过滤去除硅胶颗粒, 旋转蒸发至 50 μL , 待测。

纯化结果由 GC-MS(Agilent7890GC, 5975MSD)分析, 选用 HP-5MS 毛细管色谱柱。升温程序为: 80 $^\circ\text{C}$ (保持 3 min), 以 3 $^\circ\text{C}/\text{min}$ 升温至 140 $^\circ\text{C}$ (保持 1 min), 再以 5 $^\circ\text{C}/\text{min}$ 升温至 290 $^\circ\text{C}$ (保持 5 min)。进样方式为无分流进样, 进样量为 1 μL 。定量采用 5 点校正曲线法进行, PAHs 的分子离子作为定量离子。处理和纯化过程无明显同位素分馏。

图 1 为未经处理、经硅胶柱纯化和经硅胶柱及 TLC 纯化后样品的色谱图, 可见未经处理的样品杂质多而且含量高, 还有很大的鼓包, 辨不清 PAHs 峰; 经过硅胶柱纯化后杂质含量降低, 鼓包也有所减少, 但样品依然很复杂, 也辨不清 PAHs 峰。而再经 TLC 纯化后, 样品杂质含量大大降低且鼓包消失, PAHs 化合物的峰很明显。因此, TLC 对样品具有很好的纯化效果, 经 TLC 纯化后的样品可以达到碳稳定同位素的测试要求, 本研究中采用 TLC 来纯化样品中的 PAHs。

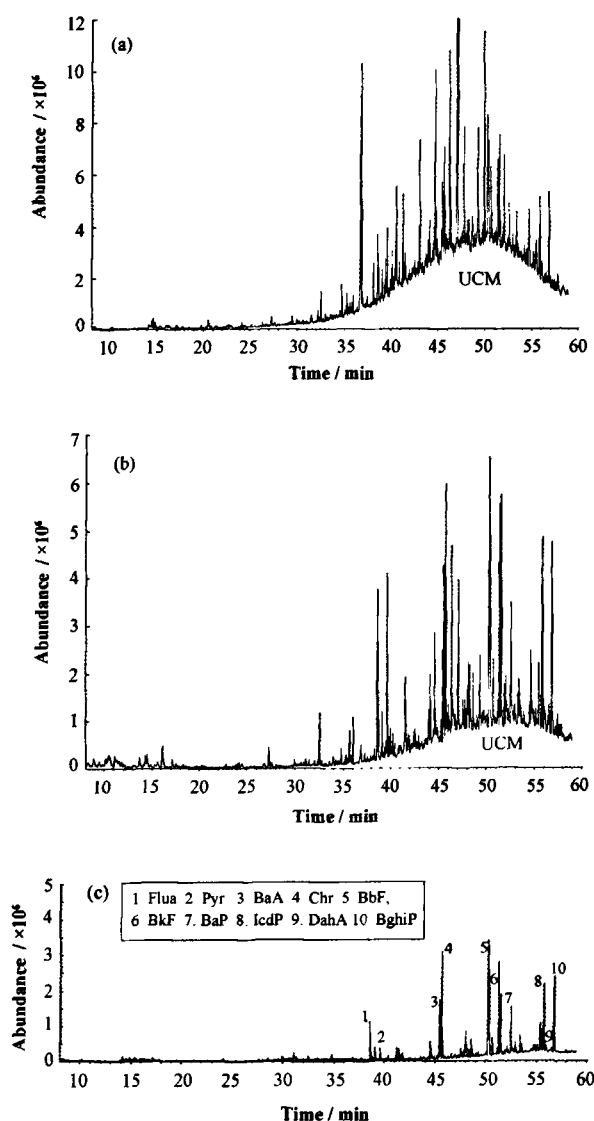


图1 未经纯化(a)、经硅胶柱纯化后(b)和经 TLC 纯化后(c)样品的色谱图

Fig. 1 Chromatograms of unpurified sample (a), purified by silicagel column (b) and purified by TCL.

1.2.4 碳稳定同位素的测定

本研究选取了2010年12月5号(101205), 2010年12月8号(101208), 2011年3月8号(110308)三套样品, 经过前面所述的预处理及TCL方法纯化, 对其中的8种多环芳烃化合物: 菲(Phe)、荧蒹(Flua)、芘(Pyr)、苯并(a)蒽(BaA)、苯并(k)荧蒹(BkF)、苯并(a)芘(BaP)、茚并(1,2,3-c,d)芘(IcdP)、苯并(ghi)芘(BghiP), 进行碳稳定同位素比的测定。所用测量系统为气相色谱/燃烧系统/同位素质谱(GC/C/IRMS)。该系统包括气相色谱-同位素比值质谱仪(GV IsoPrime, 使用Agilent 6890色谱仪), 燃烧炉(温度为900℃)和计算机。其中气象色谱仪的条件为: J&W DB-5MS 色谱柱, 规格为30 m × 0.25 mm

× 0.25 μm, 载气为高纯氮, 柱流量为1.2 mL·min⁻¹; 进样方式为无分流进样, 进样量为2 μL, 进样口温度为280℃。色谱柱的升温程序为: 80℃停留3 min, 然后以10℃·min⁻¹的速率升至180℃, 保持1 min; 再以3℃·min⁻¹的速率升至300℃, 保持5 min。多环芳烃的碳稳定同位素值以相对PDB的千分比形式给出, 多环芳烃标准样品的碳稳定同位素组成测定结果的精密度(SD, n=3)范围为0.1‰~0.4‰, 环境空气颗粒物样品重复测试两次, 取算术平均值。

2 结果与讨论

2.1 上海市大气颗粒物中PAHs的碳稳定同位素

样品中各种PAHs的 $\delta^{13}\text{C}$ 值如图2所示。Phe、Flua、Pyr、BaA、BkF、BaP、IcdP、BghiP的 $\delta^{13}\text{C}$ 范围分别为-28‰~-25‰, -26.9‰~-26.5‰, -27.1‰~-24.9‰, -26.7‰~-23.9‰, -26.7‰~-25‰, -27.7‰~-26‰, -27.8‰~-26.4‰, -27.7‰~-25.8‰。随着分子量的增加, $\delta^{13}\text{C}$ 有减小的趋势。各种PAHs的 $\delta^{13}\text{C}$ 值均在三种源相的 $\delta^{13}\text{C}$ 值之间, 更接近于燃煤和生物质燃烧的值, 暗示采样点受燃煤和生物质燃烧的污染较机动车尾气更大。

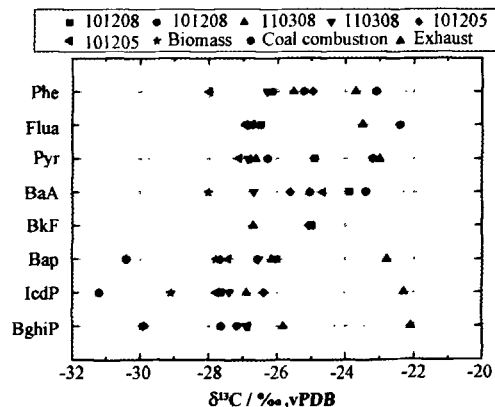


图2 上海市PM_{2.5}中PAHs及各种潜在源相中PAHs的 $\delta^{13}\text{C}$ 值, 源相的数据来自Ref.[20,21]

Fig. 2 The $\delta^{13}\text{C}$ values of PAHs extracted from PM_{2.5} of Shanghai and all kinds of potential pollution sources.

2.2 上海市PAHs的 $\delta^{13}\text{C}$ 与其他城市比较

将上海大气细颗粒物中各种PAHs的 $\delta^{13}\text{C}$ 值与文献中报道的北京和杭州^[17]的大气颗粒物中各种PAHs的 $\delta^{13}\text{C}$ 值进行比较。如图3所示, 上海的各种PAHs的 $\delta^{13}\text{C}$ 值比杭州和北京都偏低。这可能与采样点位于嘉定区郊区农村, 周边多为秸秆等生物质类燃烧源有关。上海的各种PAHs的 $\delta^{13}\text{C}$ 值与北京更相近, 说明特大城市大气颗粒物中PAHs的来源有一定的相似性。

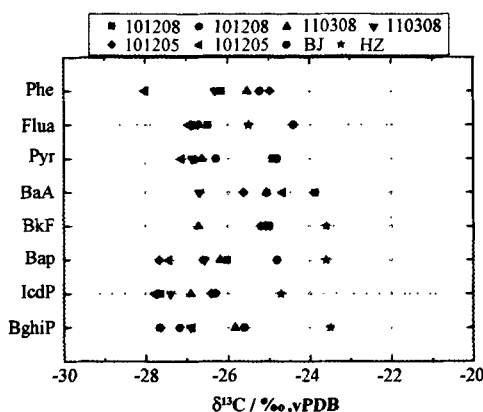


图 3 上海市 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 及其他城市(北京(BJ), 杭州(HZ))大气颗粒物中 PAHs 的 $\delta^{13}C$ 值

Fig. 3 $\delta^{13}C$ values of PAHs extracted from $PM_{2.5}$ of Shanghai and atmospheric particulates of Beijing (BJ) and Hangzhou (HZ).

2.3 上海市 PAHs 来源的定量解析

彭林等^[20,21]对各种源相中的各种 PAHs 的 $\delta^{13}C$ 值进行了研究和汇总,见表 1。可以看出,8 种 PAHs 中, BaP、IcdP、BghiP 的各种源相中的 $\delta^{13}C$ 值比较完整。因此分别选取这 3 种 PAHs 中 2 种的数据,如选取(BaP, IcdP),或者(BaP, BghiP),或者(IcdP, BghiP)的各种源相中的 $\delta^{13}C$ 值,代入式(2)–(4),求得三组不同源相分担率的值,作为每种源分担率的范围。

由此可以得出,燃煤对采样点大气细颗粒物中 PAHs 的分担率为 3%–21%,机动车尾气的贡献为 29%–33%,生物质燃烧的贡献最大,为 46%–67%。生物质燃烧的分担率最大正好反应出采样点位于农村,周边有多处以废木材为燃料的小型锅炉的特殊环境。

表 1 样品及各种源相中 PAHs 的 $\delta^{13}C$

Table 1 The $\delta^{13}C$ values of PAHs extracted from samples and all kinds of potential pollution sources.

化合物名称 Compound	样品 Samples ($n=6$)		生物质燃烧 Biomass burnings	燃煤 Coal combustion	机动车尾气 Vehicle exhaust
	平均值 Mean	标准偏差 Standard deviation			
Phe	-26.0	1.1	—	-23.1	-23.7
Flua	-26.8	0.2	—	-22.4	-23.5
Pyr	-26.4	0.8	—	-23.2	-23.0
BaA	-25.2	0.9	-28.0	-23.4	—
BkF	-25.4	0.8	—	—	—
BaP	-26.7	0.7	-27.8	-30.4	-22.8
IcdP	-27.3	0.5	-29.1	-31.2	-22.3
BghiP	-27.0	0.7	28.8	-29.9	-22.1

3 总结

确定了用薄层色谱纯化样品中 PAHs 的方法,经 TLC 纯化后,样品杂质含量大大降低且 UCM 鼓包消失, PAHs 化合物的峰十分明显。

上海市嘉定区大气中 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 的 $\delta^{13}C$ 值随着分子量的增加而减小;与相应潜在污染源中的 $\delta^{13}C$ 值比较,发现其 $\delta^{13}C$ 值更接近于燃煤和生物质燃烧的相应值,表明采样点处 $PM_{2.5}$ 中的 PAHs 受燃煤和生物质燃烧的影响大于机动车尾气。

基于碳稳定同位素质量守恒, $PM_{2.5}$ 中 PAHs 来自燃煤、机动车尾气和生物质的贡献分别为 3%–21%、29%–33%和 46%–67%。这一结果与采样点的特殊环境一致,表明碳稳定同位素比能够定量估算大气颗粒物中 PAHs 的来源。

参考文献

- 1 Diana J F, Frank C R A. Wood burning gas a source of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons[J]. Environ Sci Technol, 1990, 24: 1581–1585
- 2 Yang H H, Tsai C H, Chao M R, et al. Source identification and size distribution of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons during rice straw burning period[J]. Atmos Environ, 2006, 40: 1266–1274
- 3 Menichini E, Monfredini F, Merli F. The temporal variation of the profile of carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air: a study in a medium traffic area in Rome, 1993–1998[J]. Atmos Environ, 1999, 33: 3739–3750
- 4 Cancio J A L, Castellano A V, Martin S S, et al. Size distributions of PAHs in ambient air particles of two areas

- of Las Palmas de Gran Canaria[J]. *Water, Air and Soil Pollution*, 2004, **154**: 127–138
- 5 Peters A, Wichmann H E, Tuch T, *et al.* Respiratory effects are associated with the number of ultrafine particles[J]. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 1997, **155**: 1376–1383
- 6 周家斌, 王铁冠, 黄云碧, 等. 不同粒径大气颗粒物中多环芳烃的含量及分布特征[J]. *环境科学*, 2005, **26** (2): 40–44
- ZHOU Jiabin, WANG Tiegua, HUANG Yunbi. Concentration and distribution characterization of polycyclic aromatic hydrocarbons in airborne particles with different sizes[J]. *Environmental Science*, 2005, **26** (2): 40–44
- 7 于彦彬, 谭培功. 测定大气气溶胶中多环芳烃的高效液相色谱编程荧光法[J]. *分析测试学报*, 1998, **17**(6): 62–65
- YU Yanbin TAN Peigong. Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in aerosol by high performance liquid chromatography with fluorescence detection wavelength programming[J]. *Journal of Instrumental Analysis*, 1998, **17**(6): 62–65
- 8 艾晓儒. 城市大气中氯代多环芳烃的产生及分析方法[J]. *国外环境科学技术*, 1996, **82**(1): 68–72
- Ai Xiaoru. Produce and analysis method of chlorinated polycyclic aromatic hydrocarbons in urban atmospheric[J]. *Foreign environment science and technology*, 1996, **82**(1): 68–72
- 9 Inoka Senarantne. Achemical analysis of aerosols over Chiristchurch, New Zealand, and its significance of source apportionment[J]. *Journal of Aerosol Science*, 2000, **31**: 232–233
- 10 Colombini M P, Fuoco R. Determination of polyaromatic hydrocarbons in atmosphere particulate samples by HPLC with florescence detection: A field application[J]. *Microchemical Journal*, 1998, **59**: 228–238
- 11 沈学优, 刘建勇, 沈红心, 等. 高效液相色谱自动分析空气中痕量多环芳烃[J]. *应用化学*, 1999, **16**(5): 79–81
- SHEN Xueyou, LIU Jianyong, SHEN Hongxin, *et al.* Automatic analysis of trace polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air by high performance liquid chromatography[J]. *Chinese Journal of Applied Chemistry*, 1999, **16**(5): 79–81
- 12 Halsali C J. Polycyclic aromatic hydrocarbons in UK urban air[J]. *Journal of Environment and Technology*, 1994, **28**: 2380–2386
- 13 刘恩莲, 王方华. 济南市环境空气中多环芳烃的来源识别和解析[J]. *中国环境监测*, 2007, **23**(1): 58–62
- LIU Enlian, WANG F H. Analysis on Source of the Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Jinan's Atmosphere[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2007, **23**(1): 58–62
- 14 彭林, 白志鹏, 朱坦. 我国空气颗粒物中烃类物质的来源解析研究现状[J]. *城市环境与城市生态*, 2003, **16**(3): 60–62
- PENG Ling, BAI Z P, ZHU Tan. Research progress of source apportionment for saturated hydrocarbons and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient particular matter in China[J]. *Urban Environment & Urban Ecology*, 2003, **16**(3): 60–62
- 15 Manoli D, Voutsas D, Samara C. Chemical characterization and source identification apportionment of fine and coarse air particles in Thessalonica, Greece[J]. *Journal of Atmospheric Environment*, 2002, **36**: 949–961
- 16 Isivorov V A. Organic of the Earth's atmosphere. In: Isidorov V. A., Ed. *Organic chemistry of the Earth's atmosphere*[M]. Berlin: Springer, 1990, 25–120
- 17 Okuda T, Kumata H, Naraoka H, *et al.* Origin of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Chinese cities solved by compound-specific stable carbon isotopic analyses[J]. *Organic Geochemistry*, 2002, **33**: 1737–1745
- 18 Okuda T, Kumata H, Zakaria M P, *et al.* Source identification of Malaysian atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons nearby forest fires using molecular and isotopic compositions[J]. *Atmos Environ*, 2002, **36**(4): 611–618
- 19 Reddy C M, Pearson A, Xu L, *et al.* Radiocarbon as a tool to apportion the sources of polycyclic aromatic hydrocarbons and black carbon in environmental samples[J]. *Environ Sci Technol*, 2002, **36**(8): 1774–1782
- 20 彭林, 李剑, 朱坦, 等. 郑州空气颗粒物中 PAHs 的碳同位素特征及来源[J]. *中国环境科学*, 2005, **25**(1): 106–109
- Peng L, Li J, Zhu T, *et al.* Carbon isotope characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons in atmospheric particles and their source analysis in urban area of Zhengzhou City[J]. *China Environmental Science*, 2005, **25**(1): 106–109
- 21 彭林, 白志鹏, 朱坦, 等. 燃煤烟尘和机动车尾气中 PAHs 分子化合物的稳定碳同位素研究[J]. *中国矿业大学学报*, 2005, **34**(2): 218–221

Peng Lin, BAI Zhipeng, ZHU Tan, *et al.* Research on carbon isotopic compositions of individual PAHs in vehicle exhaust and soot of coal combustion[J]. Journal of

China University of Mining & Technology, 2005, 34(2): 218-221

Source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons in fine atmospheric particulates using stable carbon isotopic analysis

YAO Jian GENG Yanhong WANG Guanghua LIN Jun LIU Wei

(Key Laboratory of Nuclear Analysis Techniques, Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract In this paper, a method is established to quantitatively partition fractional contributions of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in fine atmospheric particulate matters by using stable carbon isotopic analysis. Dichloromethane extraction, TLC purification, and gas chromatography-combustion system and isotope mass spectrometry (GC/C/IRMS), are used to measure the stable carbon isotope compositions ($\delta^{13}\text{C}$). The fractional contributions of coal combustion, vehicle exhaust and biomass burning to the PAHs in the fine particulate matters ($\text{PM}_{2.5}$) collected in Jiading district, a suburb of Shanghai, are estimated. The results show that the $\delta^{13}\text{C}$ values increase with decreasing molecular weight. The coal combustion and biomass burning play bigger role than vehicle exhaust in the PAHs, compared to the $\delta^{13}\text{C}$ values of PAHs in all kinds of potential pollution sources. The estimated contributions from coal combustion, vehicle exhaust and biomass burning to PAHs of $\text{PM}_{2.5}$ range from 3% – 21%, 29% – 33% and 46% – 67%, respectively, which agree well with the surrounding condition of the sampling site, indicating that it is feasible to estimate the fractional contributions of PAHs quantitatively by using stable carbon isotopic analysis.

Key words PAHs, fine particulate, source identification, stable carbon isotopes

CLC R122.7, TU317+.7