

太原市采暖期大气 PM_{2.5} 中多环芳烃的污染特征

郭利利¹, 崔阳¹, 张桂香¹, 闫雨龙¹, 何秋生^{1,*}, 王新明²

(1. 太原科技大学 环境与安全学院, 太原 030024; 2. 中国科学院广州地球化学研究所, 有机地球化学国家重点实验室, 广州 510630)

摘要:本研究对太原市采暖期 PM_{2.5} 中多环芳烃(PAHs)的污染水平、组成特征、健康风险以及来源进行了分析。结果表明, 太原市采暖期 PM_{2.5} 的日均浓度水平为 70.7~274.2 μg/m³, 90%的样品超过了我国《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)中 PM_{2.5} 的二级标准限值(75 μg/m³)。PM_{2.5} 中 16 种 PAHs 的浓度水平为 282.7~1 398.6 ng/m³, 平均值为 915.7 ng/m³。荧蒽(Fla)是浓度最高的单体, 占 PAHs 总浓度的 20.4%, 其次是芘(Pyr)和菲(Phe), 分别占 14.5%和 13.2%。不同环数的 PAHs 质量浓度为 4 环>5~6 环>2~3 环。以苯并(a)芘(Bap)为参照对象的昼夜毒性当量浓度 Bap_{eq} 分别为 75.5 和 100.0 ng/m³, 高于我国和 WHO 对 Bap 的规定值(分别为 2.5 和 1 ng/m³), 对人体健康存在潜在危害。根据 PAHs 环数分布及特征比值法判断 PAHs 的主要来源是煤燃烧, 同时也存在一定的生物质燃烧和少部分石油燃烧。

关键词:太原; PM_{2.5}; 多环芳烃; 污染特征

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 1672-9250(2015)02-0198-07 doi: 10.14050/j.cnki.1672-9250.2015.02.009

多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)具有显著的致癌、致畸、致突变效应, 受到学者和政府部门的广泛关注。颗粒物是环境中 PAHs 的重要载体。研究表明, 颗粒物中 PAHs 浓度呈明显的粒径分布特征, 70%以上的 PAHs 富集在 PM_{2.5} 中^[1]。我国城市大气 PM_{2.5} 超标情况严重, 尤其是北方城市, 如北京、西安冬季采暖期的 PM_{2.5} 日均浓度分别为 115.3 和 130.1 μg/m³^[2-3], 远高于我国《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)和 EPA 对环境空气中 PM_{2.5} 的二级标准限值(分别为 75 和 35 μg/m³)^[4]。国外城市, 如巴西圣保罗、意大利弗洛伦萨和美国拉斯维加斯等城市 PM_{2.5} 的日均值浓度水平均低于 EPA 的二级标准限值^[5-7]。我国大部分地区 PM_{2.5} 中 PAHs 的水平更是比国外发达地区高出几个数量级, 如美国亚特兰大、意大利弗洛伦萨冬季 PM_{2.5} 中 PAHs 的平均总浓度水平分别为 2.2 和 10.7 ng/m³^[6,8], 而我国南方城市重庆冬季为 110.2 ng/m³^[9], 北方城市如北京和西安冬季分别高达 407.6 和 701 ng/m³^[10-11]。

太原市是全球空气污染最重的城市之一。据报道, 太原市颗粒物(TSP)中 8 种 PAHs(菲(Phe)、蒽(Ant)、荧蒽(Fla)、芘(Pyr)、屈(Chr)、苯并(k)荧蒽(BkF)、苯并(e)芘(Bep)、苯并(a)芘(Bap))的年平均水平高达 1 500 ng/m³^[12]。孟昭阳等通过大气粒子(PM_{2.5})在线监测仪测定了太原市 PM_{2.5} 的水平, PM_{2.5} 日均浓度高达 246.8 μg/m³^[13]。本文通过大流量采样器采集了太原市采暖期细颗粒物 PM_{2.5}, 并对 PM_{2.5} 中 PAHs 的污染特征及污染源进行探讨, 以期对制定有效的大气 PM_{2.5} 和有机污染控制措施提供依据。

1 材料与方法

1.1 PM_{2.5} 样品采集

本研究采样点设置在太原科技大学科技楼楼顶, 周围无高建筑和明显局地污染源, 采样位置如图 1 所示。采样仪器为配置 PM_{2.5} 切割粒径的大流量气溶胶采样仪(TH-1000, 武汉天虹)。采样时间从 2012 年 1 月 4 日到 2012 年 1 月 13 日, 分昼夜采集,

收稿日期: 2014-06-14; 改回日期: 2014-09-04

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(41172316), 国家教育部重点项目(211026), 山西省青年科技研究基金(2011021025-2), 山西省回国留学人员科研资助项目(2011080)。

第一作者简介: 郭利利(1990-), 女, 硕士, 主要从事有机环境化学研究。E-mail: yujianmeihao2012@163.com.

* 通讯作者: 何秋生(1977-), 男, 副教授。E-mail: heqs@tyust.edu.cn.

白天采样从 08:00~19:00,晚上从 20:00~次日 07:00。采样期间同步记录太原市气温、风速、风向和湿度等气象参数。

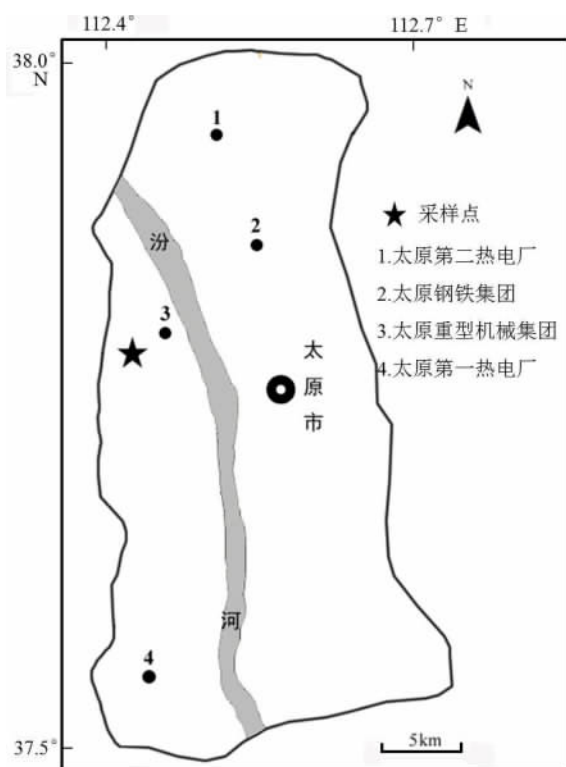


图 1 采样点位置示意图

Fig. 1 Location of the sampling site

采用石英纤维滤膜(Whatman QM-A, 20.3 cm × 25.4 cm)采集 PM_{2.5} 样品。采样前将滤膜在马弗炉中焙烧 4 h(450 °C),以消除可能的有机物,冷却后放入恒温恒湿箱中平衡 24 h,称重。采样后的滤膜用铝箔封装,带回实验室在恒温恒湿箱中平衡 24 h 后称重,于 4 °C 中冰箱保存至分析。

1.2 样品的前处理及分析

剪取 1/8 的滤膜于烧杯中,加入 PAHs 回收率指示物(萘-d8、苊-d10、菲-d10、屈-d12、芘-d12)老化一定时间后,用适量的二氯甲烷超声萃取 3 次,萃取液经旋转蒸发浓缩至 1 mL,再经硅胶和氧化铝层析柱分离净化,用 70 mL 正己烷/二氯甲烷(7:3, v/v)洗脱得到 PAHs 组分,再次经旋转蒸发浓缩,最后氮气吹脱至 1 mL,加入一定量的内标(六甲基苯),待测。

本研究关注 USEPA 优先控制的 16 种 PAHs,包括:2 环的萘(Nap),3 环的苊烯(Acy)、苊(Ace)、芴(Flu)、菲(Phe)、蒽(Ant),4 环的荧蒽(Fla)、芘(Pyr)、苯并(a)蒽(BaA)、屈(Chr),5 环的苯并(b)荧蒽(BbF)、苯并(k)荧蒽(BkF)、苯并(a)芘(BaP)、

二苯并(a,h)蒽(DahA),6 环的苯并(g,h,i)芘(BghiP)、茚并(1,2,3,c,d)芘(IcdP)。采用 GC-MS(岛津 GCMS-2010 plus)分析 PAHs,色谱柱为 RTX-5MS(30 m × 0.32 mm × 1 μm),升温程序为:起始 65 °C,保持 2 min,以 5 °C/min 的速率升至 290 °C,保持 20 min,离子源为 EI,离子扫描模式为 SIM。根据标准样品中化合物的保留时间及质谱图定性分析;采用内标六点校正曲线法进行定量分析,标准样品的浓度分别为 0.025、0.05、0.1、0.25、0.5 和 1 ng/μL,各种 PAHs 的标准曲线线性良好。在实验过程中,同时进行方法空白和平行样品的分析,并用回收率指示物监测分析流程,氘代 PAHs 回收率:萘-d8 为 66 ± 7%、苊-d10 为 85 ± 4%、菲-d10 为 108 ± 5%、屈-d12 为 126 ± 10%、芘-d12 为 115 ± 12%。

2 结果与分析

2.1 PM_{2.5} 的污染水平

2012 年太原市采暖期 PM_{2.5} 的日均浓度水平为 70.7~274.2 μg/m³(平均值为 167.4 μg/m³),远超过 EPA 对环境空气中 PM_{2.5} 的日均浓度二级标准限值(35 μg/m³)^[4],超标倍数为 2~7.8 倍(见图 2)。与我国 PM_{2.5} 环境空气质量二级标准(75 μg/m³)《环境空气质量标准》(GB 3095-2012))相比,除 1 月 10 日外,其余样品全部超标。

与 2001、2005 和 2009 年采暖期相比,太原市 2012 年采暖期 PM_{2.5} 水平略有下降^[13-14],可能与近年来太原市污染源消减、推广集中供暖等措施有关。但是,太原市采暖期环境空气中的 PM_{2.5} 污染仍然处于较高水平,远高于广州(冬季日均水平 81.2 μg/m³)和青岛(5~10 月日均水平 97 μg/m³),略高于北京(冬季日均水平 115.3 μg/m³)和西安(冬季日均水平 130.1 μg/m³)^[2-3,15-16],与白银市 PM_{2.5} 浓度水平(8 月中下旬日均水平 91~277 μg/m³)相当^[17]。与国外城市相比,太原市 PM_{2.5} 的浓度水平分别是意大利佛罗伦萨、美国拉斯维加斯和巴西圣保罗冬季 PM_{2.5} 水平的 5.7、13.3 和 14 倍^[5-7]。中国以煤炭为主的能源结构区别于欧美国家,高能耗是中国城市 PM_{2.5} 水平长期高水平的主要原因。太原市区分布的钢铁、焦化和煤电等污染源是导致太原市环境空气中 PM_{2.5} 高水平的原因。此外,太原市采暖期的低温(-6.4~0.6 °C)夜间逆温、低风速(≤1.5 m/s)及三面环山的相对封闭地形条件使大气中 PM_{2.5} 表现出地区积累和不易扩散的特性(图 2)。

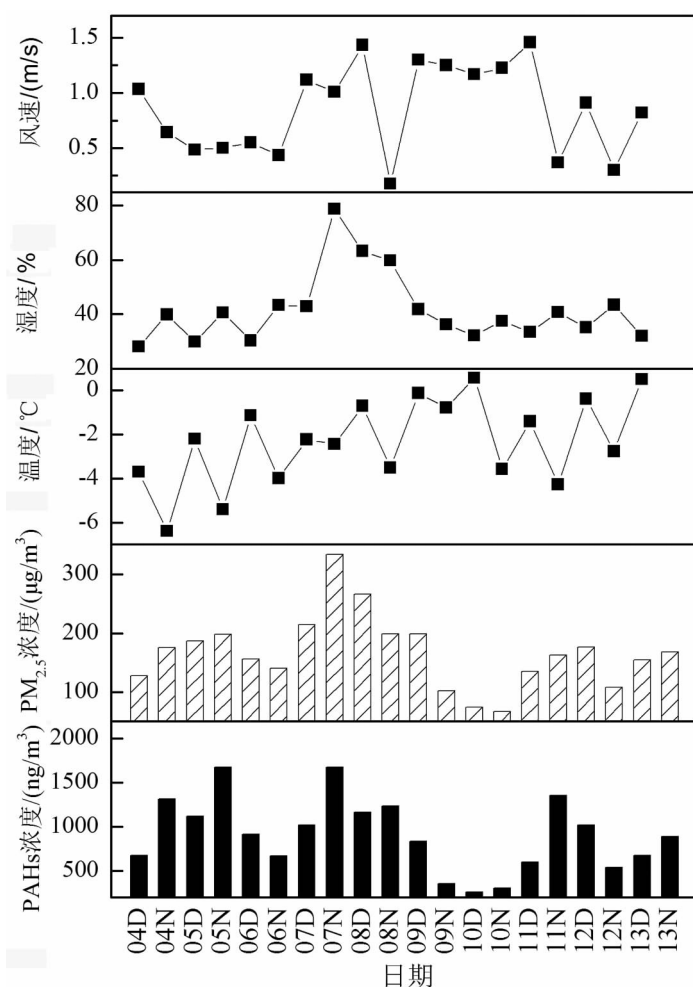


图2 太原市采暖期大气中 $PM_{2.5}$ 和 PAHs 水平及气象条件(D-日间,N-夜间)

Fig.2 Concentration of $PM_{2.5}$, $\Sigma PAHs$ in $PM_{2.5}$ and meteorological parameters during the heating season in Taiyuan City (D-day, N-night)

2.2 PAHs 的污染水平

太原市冬季采暖期 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 总浓度范围为 $282.7 \sim 1398.6 \text{ ng/m}^3$, 平均值为 $915.7 \pm 343.7 \text{ ng/m}^3$ 。Fla 是浓度最高的单体, 占 PAHs 总浓度的 20.4%, 其次是 Pry 和 Phe, 分别占 PAHs 总浓度的 14.5% 和 13.2%。Bap 是一种公认的致癌物, 太原市采暖期大气 $PM_{2.5}$ 中 Bap 的水平为 $14.7 \sim 77.1 \text{ ng/m}^3$, 均值为 50.1 ng/m^3 , 远超过我国《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 和世界卫生组织^[18] 对 Bap 的限值(分别为 2.5 和 1 ng/m^3)。与国内外其他城市相比(表 1), 太原市 $PM_{2.5}$ 中 Bap 的浓度比国外城市以及我国南方城市香港、重庆约高 1~2 个数量级; 也略高于我国北方燃煤城市北京和吉林。

1998 年太原市总悬浮颗粒物 TSP 中 8 种 PAHs (Phe、Ant、Fla、Pyr、Chr、BkF、Bep、Bap) 的水平为 1500 ng/m^3 ^[12], 2010 年冬季 $PM_{2.5}$ 中 16 种 PAHs 的浓度水平为 830.2 ng/m^3 ^[14], 本研究中 16 种 PAHs 浓度为 915.7 ng/m^3 , 显示太原市近年来大气颗粒物 PAHs 保持较高水平。昼夜的 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 结果显示, 夜间均值浓度 (1002.2 ng/m^3) 高于白天 (829.2 ng/m^3)。相关性分析表明, 太原市采暖期大气中 $PM_{2.5}$ 与 PAHs 相关性较高 ($R^2 = 0.68$), 大气中 $PM_{2.5}$ 污染水平变化影响 PAHs 的水平。城市大气颗粒物中 PAHs 主要来自化石燃料的高温燃烧(如煤和石油等的燃烧)及钢铁等工业过程。太原市 2012 年煤炭消耗量 $6995.7 \times 10^4 \text{ t}$, 机动车保有量为 80 万辆左右。发电和家用燃煤烟气、机动车尾气排放是太原市 SO_2 、 NO_x 和 PAHs 保持高污染水平的主要原因^[19]。相比于欧美国家以石油为主要能源, 煤炭是我国的主要消费能源, 冬季煤炭燃烧过程的高 PAHs 排放是我国城市, 如太原、重庆、北京、吉林(吉林、白城、四平 and 通化四个城市的平均浓度)等地大气中 PAHs 远高于国外城市(巴西圣保罗、美国亚特兰大、意大利佛罗伦萨等)的主要原因(表 1)。

2.3 PAHs 的毒性评价

由于 PAH 各个单体组分对人体的危害程度不同, 在对 PAHs 进行健康风险评价时, 常用毒性等效因子(toxic equivalency factors, TEFs)所计算出的当量浓度 Bap_{eq} 综合反映 PAHs 对健康的影响^[22]。太原市大气 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 的当量浓度 Bap_{eq} 结果见表 2。白天和晚上的 ΣBap_{eq} 分别为 75.5 ± 10.6 和 $100.0 \pm 14.4 \text{ ng/m}^3$, 均高于我国和 WHO 对 Bap 的规定值(分别为 2.5 和 1 ng/m^3), 说明太原市 PAHs 对人体健康存在潜在危害。夜间 ΣBap_{eq} 高于日间, 主要是由于夜间单体浓度高于日间。值得关注的是, 昼夜对 ΣBap_{eq} 贡献最大的 PAHs 均为 Bap, 贡献率均在 55% 以上, 故 $PM_{2.5}$ 中的 Bap 应作为污染控制的主要标志物, 以有效控制 $PM_{2.5}$ 中 PAHs 的污染负荷。

2.4 PAHs 来源解析

据报道煤燃烧和机动车尾气排放的 PAHs 组

表 1 国内外城市 PM_{2.5} (吉林为 TSP) 中 PAHs 浓度水平
Table 1 Concentration of PAHs in PM_{2.5} of domestic and foreign cities

地点	太原(本研究)		北京 ^[10]	吉林 ^[21]	重庆 ^[9]	香港 ^[20]	巴西圣保罗 ^[5]	美国亚 特兰大 ^[8]	意大利 佛罗伦萨 ^[6]
	时间	日均浓度							
	2012.1	2005.12~ 2006.1	2005.12~ 2006.1	采暖期	2012.12	2000.11~2001.3	2002 冬	2003.12	2008~2009 冬
	日间	夜间	日均浓度						
Nap	2.4±0.03	2.4±0.03	2.4±0.4	1.7	0.3	<LOD	0.02	NA	NA
Acy	2.6±0.06	2.0±0.07	2.3±0.7	1.1	0.5	<LOD	0.09	<LOD	NA
Ace	0.5±0.01	0.5±0.01	0.5±0.09	0.5	0.2	<LOD	0.35	0.07	NA
Flu	6.0±0.1	6.2±0.3	6.1±2.4	1.4	0.4	0.3	NA	<LOD	0.04
Phe	117.6±2.7	124.0±4.8	120.8±46.0	31.2	2.2	0.6	0.18	<LOD	0.5
Ant	18.0±0.5	27.6±1.4	22.8±11.5	4.5	0.8	0.01	NA	0.007	0.6
Fla	174.4±4.3	199.4±7.5	186.9±72.5	103.5	6.1	6.0	NA	0.1	0.6
Pyt	120.1±2.9	144.6±5.4	132.4±51.0	84.4	2.7	6.4	0.52	0.1	0.9
BaA	80.2±2.1	112.5±4.1	96.3±37.4	73.2	5.1	1.1	0.46	0.1	1.2
Chr	74.4±2.0	93.5±3.5	84.0±32.5	8.3	101.4	3.5	0.51	0.2	1.2
BbF	89.5±2.2	111.9±4.0	100.7±37.5	35.7	27.1	12.1	1.23	0.5	1.3
BkF	31.7±0.8	35.3±1.2	33.5±11.9	53.1	25.8	0.4	0.76	0.1	1.1
Bap	42.6±1.1	57.6±2.1	50.1±19.0	36.8	8.3	3.2	0.52	0.3	1
IcdP	26.1±0.6	30.3±1.1	28.2±10.2	30.8	27.6	4.7	2.47	0.5	0.9
DahA	8.5±0.2	11.2±0.4	9.9±3.5	6.3	9.0	4.7	NA	0.01	0.8
BghiP	34.5±0.8	43.4±1.5	39.0±13.9	31.6	18.4	2.9	2.36	0.2	0.5
Σ2-3 环	147.1±46.9,17.7±1.8%	162.6±90.8,16.2±2.2%	154.8±59.9,16.9±1.8%	39.9,5.9%	4.4,3.1%	1.2,0%	0.6,6.8%	0.08,3.5%	1.1,10.7%
Σ4 环	449.1±156.5,54.2±1.1%	550.0±289.0,54.9±1.3%	499.5±192.4,54.6±1.1%	222.3,54.5%	25.2,17.8%	17.37%	1.5,15.7%	0.5,22.9%	3.9,36.75%
Σ5-6 环	233.1±79.5,28.1±1.6%	289.7±143.4,28.9±1.4%	261.4±95.5,28.5±1.2%	276.2,40.7%	112.2,79.1%	28.61%	7.3,77.5%	1.6,73.6%	5.6,52.6%
ΣPAHs	829.2±280.0	1002.2±518.1	915.7±343.7	678.6	141.8	46.0	9.5	2.2	10.7

NA:未分析;LOD:检出限

表2 太原市大气PM_{2.5}中PAHs毒性当量浓度
Table 2 BaPeq of PAHs in PM_{2.5} of Taiyuan City

化合物	TEFs	BaPeq	
		日间	夜间
萘(Nap)	0.001	0.002 4±0.000 4	0.002 4±0.029
蒽(Anth)	0.001	0.002 6±0.000 8	0.002±0.066
芘(Per)	0.001	0.000 5±0.000 1	0.000 5±0.009
芴(Flu)	0.001	0.006±0.002	0.006 2±0.250
菲(Phe)	0.001	0.118±0.038	0.124±4.786
蒽(Ant)	0.01	0.180±0.063	0.276±1.357
荧蒽(Fla)	0.001	0.174±0.061	0.199±7.485
芘(Pyr)	0.001	0.120±0.041	0.145±5.405
苯并(a)蒽(BaA)	0.1	8.016±2.900	11.250±4.119
屈(Chr)	0.01	0.744±0.276	0.935±3.493
苯并(b)荧蒽(BbF)	0.1	8.955±3.141	11.191±3.957
苯并(k)荧蒽(BkF)	0.1	3.172±1.067	3.533±1.219
苯并(a)芘(Bap)	1	42.627±15.124	57.582±2.066
茚并(1,2,3,c,d)芘(IcdP)	0.1	2.613±0.874	3.026±10.53
二苯并(a,h)蒽(DahA)	1	8.532±30.53	11.171±0.393
苯并(g,h,i)芘(BghiP)	0.01	0.345±0.113	0.434±1.489
Σ16-PAHs		75.5±10.6	100.0±14.4

成不同,燃煤排放的PAHs主要以3环和4环为主,机动车尾气中PAHs主要以5环和6环为主^[23]。太原市大气PM_{2.5}中PAHs在环数分布上,4环PAHs的含量最高(499.5 ng/m³),占总PAHs的54.6%,其次是5~6环PAHs(261.4 ng/m³),占总浓度的28.5%,2~3环浓度为154.8 ng/m³,占16.9%(表1)。该PAHs组成特征区别于国外城市以及重庆、香港PM_{2.5}中以5~6环PAHs为主的特征,和吉林等北方城市以4环为主相似,燃煤污染特征明显。

不同来源PAHs的相对含量是稳定的,可以根据PAHs的特征比值来定性分析颗粒物中PAHs的来源^[24]。通常选取Ant/(Ant+Phe)、BaA/(BaA+Chr)、Fla/(Fla+Pyr)和IcdP/(IcdP+Bghi)判定PAHs的来源(见表3)。本研究中,Ant/(Ant+Phe)的比值为0.16±0.03, BaA/(BaA+Chr)的比值为0.59±0.01, Fla/(Fla+Pyr)的比值为0.53±0.02,显示太原市采暖期大气PM_{2.5}中PAH主要来自煤和生物质的燃烧。此外, IcdP/

(IcdP+Bghi)的比值为0.42±0.01,显示太原市存在石油燃烧与生物质燃烧的混合源对PAHs的贡献。结合太原能源结构以煤炭为主的特点可以判断太原市冬季PM_{2.5}中PAHs主要来源于煤燃烧,同时也存在一定的生物质燃烧和少部分的石油燃烧。

表3 用于源识别的PAHs的特征比值^[25-26]

Table 3 Value of molecular diagnostic ratio of PAHs for source identification^[25-26]

项目	均值	参考值及指示来源
Ant/(Ant+Phe)	0.16±0.03	<0.1:石油源 >0.1:燃烧源
BaA/(BaA+Chr)	0.59±0.01	<0.2:石油源 0.2~0.35:石油源和燃烧源的混合源 >0.35:燃烧源
Fla/(Fla+Pyr)	0.53±0.02	<0.2:石油源 0.4~0.5:机动车尾气 >0.5:煤和生物质燃烧
IcdP/(IcdP+BghiP)	0.42±0.01	<0.2:石油源 0.2~0.4:石油燃烧 0.4~0.5:石油燃烧与煤和生物质燃烧的混合源 >0.5:机动车尾气

3 结 论

太原市采暖期PM_{2.5}的日均浓度水平为70.7~274.2 μg/m³,超过了我国及美国EPA对PM_{2.5}的二级标准限值。PM_{2.5}中16种PAHs的平均浓度为915.7 ng/m³(282.7~1 398.6 ng/m³),与文献报道的其它地区相比处于较高的污染水平,其中Fla是浓度最高的单体,其次是Pyr和Phe。在环数分布上,以4环PAHs为主,占54.6%,燃煤特征明显,5~6环和2~3环PAHs分别占28.5%和16.9%。以Bap为参照对象的毒性当量浓度BaP_{eq},夜间大于日间,但均高于我国对Bap的规定值,说明空气中PAHs污染严重,对人体健康存在潜在危害。利用PAHs的特征比值法进行源解析,发现太原市采暖期PAHs主要来自于燃煤,同时也存在一定的生物质燃烧和少部分的石油燃烧。

参 考 文 献

- [1] 李 晓, 钱 枫, 何 翔. 北京市西三环地区大气颗粒物中多环芳烃的分布特性[J]. 环境科学研究, 2013, 26(9): 948-955.
- [2] 李 杏 茹, 郭 雪 清, 刘 欣 然, 等. 2007年春节期间北京大气颗粒物中多环芳烃的污染特征[J]. 环境科学, 2008, 29(8): 2 099-2 104.

- [3] 张碧云, 张承中, 周变红, 等. 西安采暖期 PM_{2.5} 及其水溶性无机离子的时段分布特征[J]. 环境工程学报 ISTIC, 2012, 6(5).
- [4] Miller A N. Reflecting the revised PM_{2.5} national ambient air quality standard in NEPA evaluations[DB/OL]. <http://www.epa.gov/air/criteria.html>.
- [5] Bourotte C, Forti M C, Taniguchi S, *et al.* A wintertime study of PAHs in fine and coarse aerosols in São Paulo city, Brazil[J]. Atmospheric Environment, 2005, 39(21): 3 799—3 811.
- [6] Martellini T, Giannoni M, Lepri L, *et al.* One year intensive PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons monitoring in the area of Tuscany, Italy. Concentrations, source understanding and implications[J]. Environmental Pollution, 2012, 164: 252—258.
- [7] Green M C, Chow J C, Chang M C O, *et al.* Source apportionment of atmospheric particulate carbon in Las Vegas, Nevada, USA[J]. Particuology, 2013, 11(1): 110—118.
- [8] Li Z, Porter E N, Sjödin A, *et al.* Characterization of PM_{2.5}-bound polycyclic aromatic hydrocarbons in Atlanta—Seasonal variations at urban, suburban, and rural ambient air monitoring sites[J]. Atmospheric Environment, 2009, 43(27): 4 187—4 193.
- [9] 陈敏. 重庆市主城区大气 PM₁₀, PM_{2.5} 中 PAHs 分布规律解析[D]. 西南大学, 2013.
- [10] Wang X, Cheng H, Xu X, *et al.* A wintertime study of polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} and PM_{2.5-10} in Beijing: Assessment of energy structure conversion[J]. Journal of Hazardous Materials, 2008, 157(1): 47—56.
- [11] Wang G, Kawamura K, Lee S, *et al.* Molecular, seasonal, and spatial distributions of organic aerosols from fourteen Chinese cities[J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40(15): 4 619—4 625.
- [12] 彭林, 曾凡刚, 陈名樑, 等. 太原市大气总悬浮颗粒物中正构烷烃和多环芳烃空间分布及来源分析[J]. 岩矿测试, 2003, 22(3): 206—210.
- [13] 孟昭阳, 张怀德, 蒋晓明, 等. 太原地区冬春季 PM_{2.5} 污染特征及影响因素[J]. 中国科学院研究生院学报, 2007, 24(5): 648—656.
- [14] 闫雨龙. 太原市气溶胶中细粒子污染特征及多环芳烃两相分配研究[D]. 山西: 太原科技大学, 2011.
- [15] 朱季华, 陶俊, 张仁健, 等. 冬夏季广州城区碳气溶胶特征及其与 O₃ 和气象条件的关联[J]. 环境科学学报, 2010, 30(10): 1 942—1 949.
- [16] 王丹, 屈文军, 张小曳, 等. 青岛海滨大气 PM_{2.5} 与 PM₁₀ 观测[J]. 西安建筑科技大学学报: 自然科学版, 2010, 42(1): 87—92.
- [17] 贺灵, 曾道明, 周国华, 等. 甘肃白银市大气颗粒物 PM_{2.5} 的地球化学特征研究[J]. 地球与环境, 2013, 41(003): 258—265.
- [18] World Health Organization, Air Quality Guidelines for Europe. WHO Regional Publication, European Series. World Health Organization, Regional Office for Europe, Copenhagen. 2000.
- [19] Li R J, Kou X J, Geng H, *et al.* Pollution characteristics of ambient PM_{2.5}-bound PAHs and NPAHs in a typical winter time period in Taiyuan[J]. Chinese Chemical Letters, 2014, (in press)
- [20] Guo H, Lee S C, Ho K F, *et al.* Particle-associated polycyclic aromatic hydrocarbons in urban air of Hong Kong[J]. Atmospheric Environment, 2003, 37(38): 5 307—5 317.
- [21] 房春生, 刘多, 温卓, 等. 吉林省典型城市大气中 PAHs 来源解析[J]. 生态环境学报 ISTIC, 2013 (6).
- [22] Yassaa N, YoucefMeklati B, Cecinato A, *et al.* Particulate n-alkanes, n-alkanoic acids and polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmosphere of Algiers City Area[J]. Atmospheric Environment, 2001, 35(10): 1 843—1 851.
- [23] 段凤魁, 贺克斌, 马永亮. 北京 PM_{2.5} 中多环芳烃的污染特征及来源研究[J]. 环境科学学报, 2009, 29(7): 1 363—1 371.
- [24] 汤国才. 气溶胶中多环芳烃的污染源识别方法[J]. 环境科学研究, 1993, 6(3): 37—41.
- [25] Budzinski H, Jones I, Bellocq J, *et al.* Evaluation of sediment contamination by polycyclic aromatic hydrocarbons in the Gironde estuary[J]. Marine Chemistry, 1997, 58(1): 85—97.
- [26] Yunker M B, Macdonald R W, Vingarzan R, *et al.* PAHs in the Fraser River basin: a critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition[J]. Organic Geochemistry, 2002, 33(4): 489—515.

Pollution Characteristics of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in PM_{2.5} during the Heating Season in Taiyuan City, China

GUO Lili¹, CUI Yang¹, ZHANG Guixiang¹, YAN Yulong¹,
HE Qiusheng^{1,*}, WANG Xinming²

(1. School of Environment and Safety, Taiyuan University of Science and Technology, Taiyuan 030024, China;

2. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry,
Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510630, China)

Abstract: This study investigated the concentration, composition, health risk and sources of PAHs in PM_{2.5} sampled during the heating season in 2012 in Taiyuan City, China. The daily average concentration of PM_{2.5} ranges from 70.7 to 274.2 μg/m³, and 90% of the samples exceeded the Grade II standard value of daily concentration of PM_{2.5} (75 μg/m³) according to China's "Ambient Air Quality Standards" (GB3095-2012). The concentrations of Σ16-PAHs in PM_{2.5} range from 282.7 to 1 398.6 ng/m³, with average concentration of 915.7 ng/m³. The Fla is the most abundant of PAHs, accounting for 20.4% of Σ16-PAHs, followed by Pyy and Phe, accounting for 14.5% and 13.2%, respectively. The concentrations of PAHs based on ring numbers are ranked as 4 rings > 5-6 rings > 2-3 rings. The toxicity equivalence concentrations (Bap_{eq}) using benzo[a]pyrene (Bap) as the primary representative for PAHs are 75.5 ng/m³ in the day and 100.0 ng/m³ in the night, higher than the recommended safety standards of China and WHO (2.5 and 1 ng/m³), indicating the potential risk of PAHs to human health. Rings distribution and the diagnostic ratios of PAHs indicate that PAHs in Taiyuan City are primarily derived from coal combustion, and also with small part from biomass combustion and petroleum combustion.

Key words: Taiyuan; PM_{2.5}; polycyclic aromatic hydrocarbon; characteristics of pollution