

太原市大气 PM_{2.5} 中铅同位素特征研究

闫雨龙^{1,2}, 郭利利¹, 张桂香¹, 何秋生^{1,*}, 王新明³

(1. 太原科技大学 环境与安全学院, 太原 030024; 2. 太原理工大学 环境科学与工程学院, 太原 030024;
3. 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 510640)

摘要: 使用 ICP-MS 测定太原市 2009 年夏季至 2010 年春季典型月份中存在于 PM_{2.5} 上的铅(Pb)及同位素特征, 分析了铅的浓度水平、季节变化特征, 探讨了铅同位素丰度比特征, 并由富集因子法初步解析了铅的来源。结果显示, 太原市环境大气中存在于 PM_{2.5} 上的 Pb 含量为 270.83 ng/m³, 低于我国环境空气质量标准(GB3095-2012)中对颗粒物中铅的年均限值, 在国内属中等水平。冬季存在于 PM_{2.5} 中的 Pb 浓度水平最高, 与取暖燃煤排放有关; 扬尘中的 Pb 富集则对春季的 Pb 污染有较大贡献。Pb 与 PM_{2.5} 的相关性显示夏季和冬季二者来源一致, 皆为燃煤排放; ²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb 与 ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 的同位素丰度比特征也表明 PM_{2.5} 中 Pb 的主要源于燃煤排放, 由于冬季煤炭消费量较高, 其燃烧排放对 PM_{2.5} 中 Pb 的贡献高于其他季节。采样期间 PM_{2.5} 中 Pb 的富集因子(20.45)显示, Pb 主要源于人为活动的排放; 春季的富集因子(10.76)接近 10, 表明春季时自然源的 Pb 对 PM_{2.5} 的贡献较大。

关键词: PM_{2.5}; 铅; 同位素丰度比; 富集因子; 来源

中图分类号: X82 **文献标识码:** A **文章编号:** 1672-9250(2015)03-0279-06 **doi:** 10.14050/j.cnki.1672-9250.2015.03.002

大气中的铅(Pb)由于其对人体的大脑、神经和肾脏产生巨大的危害作用, 长期以来受到政府和学者的广泛关注。Pb 在大气中以固态形式存在于颗粒物上, 其中 70%~85% 以上集中在 PM_{2.5} 上, 因其可吸入性故对人体的危害更大^[1-3]。据报道, 广州^[1]、佛山^[1]、天津^[4]等城市的浓度接近或超过我国环境空气质量标准(GB3095-2012)^[5] 中的年均限值 500 ng/m³, 其他城市如沈阳^[6]、北京^[7]、乌鲁木齐^[8]、上海^[9]、南京^[10]、重庆^[11]等地 PM_{2.5} 中的铅污染程度也远超美国^[12]、匈牙利^[13]等国的城市。我国城市环境空气中存在于 PM_{2.5} 上的 Pb 污染严重^[1-2]。研究发现空气中不同来源的 Pb 同位素组成差异明显, 我国燃煤发电厂排放的烟尘中 Pb 的 ²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb 和 ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 同位素丰度比值为分别为 1.191 和 2.078, 机动车排放的尾气颗粒物中比值分别为 1.157 和 2.118^[14-17]。Pb 同位素丰度比值的来源解析结果显示: 无铅化汽油使用后, 燃煤排放、工业排放、扬尘等排放源对城市大气颗粒物中的 Pb 的

贡献逐步上升^[18-22]。

太原市的颗粒物污染严重, 环境空气中的 PM_{2.5} 浓度在 2009 年夏季至 2010 年春季、2012 年和 2013 年 1 月分别达到 222.60、226.71 和 161.4 μg/m³^[23-25], 均远超我国环境空气质量标准(GB3095-2012)二级标准的浓度限值^[5]。目前针对太原市环境空气中的 PM_{2.5} 研究集中在浓度及其上的有机物为主^[23-25], 针对重金属的污染特征研究较少, 尤其是毒害重金属 Pb 同位素的相关研究尚未见报道。本研究通过对太原市 2009 年夏季至 2010 年春季典型月份的空气中 PM_{2.5} 采样, 分析其中铅的污染水平和季节变化水平, 并根据铅同位素特征和富集因子法对铅的来源做初步解析, 为太原市大气环境的污染治理、环境管理和科学决策提供科学依据。

1 实验

1.1 样品的采集

收稿日期: 2014-08-11; 改回日期: 2014-11-25

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: 闫雨龙(1986-), 男, 博士研究生, 主要研究方向为大气灰霾及控制。E-mail: yanyulong@yeah.net.

* 通讯作者: 何秋生(1977-), 男, 博士, 副教授, 研究方向为大气环境。E-mail: heqs@tyust.edu.cn.

采样点位于太原西北部的太原科技大学校园内,在科技楼的楼顶(距地 25 米)(图 1)。样品采集使用的是大流量采样器(TH-1000,配备 $PM_{2.5}$ 切割头,天虹仪表),流量设置为 $1.05 \text{ m}^3/\text{min}$ 。在每次使用前都对采样器进行流量校正。

在 2009 年夏季至 2010 年春季,选取每个季节的典型代表月份,对大气中 $PM_{2.5}$ 的样品进行采集(表 1),采样时间为每天上午 9:00 至次日上午 9:00。

表 1 采样时间
Table 1 Sampling time

季节	采样时间
夏季	2009. 8. 1~2009. 8. 21
秋季	2009. 9. 29~2009. 10. 27
冬季	2009. 11. 16~2009. 12. 9
	2010. 1. 4~2010. 1. 10
春季	2010. 3. 26~2010. 4. 18

1.2 样品前处理

前处理方法参考之前文献中的方法^[26]。准确裁取 4.5 cm^2 的 $PM_{2.5}$ 采样滤膜,将其置于单球玻璃管中,缓慢加入 1 mL 纯化 HNO_3 ,于通风柜中放置 1 h 后,用氧气-乙炔火焰将玻璃管的顶端熔化密封,移至金属钢套中,于 $190 \text{ }^\circ\text{C}$ 烘箱保温 12 h。用液氮将倒置的单球玻璃管冷却后,打开玻璃管,取 0.2 mL 上层清液,加 0.1 mL 内标($10 \text{ } \mu\text{g}/\text{L}$ Rh、Re),0.2 mL 优级纯乙醇,用水定容至 10 mL。摇匀后静置,测试前首先在离心机上离心 10 min,测试时取上清液。同位素标准物质、金属原始标准储备液购

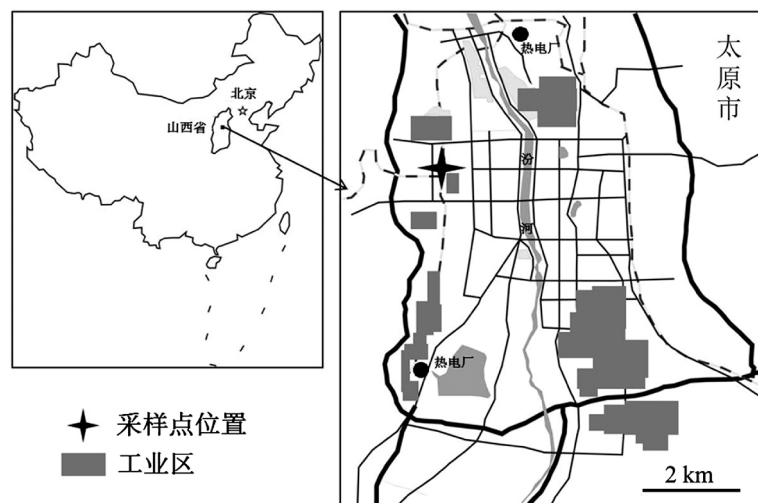


图 1 太原市功能区划及采样点位置

Fig. 1 Functional regionalization of Taiyuan City and sampling site location

自美国 Accu Standard 公司。

1.3 仪器分析及方法

分析仪器为 P-E Elan 6000 型 ICP-MS 质谱仪。仪器工作参数:RF 发射功率 1175 W,雾化器氦气流量 $0.83 \text{ L}/\text{min}$,等离子体氦气流量 $15 \text{ L}/\text{min}$,辅助氦气流量 $1.2 \text{ L}/\text{min}$;透镜电压:自动聚焦;质谱扫描方式:跳峰;每个质量积分时间:100 ms;数据测量组数:3 组。

实验中方法对加标 Pb 的回收率在 80% 以上,仪器对 Pb 的检测限为 $1.17 \text{ ng}/\text{mL}$ 。实验过程同步进行空白实验,结果显示实验室空白和现场空白的检测值均低于方法检测限。样品同位素测定误差为 ± 0.002 ,样品 Pb 同位素比值的内部精度优于 0.1%。实验过程中选取 5% 进行重复实验,实验结果相对标准偏差小于 5%。

2 结果与讨论

2.1 $PM_{2.5}$ 中 Pb 的水平

太原市 2009 年夏季至 2010 年春季典型季节中存在于 $PM_{2.5}$ 中的 Pb 浓度变化范围为 $7.18 \sim 1007.81 \text{ ng}/\text{m}^3$,平均水平为 $270.83 \pm 218.22 \text{ ng}/\text{m}^3$,低于中国《环境空气质量标准》^[5]和欧盟《空气质量标准》^[27]中对环境空气中的 Pb 浓度要求年均限值 $500 \text{ ng}/\text{m}^3$ (表 2)。全年共有 14 日的样品中 Pb 浓度超过 $500 \text{ ng}/\text{m}^3$,都集中在冬季,占冬季总样品数量的 50%。与国内其他城市相比,太原市 2009 年至 2010 年存在于 $PM_{2.5}$ 中的 Pb 污染水平是

北京^[7]的 1.46 倍,乌鲁木齐^[8]的 4.04 倍,上海^[9]的 4.59 倍,南京^[10]的 1.89 倍,重庆^[11]的 3.52 倍,低于天津($592.40 \text{ ng}/\text{m}^3$)^[4]、沈阳($346 \text{ ng}/\text{m}^3$)^[6]、广州($417.30 \text{ ng}/\text{m}^3$)^[1]、佛山($765.30 \text{ ng}/\text{m}^3$)^[1]、深圳($291.20 \text{ ng}/\text{m}^3$)^[1]环境空气中存在于 $PM_{2.5}$ 中的 Pb 污染水平。太原市大气 $PM_{2.5}$ 中的 Pb 污染水平在全国处于中等水平,污染可能与太原市以煤为主的能源结构和冶炼等重工业发达有关。

太原市大气存在于 $PM_{2.5}$ 中 Pb 水平最严重的是冬季($514.72 \text{ ng}/\text{m}^3$),秋季和春季的污染水平相当,最低的是夏季($122.57 \text{ ng}/\text{m}^3$)(表 2)。《环境空气质量标准》^[5]中对环境空气中的 Pb 浓度要求季均限值为 $1000 \text{ ng}/\text{m}^3$,在采样期间各

表 2 太原市 PM_{2.5} 中 Pb 的水平特征及季节变化

Table 2 Level characteristics and seasonal variations of Pb in PM_{2.5} in Taiyuan City ng/m³

时段	最小值	最大值	中位数	平均值	标准偏差
全年	7.18	1 007.08	187.73	270.83	218.22
夏季	7.18	213.83	118.45	122.57	47.37
秋季	38.04	297.53	151.29	117.34	91.24
冬季	81.68	1 007.08	497.94	514.72	230.33
春季	46.11	328.34	187.73	175.86	78.45

个季节的浓度值均低于该限值。全年采样中仅有一日的样品超过 1 000 ng/m³, 出现在冬季。和许多北方采暖城市类似^[2,8], 太原市冬季铅污染水平最高的主要原因是燃煤取暖排放^[3]。太原市秋季和春季大气存在于 PM_{2.5} 中 Pb 污染水平相当。由采样期间的气象参数统计可知, 秋季是全年风速最低的季节, 在稳定的大气层结构下颗粒物难以扩散, 可能是造成秋季 PM_{2.5} 中 Pb 污染较为严重的原因之一。研究表明, 沙尘天气下自然富集的 Pb 会对空气中的 Pb 造成影响^[9]。采样期间的春季是全年风速最大的季节, 源于沙尘中的 Pb 在春季时对 PM_{2.5} 中 Pb 的贡献可能较大。太原市大气 PM_{2.5} 中 Pb 污染的季节变化趋势和同处于华北地区的北京相似^[6]。

图 2 显示了各个季节 PM_{2.5} 与 Pb 的散点分布

(图 2), 夏季环境空气中 PM_{2.5} 的浓度与 Pb 的浓度相关性最好 ($r=0.853$), 其次是冬季 ($r=0.615$), 说明 PM_{2.5} 和 Pb 的来源较为一致, 夏季 PM_{2.5} 和 Pb 的来源可能主要是广泛分布在太原周边区域的热电厂燃煤排放, 而冬季除热电厂排放外, 还有大量取暖的燃煤排放导致。相比起夏季、冬季两个高耗煤量的季节, 耗煤量相对较低的秋季和春季环境空气中 PM_{2.5} 的浓度与 Pb 的浓度相关性较差。

2.2 PM_{2.5} 中 Pb 的同位素丰度比特征

太原市各个季节 PM_{2.5} 的 Pb 同位素丰度比统计结果显示 (图 3), 全年 ²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb 的丰度比为 1.186, ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 的丰度比为 2.057。与国内其他城市相比, 太原市 PM_{2.5} 中的 Pb 同位素丰度比显示极强的特异性: ²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb 远高于北京 (1.147~1.150)、上海 (1.164)、成都 (1.166) 等城市, 而 ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 则远低于这些城市 (北京: 2.124~2.127, 上海: 2.106; 成都: 2.457)^[18-22]。各个季节的 Pb 同位素丰度比值之间具有差异性, ²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb 在秋季 (1.187) 和冬季 (1.188) 的值相当, 高于夏季 (1.183) 和春季 (1.183); ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 在夏季 (2.073) 和秋季 (2.074) 相当, 高于春季 (2.065) 和冬季 (2.027)。Pb 同位素丰度比的差异大于仪器的同位素丰度测定误差 0.002, 这意味着不同季节之间的

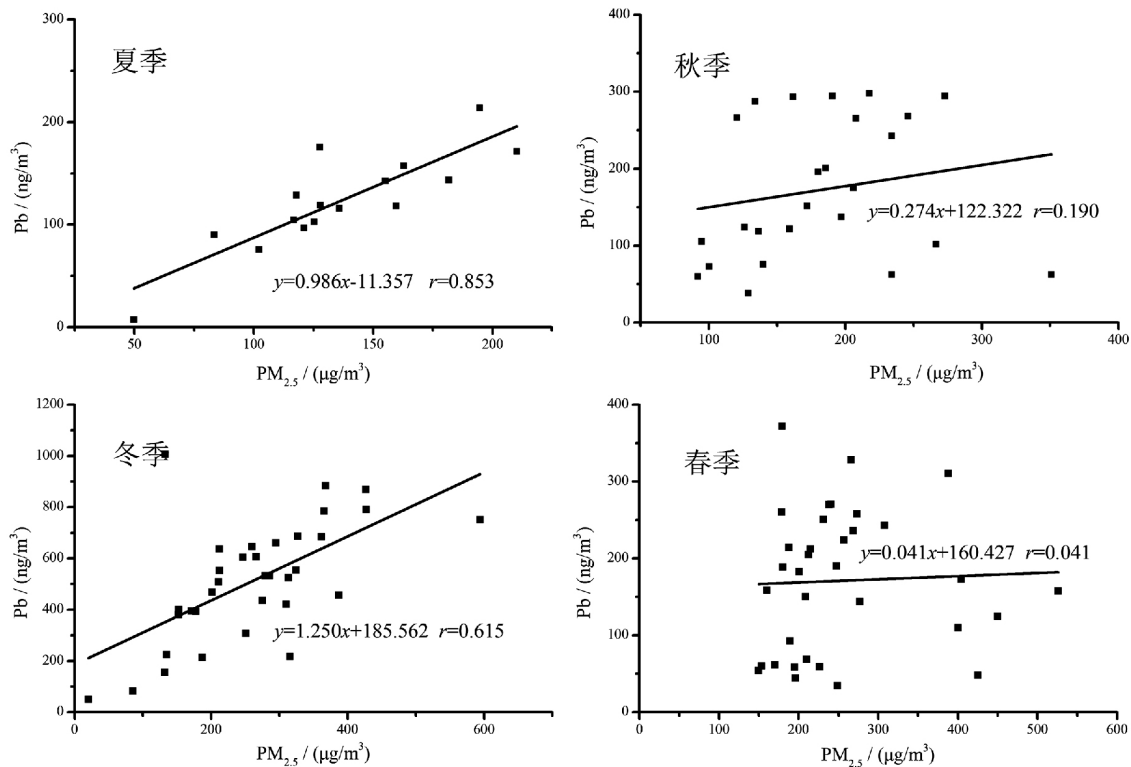


图 2 太原市四季中 PM_{2.5} 与 Pb 的相关性分析

Fig. 2 Correlation analysis between PM_{2.5} and Pb in four seasons in Taiyuan City

Pb同位素丰度比具有显著差异。

与各种污染源排放的Pb同位素 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 特征相比(图3),太原市 $\text{PM}_{2.5}$ 中的Pb同位素特征与燃煤排放的烟尘中的Pb同位素相当^[16,20,28-29],表明太原市大气中的Pb主要来源为燃煤排放,这与太原市的能源结构一致。冬季的比值最高,显示了燃煤排放对冬季空气中Pb的贡献高于其他季节。之前研究显示,Pb汽油添加剂中的 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 同位素丰度比为1.11,使用后会导致空气中Pb的该丰度比大幅度下降^[30],太原市空气中 $\text{PM}_{2.5}$ 中 $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ 同位素丰度比处于高位,显示了无铅汽油推广减少了燃油Pb对空气中的Pb的影响。污染源的 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 的同位素丰度比显示,相比于其他排放源的高(>2.10),燃煤排放的烟尘中丰度比的值(<2.10)较低^[16,21,28-29]。本研究中太原 $\text{PM}_{2.5}$ 中的 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 的值(2.027~2.074)低于2.10,与热电厂排放的烟尘中的丰度比(2.078)^[16]相当,远低于其他排放源的丰度比(2.10~2.118)。该同位素丰度比进一步表明燃煤为太原市大气中 $\text{PM}_{2.5}$ 上Pb的主要来源。和夏季的热电厂燃烧洗选精煤相比,冬季城中村取暖燃烧的散煤由于未经过洗选,大量矸石、杂质在燃烧过程中排放铅,可能是导致冬季 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 丰度比远低于其他季节的原因。

2.3 $\text{PM}_{2.5}$ 中Pb的富集因子分析

应用富集因子研究大气气溶胶中元素的富集程度,进行大气污染状况的分析,以判断自然与人为污染的来源及其对污染的比例等问题,已成为普遍使用的方法。富集因子的计算公式如下:

$$E_f = \frac{(C_i/C_r)_{\text{环境}}}{(C_i/C_r)_{\text{背景}}} \quad (1)$$

式中, E_f 为富集因子, C_i 、 C_r 为分别为元素*i*和参比元素的质量浓度; C'_i 、 C'_r 分别为元素*i*和参比元素的背景值。若 $E_f < 10$,认为元素相对于地壳未富集,主要来源为自然源,由土壤岩石风化造成;若 $E_f > 10$,认为元素被富集,主要来源为人为源^[31]。

本研究选取地壳中分布最多的Al为参比元素,以太原市土壤中的Al和Pb浓度值(6 830 $\mu\text{g/g}$ 和20 $\mu\text{g/g}$)为背景值^[32],依据公式(1)对采样期间 $\text{PM}_{2.5}$ 中的Pb的富集情况进行分析。计算结果(图4)显示,太原市大气 $\text{PM}_{2.5}$ 中的Pb全年富集因子(20.45)大于10,表明 $\text{PM}_{2.5}$ 中的Pb的主要是与人为活动有关。不同季节的Pb的富集因子有较大差别,富集因子从大到小排列顺序为夏季 $>$ 秋季 $>$ 冬季 $>$ 春季。夏季的富集因子为36.64,由于夏季植被茂盛导致自然源排放贡献较小,人为排放的Pb贡献较大造成 $\text{PM}_{2.5}$ 中的Pb富集因子最高;冬季由

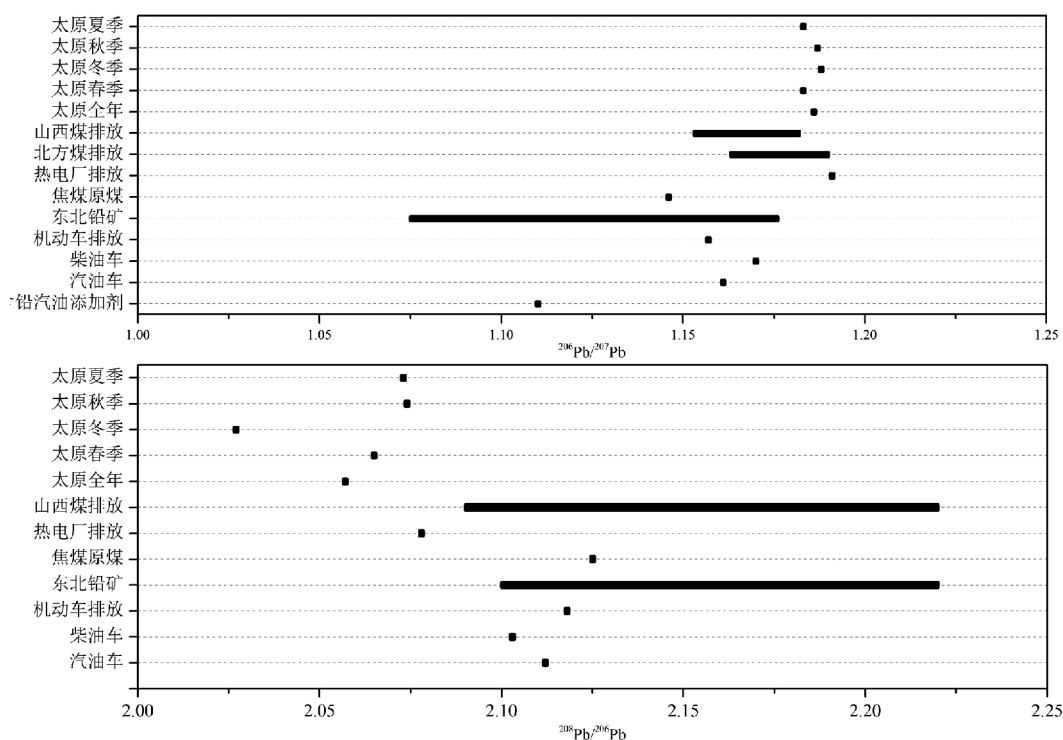


图3 太原市 $\text{PM}_{2.5}$ 中Pb同位素丰度比特征(据文献^[16, 17, 19, 21, 28, 29])

Fig. 3 Ratio characteristics of isotope abundance ofPb in $\text{PM}_{2.5}$ in Taiyuan City (After ref. ^[16, 17, 19, 21, 28, 29])

含有大量的碳质和 Al 等金属元素,这就造成冬季 PM_{2.5} 中的 Pb 主要是人为来源贡献,但其在 PM_{2.5} 上的富集因子相对较低。春季的富集因子(10.76)显著低于其他季节,其值接近 10 反映由土壤岩石风化造成的自然富集对 PM_{2.5} 中的 Pb 的贡献较大,这与春季是太原扬尘多发的季节一致。

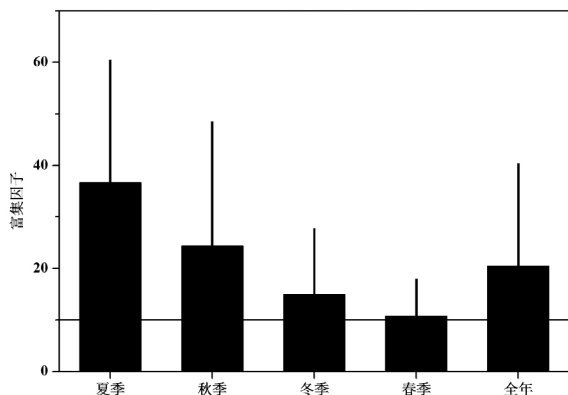


图 4 太原市 PM_{2.5} 中 Pb 的富集因子

Fig. 4 Enrichment factor of Pb in PM_{2.5} in Taiyuan City

3 结 论

使用大流量采样器采集 2009 年夏季至 2010 年春季太原市大气 PM_{2.5} 样品,使用 ICP-MS 测定 PM_{2.5} 中的铅浓度及同位素丰度比值。结果显示,太原市环境大气 PM_{2.5} 中 Pb 浓度水平为 270.83 ng/m³,低于环境空气质量标准;但和其他城市相比,Pb 污染水平较为严重。冬季 PM_{2.5} 中的 Pb 浓度水平最高,扬尘中的 Pb 在春季时对 PM_{2.5} 中的 Pb 的贡献较其它季节大。Pb 与 PM_{2.5} 的相关性显示夏季和冬季二者来源较一致,为燃煤排放导致。²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb 与 ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 的丰度比特征也证实了 PM_{2.5} 中 Pb 的主要源于燃煤排放。以铝为参比的富集因子也表明 PM_{2.5} 中 Pb 的主要是与人为活动有关,相对于其他季节,自然富集对春季的 PM_{2.5} 中的 Pb 贡献较大。

参 考 文 献

- [1] Duan J, Tan J. Atmospheric heavy metals and arsenic in China: Situation, sources and control policies[J]. Atmospheric Environment, 2013, 74: 93-101.
- [2] 谭吉华, 段菁春. 中国大气颗粒物重金属污染, 来源及控制建议[J]. 中国科学院研究生院学报, 2013, 30(2): 145-155.
- [3] 杨建军, 马亚萍. 太原市大气颗粒物中金属元素的富集特征[J]. 卫生研究, 1997, 26(2): 87-89.
- [4] 陈培飞, 张嘉琪, 毕晓辉, 等. 天津市环境空气 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 中典型重金属污染特征与来源研究[J]. 南开大学学报(自然科学版), 2013, 46(6): 1-7.
- [5] GB3095-2012. 环境空气质量标准[S]. 2012.
- [6] 余涛, 程新彬, 杨忠芳, 等. 辽宁省典型地区大气颗粒物重金属元素分布特征及对土地质量影响研究[J]. 地学前缘, 2008, 15(5): 146-154.
- [7] 陶俊, 张仁健, 段菁春, 等. 北京城区 PM_{2.5} 中致癌重金属季节变化特征及其来源分析[J]. 环境科学, 2014, 35(2): 411-417.
- [8] 孙龙仁. 乌鲁木齐市大气 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 中重金属的污染特征研究[D]. 新疆农业大学, 2009.
- [9] 胡子梅, 王军, 陶征楷, 等. 上海市 PM_{2.5} 重金属污染水平与健康风险评估[J]. 环境科学学报, 2013, 33(12): 3399-3406.
- [10] 刘凤玲, 卢霞, 吴梦龙, 等. 南京大气细粒子中重金属污染特征及来源解析[J]. 环境工程学报, 2014, 8(2): 652-658.
- [11] 焦姣, 姬亚芹, 白志鹏, 等. 重庆市颗粒物 PM₁₀/PM_{2.5} 中元素污染特征和来源[J]. 南开大学学报(自然科学版), 2013, 46(6): 8-19.
- [12] Maenhaut W, Raes N, Chi X, et al. Chemical composition and mass closure for fine and coarse aerosols at a kerbside in Budapest, Hungary, in spring 2002[J]. X-Ray Spectrometry, 2005, 34(4): 290-296.
- [13] Na K, Cocker III D R. Characterization and source identification of trace elements in PM_{2.5} from Mira Loma, Southern California [J]. Atmospheric Research, 2009, 93(4): 793-800.
- [14] Bollhofer A, Rosman K J R. Isotopic source signatures for atmospheric lead: the Northern Hemisphere [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2001, 65(11): 1727-1740.
- [15] Mukai H, Furuta N, Fujii T, et al. Characterization of sources of lead in the urban air of Asia using ratios of stable lead

- isotopes[J]. *Environmental Science & Technology*, 1993, 27(7): 1 347-1 356.
- [16] 高志友, 尹观, 倪师军, 等. 成都市城市环境铅同位素地球化学特征[J]. *中国岩溶*, 2005, 23(4): 267-272.
- [17] 陈好寿, 裴辉东, 张霄宇, 等. 杭州大气铅主要污染源的铅同位素示踪[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 1998, 17(3): 146-149.
- [18] 李显芳, 刘咸德, 李冰, 等. 北京大气 $PM_{2.5}$ 中铅的同位素测定和来源研究[J]. *环境科学*, 2006, 27(3): 401-407.
- [19] 刘咸德, 朱祥坤, 董树屏, 等. 北京市大气颗粒物分级样品的铅同位素丰度比测量与来源研究[J]. *质谱学报*, 2011, 32(3): 151-158.
- [20] Zheng J, Tan M, Shibata Y, *et al.* Characteristics of lead isotope ratios and elemental concentrations in PM_{10} fraction of airborne particulate matter in Shanghai after the phase-out of leaded gasoline [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(8): 1 191-1 200.
- [21] 张桂林, 谈明光, 李晓林, 等. 上海市大气气溶胶中铅污染的综合研究[J]. *环境科学*, 2006, 27(5): 831-836.
- [22] Bollhofer A, Rosman K J R. The temporal stability in lead isotopic signatures at selected sites in the Southern and Northern Hemispheres [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2002, 66(8): 1 375-1 386.
- [23] 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]. 太原科技大学, 2011.
- [24] 贾小花. 太原市大气气溶胶 $PM_{2.5}$ 中有机物的现状分析[D]. 山西大学, 2013.
- [25] 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, 25(5): 663-666.
- [26] 徐鹏, 孙亚莉. Carius 管密封溶样 等离子体质谱法测定环境样品中镉, 锆, 砷, 硒, 镉, 锡, 铋, 碲, 汞, 铅和铋[J]. *分析化学*, 2010, 38(4): 581-584.
- [27] European Commission, Air Quality Standards. <http://ec.europa.eu/environment/air/quality/standards.htm>, available date: 2014/7/13.
- [28] 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]. *Environmental Science & Technology*, 2001, 35(6): 1 064-1 071.
- [29] 于凯, 李旭祥, 支泽林, 等. 铅锌冶炼厂周边土壤铅源的铅同位素示踪[J]. *环境监测管理与技术*, 2014 (2): 17-21.
- [30] 王婉, 刘咸德, 赵立蔚, 等. 用同位素方法评估天津市汽油无铅化进程[J]. *中国环境科学*, 2003, 23(6): 627-630.
- [31] 陈怀满, 郑春荣, 周东美, 等. 土壤中化学物质的行为与环境质量[M]. 北京: 科学出版社, 2002: 9-10, 46-47.
- [32] 中国环境监测总站. 中国土壤元素背景值[M]. 北京: 中国环境科学出版社, 1990.

Isotope Characteristics of Lead in $PM_{2.5}$ of Taiyuan City, China

YAN Yulong^{1,2}, GUO Lili¹, ZHANG Guixiang¹, HE Qiusheng^{1,*}, WANG Xinming³

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

2. College of Environmental Sciences and Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China;

3. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China)

Abstract: $PM_{2.5}$ samples were collected in Taiyuan City, China from summer 2009 to spring 2010, and lead (Pb) and its isotopic abundance were detected using ICP-MS. Levels and seasonal variation characteristics of lead were reported, and the characteristics of lead isotope abundance and its sources were discussed by enrichment factor method. Results show that the average concentration of Pb in $PM_{2.5}$ in Taiyuan was 270.83 ng/m³ during the sampling time, lower than that in the ambient air quality standards of China (GB3095-2012), but still at the medium pollution level in most cities in China. The concentration of Pb in $PM_{2.5}$ in winter was the highest the whole year due to the excessive coal combustion for heating. In spring, Pb from dust might be the main source for the Pb enrichment in $PM_{2.5}$. Pb and $PM_{2.5}$ had the same main source of coal emission both in summer and winter by the correlation relationship. The isotopic abundance ratios of ²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb and ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb show that the main source of Pb in $PM_{2.5}$ was coal emissions, especially in winter. Enrichment factor of Pb was 20.45 for the whole samples, and was mainly related to human activities. In spring, the enrichment factor was 10.76 and means the more contribution of natural enrichment.

Key words: $PM_{2.5}$; Lead; isotopic abundance ratio; enrichment factor; source