

附件5

《环境空气 颗粒物来源解析 化学质量平衡（CMB）模型  
计算技术指南（征求意见稿）》  
编制说明

《环境空气 颗粒物来源解析 化学质量平衡（CMB）模型  
计算技术指南》标准编制组

二〇二二年十月

# 目 录

|                          |    |
|--------------------------|----|
| 1 项目背景.....              | 1  |
| 1.1 任务来源.....            | 1  |
| 1.2 工作过程.....            | 1  |
| 2 标准制订的必要性分析.....        | 2  |
| 3 国内外 CMB 模型的发展与应用 ..... | 2  |
| 3.1 CMB 模型发展 .....       | 2  |
| 3.2 CMB 模型原理 .....       | 3  |
| 3.3 CMB 模型的应用 .....      | 3  |
| 4 标准制订的基本原则和技术路线.....    | 7  |
| 4.1 标准制订的基本原则.....       | 7  |
| 4.2 标准制订的技术路线.....       | 7  |
| 5 研究报告.....              | 8  |
| 5.1 适用范围.....            | 8  |
| 5.2 规范性引用文件.....         | 8  |
| 5.3 术语和定义.....           | 8  |
| 5.4 软件和设备.....           | 11 |
| 5.5 模型原理和假设.....         | 11 |
| 5.6 数据准备.....            | 12 |
| 5.7 模型运算.....            | 14 |
| 5.8 模型诊断.....            | 19 |
| 5.9 结果报告.....            | 22 |
| 6 模型验证.....              | 26 |
| 6.1 数据准备.....            | 26 |
| 6.2 验证结果.....            | 26 |
| 7 对实施本标准的建议.....         | 28 |
| 8 参考文献.....              | 28 |

# 《环境空气颗粒物来源解析 化学质量平衡（CMB）模型计算 技术指南（征求意见稿）》编制说明

## 1 项目背景

### 1.1 任务来源

为促进源解析研究工作的业务化，促进各地科学、规范地开展源解析研究工作，受生态环境部大气司委托，开展源解析中基于受体模型的方法，应用化学质量平衡（CMB）模型计算颗粒物来源的相关研究，编制《环境空气颗粒物来源解析 化学质量平衡（CMB）模型计算技术指南》。2021年该标准正式立项，编号 2021-79。

### 1.2 工作过程

2019年该项标准的相关内容作为大气司的专项工作开展研究，由中国环境监测总站、南开大学相关技术人员组成项目工作组。

2019年1月~4月，调研全国源解析的开展情况和国内外受体模型的研究进展，总结和分析第一批省会城市源解析工作中，化学质量平衡模型的应用情况和监测系统中存在的问题，编写了《环境空气颗粒物来源解析 化学质量平衡（CMB）模型计算技术指南》（试行）文本和编制说明初稿。

2019年4月25日，项目组在北京召开技术研讨暨工作启动会，生态环境部大气司和监测司的主要负责人参会，源解析领域的多位专家出席会议，对本操作指南的研究内容、技术路线、进度安排等进行研讨并提出了建议，会后形成了会议纪要。此后，编制组对CMB模型的操作和使用开展系统研究，结合实践经验，优化确定关键技术参数，完善操作指南。

2019年11月，通过应用源解析受体模型的实际数据，组织西安市环境监测站、福建省福州环境监测中心站、宁波市环境监测站按照本技术指南进行模型计算和源解析结果的分析，根据各不同技术人员反馈的结果，编制组对技术指南文本进一步修改和完善，编写了《环境空气颗粒物来源解析 化学质量平衡（CMB）模型计算技术指南》（试行）的文本和编制说明。

2021年标准立项后，成立由中国环境监测总站、南开大学和中国环境科学研究院相关技术人员标准编制组，重新按照标准开题报告的格式要求，编写了《环境空气 颗粒物来源解析 化学质量平衡（CMB）模型计算技术指南》开题报告。专家委员会一致通过该标准的开题论证审查，形成意见如下：根据前期工作的完成情况，同意进入征求意见稿审查。

2021年8月9日，标准牵头单位中国环境监测总站以腾讯会议的形式组织召开了征求意见稿站内技术审查会，会议通过审查并形成如下意见：①该标准对环境空气颗粒物来源解析模型计算具有指导意义，编制组提交的材料完整，标准编制内容科学、全面、可操作性强；②建议

进一步规范调整模型假设、适用范围、软件引用、源成分谱、附录等相应内容；③建议附件中增加源谱谱库供参考。会后，编制组根据意见进一步修改完善。

2021年12月1日，生态环境部标准所组织召开了征求意见稿技术审查会，会议以腾讯视频会议形式召开，专家委员会一致通过该标准的征求意见稿技术审查，提出的修改意见如下：①与《环境空气 颗粒物来源解析 受体模型法监测数据处理与检验技术规范》同步发布，互相引用和借鉴；②与《环境空气 颗粒物来源解析 正交矩阵因子（PMF）模型计算技术指南》统一相关术语定义；③补充源谱本地化的说明；④对文本进行规范性修改和完善，统一术语定义，计算流程图补充解释说明。

## 2 标准制订的必要性分析

根据原环保部办公厅《关于开展第一阶段大气颗粒物来源解析研究工作的通知》，全国直辖市、省会城市（除拉萨外）、计划单列市需要开展环境空气颗粒物来源解析研究工作。自2014年起，各城市相继开展颗粒物源解析工作，2015~2016年陆续完成。根据《京津冀及周边地区2017年大气污染防治工作方案》，京津冀及周边地区“2+26”重点城市也需要开展环境空气颗粒物来源解析研究工作。然而，根据各城市颗粒物源解析工作的开展情况，源解析研究工作尚处于研究阶段，离在监测系统中业务化运行的要求还有一定的差距，关于颗粒物组分分析的监测技术方法已相对成熟，陆续出台了一系列标准方法，日臻完善，但是在受体模型计算和源解析结果分析等方面，目前仅在《环境空气颗粒物来源解析监测技术方法指南（试行）》有相对简略的介绍，缺少较为详细的标准化的操作方法和技术要求，因此有必要开展相关研究。

目前各城市、各区域的源解析工作，虽由监测系统承担，但仍主要依靠高校、科研机构等单位支持，监测站主要承担采样、分析等工作，数据分析、模型计算、综合源解析等相关内容掌握的很少，能够熟练进行模型操作的更是不多。亟需将数据整理、模型计算等内容规范化、标准化，增强可操作性、提升普适性，进而为源解析工作的业务化和标准化提供重要技术支持。

## 3 国内外 CMB 模型的发展与应用

### 3.1 CMB 模型发展

化学质量平衡（CMB）模型为源已知类受体模型，即需要输入源成分谱数据。利用源和受体的化学组分的平衡关系构建线性方程组，利用多元线性回归的计算方法得出污染源对受体的贡献值。

1972年 Miller, Friedlander 和 Hidy 等人第一次正式给出了化学元素平衡法方程式，并将其命名为化学元素平衡法（CEB）<sup>[1]</sup>。1980年 Cooper 和 Watson 将化学元素平衡法重新命名为化学质量平衡法（CMB）<sup>[2]</sup>。此后该模型的求解问题引起了很多学者的关注，并相继提出了示踪元素法、线性程序法、普通加权最小二乘法等多种算法<sup>[1,3,4]</sup>。到1984年，Watson 等人提出了有效方差加权最小二乘法用于化学质量平衡受体模型求解的方法<sup>[5]</sup>，该方法标志着 CMB 的求解方法基本走向成熟，并被美国 EPA 推荐纳入 EPA 的源解析技术系列。

随着 CMB 模型算法的发展和成熟，出现了专业的计算软件，1978年第一个 CMB 模型软

件诞生，由俄勒冈州研究生中心用 FORTRANIV 编写的，称为 CMB1.0<sup>[6]</sup>，随后又陆续对软件进行了 5 次升级，直到 CMB6.0。但是 CMB1.0 到 CMB6.0 软件受到计算机等方面的限制，仍存在着一定的局限性。CMB7.0 是用 C 语言和 FORTRAN 语言重新编写的软件，不但在算法上有了突破，采用加权有效方差最小二乘法，同时计算机的发展为软件运行提供了更大的空间，使得 CMB7.0 得到了广泛的应用，但是上述版本大多在 DOS 操作系统下的软件，不利于模型的推广应用。此后研发的 CMB8.0，是能在 Windows 操作系统下运行的软件，它虽然在算法上与 CMB7.0 一样，但它增强了软件运行的可视化，同时对文件和图形的输出功能进行了改进<sup>[7]</sup>。目前美国 EPA 的官方使用软件是 EPAPMF8.2。

2001 年，南开大学冯银厂团队使用 C 语言编写了 NKCMB 软件，是国内首个 CMB 模型软件，其算法仍然采用 CMB7.0 的有效方差最小二乘法，之后研发的 NKCMB 软件增加了利用穷举法进行 CMB 模型结果选择的功能<sup>[8]</sup>。2015 年，史国良、冯银厂等人利用 C# 语言编写了新的 NKCMB1.0 计算软件，该版本针对 win8 系统进行开发，具有较好的可视化、批处理计算及图形输出功能。

### 3.2 CMB 模型原理

化学质量平衡（CMB）模型是基于质量守恒定律建立的受体模型<sup>[1]</sup>。模型假设化学组分在排放源和环境受体（污染源样品和环境颗粒物样品）之间存在化学质量平衡，即污染物在从源到受体的传输过程中质量没有损失，那么受体上测量的化学组分浓度就是每一源类贡献该化学组分浓度值的线性加和。

$$C_i = \sum_{j=1}^J F_{ij} S_j$$

其中： $C_i$ 为受体中所测的第  $i$  个组分的浓度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）； $F_{ij}$ 是第  $j$  个排放源排放的物质中第  $i$  个组分占的比例（ $\text{g}/\text{g}$ ）； $S_j$ 是第  $j$  个排放源的贡献（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）； $i$  为化学物质的数目； $j$  为污染源类型的数目。当组分的数量等于或大于源的数量时，该方程组有解。 $C_i$ 和 $F_{ij}$ 值作为模型输入； $C_i$ 和 $F_{ij}$ 的测量误差也需要输入模型中，用于计算有效方差；源贡献  $S_j$ 及其标准偏差由模型计算得到；利用 CMB 模型诊断技术可以对解析结果进行评价。

### 3.3 CMB 模型的应用

#### 3.3.1 国内外文献调研

自 2013 年我国实施《大气污染防治行动计划》以来，多数大气污染物水平呈明显下降趋势，但颗粒物污染仍是我国最为突出的环境问题之一。2020 年中国生态环境状况公报显示，全国 337 个地级及以上城市中以  $\text{PM}_{2.5}$  为首要污染物的天数占重度及以上污染总天数的 77.7%，而京津冀及周边地区占总超标天数的 48.0%。目前已知，经呼吸系统进入人体后， $\text{PM}_{2.5}$  能够深入下呼吸道，经气血屏障进入血液循环系统，到达其它器官与组织，诱发炎症反应和氧化应激<sup>[9-10]</sup>，引起组织损伤，导致呼吸系统及心血管系统疾病，甚至骨关节疾病等远隔器官损伤<sup>[11-12]</sup>。

颗粒物来源解析的主要包括源清单法、源模型法和受体模型法，其中目前常用的是以现场采样-实验室分析-受体模型法为主，以现场调查-统计分析-源清单法、现场监测-模拟分析-源模型法、自动采样-连续动态源解析法为辅的主要技术手段。受体模型法以化学质量平衡模型（CMB）为主，正定矩阵因子分解模型（PMF）、复合受体模型（PCA/MLR-CMB）等辅助验证的受体模型，以污染源和环境受体（空气）的颗粒物为主要监测对象，以颗粒物浓度及其主要化学组分为主要监测因子，构建颗粒物源成分谱及受体颗粒物的主要化学组成，纳入受体模型进行模拟计算，得到各源类对环境空气中颗粒物的贡献值和分担率。

源解析受体模型的建立最初是城区尺度，在此尺度下 CMB 是一种可靠和常用的方法，得到我国生态环境部和美国 EPA 的推荐。我国也从 80 年代中期开始了 CMB 受体模型的应用研究，先后在秦皇岛、乌鲁木齐、济南、石家庄、香港、南京、天津等几十个地区已分别应用 CMB 模型对大气颗粒物进行了源解析<sup>[13-18]</sup>，北京、上海、青岛和杭州等地也应用 CMB 模型计算了各种排放源对大气 PM<sub>10</sub> 的贡献率，取得了较好的结果<sup>[19-22]</sup>。

上世纪 80 年代以后，一些研究者把受体模型的应用扩展到了区域尺度，旨在识别酸沉降和使能见度减低的源。研究者把硫酸盐的长距离传输、降解与受体模型结合起来，取得了较好的结果<sup>[23,24]</sup>。为了识别可在全球大气范围内循环的颗粒物的来源，研究者把 CMB 模型扩展到了全球受体模型<sup>[25,26]</sup>。一些研究小组的研究结果初步表明撒哈拉沙漠的尘能向西通过大西洋上空，亚洲尘暴中的颗粒物能向东通过太平洋上空。一些研究者研究了太平洋上空的硫酸盐的分布和来源；美国的部分研究者用 CMB 模型研究了夏威夷不同季节的颗粒物来源，并取得了初步结果<sup>[25]</sup>。

受体模型应用范围的另一方面进展在于研究对象的扩展。由于受限于采样分析技术，致使对有机物种解析缺乏完整性，仍有许多有机污染源排放特征无法确认，CMB 模式最早应用于金属污染物的拟合计算，这是由于金属污染物之成分不易改变，从污染源排放后经由大气传输至采样收集过程中，皆保持其组成固定，且污染物间不起化学变化，并且污染源皆具特定的追踪元素。

随着应用范围的不断推广，CMB 模型开始应用于 VOCs 来源解析。Fujita 等运用 CMB 模式解析休斯顿及波士顿两城市之六处监测站 VOCs 数据<sup>[27]</sup>，Conner、Lin 和 Milford 与 Lewis 等同时于 1990 年以 Canister 现场监测亚特兰大 VOCs 浓度，并运用 CMB 解析该区域主要污染源贡献<sup>[28-30]</sup>。Bodal 等人在法国开展 VOCs 的来源解析，应用 CMB 模型为基础获得较好结果<sup>[31]</sup>。朱坦等在大港石化区应用 CMB 模型解析了非甲烷总烃的来源<sup>[32]</sup>。多环芳烃（PAHs）由于其毒性早已引起人们的广泛关注，对多环芳烃的研究结果表明，多环芳烃类化合物是一些污染源很好的标识物。例如，有人认为晕苯和苯并（ghi）芘是汽车源的标识物，（苯并(b)荧蒽+苯并(k)荧蒽）/苯并（ghi）芘的值可以区别民用煤和车辆源<sup>[33]</sup>。PAHs 属于半挥发性有机化合物，不论是气相或颗粒相 PAHs 在大气传输过程容易发生化学反应<sup>[34,35]</sup>。这与 CMB 模式的使用限制中之污染物成分不易改变，和污染物间不起化学变化之原则有违背，最初限制了在 CMB 模型中的应用。Miguel 和 Pereria 以及 Pistikopoulos 等、Li 和 Kamens 等提出降解因子(Decay factor)校正

的方法，成功应用 CMB 模型解析 PAHs 的来源<sup>[36-38]</sup>。朱先磊结合颗粒物源解析的结果校正 PAHs 降解的方法也得到较好结果<sup>[39]</sup>。有机物源解析已经成为 CMB 模型研究和应用的重要方面。

### 3.3.2 国内源解析工作应用情况

2018年，中国环境监测总站在全国环境监测系统开展了大气颗粒物源解析工作现状调查，调查的具体对象为地级及以上级别环境监测站，共发放调查 366 份，收到反馈 326 份。其中，28 个省（区、兵团）站、4 个直辖市站和 5 个计划单列市站反馈调查材料的比例均为 100%；27 个省会城市站中，26 个反馈了调查材料；302 个一般地级市（不含省会城市和计划单列市）站中，263 个反馈了调查材料。结果显示我国环境监测系统几乎都不具备源解析模型计算（PMF 或 CMB 模型）的技术能力。

#### （1）总体情况

反馈材料的 326 个监测站中，13 个监测站具备一种或一种以上颗粒物源解析模型计算能力，占 4%。整体来看，全国各监测站具备模型计算的能力比例极低，大部分监测站通过委托科研机构或高等院校的方式进行模型计算和结果评价。其中，直辖市站具备相关能力的比例相对较高，为 50%；一般地级市站不具备相关模型计算能力，见表 3-1。

表 3-1 各级监测站模型计算能力

| 监测站      | 反馈材料数量 | 具备源样品采集能力 |     |
|----------|--------|-----------|-----|
|          |        | 数量        | 占比  |
| 直辖市站     | 4      | 2         | 50% |
| 省（区、兵团）站 | 28     | 7         | 25% |
| 省会城市站    | 26     | 2         | 8%  |
| 计划单列市站   | 5      | 1         | 20% |
| 一般地级市站   | 263    | 0         | 0%  |
| 总计       | 326    | 13        | 4%  |

#### （2）重点区域

重点区域中，京津冀及周边地区监测站具备一种或一种以上模型计算能力的比例相对较高，为 11%；珠三角地区和汾渭平原监测站不具备模型计算能力，见表 3-2。

表 3-2 重点区域监测站模型计算能力情况

| 区域       | 反馈材料数量 | 具备模型计算能力 |     |
|----------|--------|----------|-----|
|          |        | 数量       | 占比  |
| 京津冀及周边地区 | 28     | 3        | 11% |
| 长三角地区    | 40     | 2        | 5%  |
| 汾渭平原     | 11     | 0        | 0%  |
| 珠三角地区*   | 9      | 0        | 0%  |
| 总计       | 88     | 5        | 6%  |

注\*：珠三角地区大气颗粒物源解析工作由广东省站统一组织。

### 3.3.3 改进的 CMB 模型

#### (1) PCA/MLR-CMB

PCA/MLR-CMB 复合受体模型的全称是主成分分析/多元线性回归—化学质量平衡复合受体模型。为了提高源—受体体系匹配性，建立了 PCA/MLR-CMB 复合受体模型，通过净化受体信息，降低受体中未知源含量，消减共线性问题的干扰。PCA/MLR-CMB 复合受体模型分成三个步骤：第一步，PCA/MLR-CMB 步骤——降低初级受体中的未知源，即将原始受体成分谱矩阵视为初级受体，先用 PCA / MLR 模型进行解析。共线性较强的源类，会作为一个因子被提取出来。这个因子就定义为混合源，它包含了这几个共线源类贡献值的总和。同时，这个混合源的成分谱也会被计算得到。在此过程中，由于各因子之间是正交的，其它源类、未知源会被排除在这个混合源以外。因此在混合源中干扰因素会大幅降低。第二步，CMB 步骤——对二级受体进行解析。将第一步计算得到的混合源视为一个新的受体，即二级受体。通过因子的特征元素识别以及污染源排放清单调查，分析这个混合源中可能包含了哪几种污染源类。然后采集、分析这些污染源类的成分谱。再将这些污染源类和二级受体的成分谱纳入 CMB 模型进行解析。在这一过程中，由于纳入 CMB 模型的源种类和数目大幅减少，二级受体中噪声(未知源)的含量也大幅度降低，因此在第二步过程中，源和受体。第三步，得到 PCA/MLR-CMB 复合模型的最终结果。将第一步计算得到的非共线性源类的贡献值，连同第二步计算得到的共线性源类的贡献值一起，构成了匹配性大幅度提高的复合受体模型最终结果。该模型已用于成都市受体样品的解析。

#### (2) NCPCRCMB

如果把主成分回归法纳入 CMB 模型，那么自变量  $X$  就对应于源成分谱矩阵，因变量  $Y$  就对应于受体成分谱向量，而回归系数  $B$  就是需要计算得到的源共线性。对于将要构建的 NCPCRCMB 模型而言，进行主成分回归计算的不应是原始受体向量  $C$  和源成分谱矩阵  $F$ ；而应是加权受体向量  $C_w$  和加权源成分谱矩阵  $F_w$ 。把有效方差纳入主成分回归迭代过程当中。NCPCRCMB 模型中，需要对加权源成分谱  $F_w$  进行主成分分解。然而，分解得到的因子得分和载荷矩阵中，往往有负值的存在，没有物理意义。因此，需要对解析得到的得分和载荷矩阵进行非负限制计算，使得得到的矩阵中不存在负值，或负值之和低于某一数值。NCPCRCMB 模型已用于无锡市受体样品的解析。

#### (3) CMBGC-Iteration

CMBGC-Iteration 使用气体与 PM 的比值作为约束，并考虑了源剖面和受体数据集的不确定性，这是源分配的关键信息。CMB-GC 考虑了气体污染物，增加了对来源的区分。 $SO_2/PM_{2.5}$ 、 $CO/PM_{2.5}$  和  $NO_x/PM_{2.5}$  作为约束条件，这有助于识别可能具有相似  $PM_{2.5}$  排放但可能有显著不同气体排放的排放源。通过结合气体污染物的约束条件，得到了更准确的结果。受体数据的不确定性受到许多因素的影响，包括环境采样、仪器检测、样本分析和数据处理。此外，源谱的不确定性也是由源类别错误造成的。不确定性是环境样本的一个非常重要的参数，在加入不确定性后，模型结果更加稳定。CMBGC-Iteration 已用于天津市受体样品的解析。



## 4 标准制订的基本原则和技术路线

### 4.1 标准制订的基本原则

本着科学性、先进性和可操作性的原则，总结我国大气颗粒物源解析工作中受体模型操作和计算的实践，结合已有的研究成果，不断开展在实际工作中的适用性研究，制定本技术指南。

本技术指南的资料性概述要素、规范性一般要素、规范性技术要素等技术内容的编排、陈述形式、引导语等遵循《环境保护标准编制出版技术指南》中的有关规定。

### 4.2 标准制订的技术路线

通过对国内外 CMB 模型的发展与应用相关的资料调研，结合目前我国大气颗粒物源解析工作中 CMB 模型的实际应用情况，编写 CMB 模型的适用范围、模型原理、模型假设、数据准备、模型运算、模型诊断指标、穷举法、结果报告和注意事项等内容，重点解决一些操作和诊断上的技术疑点和难点问题，并用一套相同的源解析工作的实际数据，组织 3 家不同实验室应用本技术指南来进行模型的运算和结果的验证，进一步完善技术指南的文本和编制说明，经过专家研讨修改，最终形成文本和编制说明的征求意见稿。

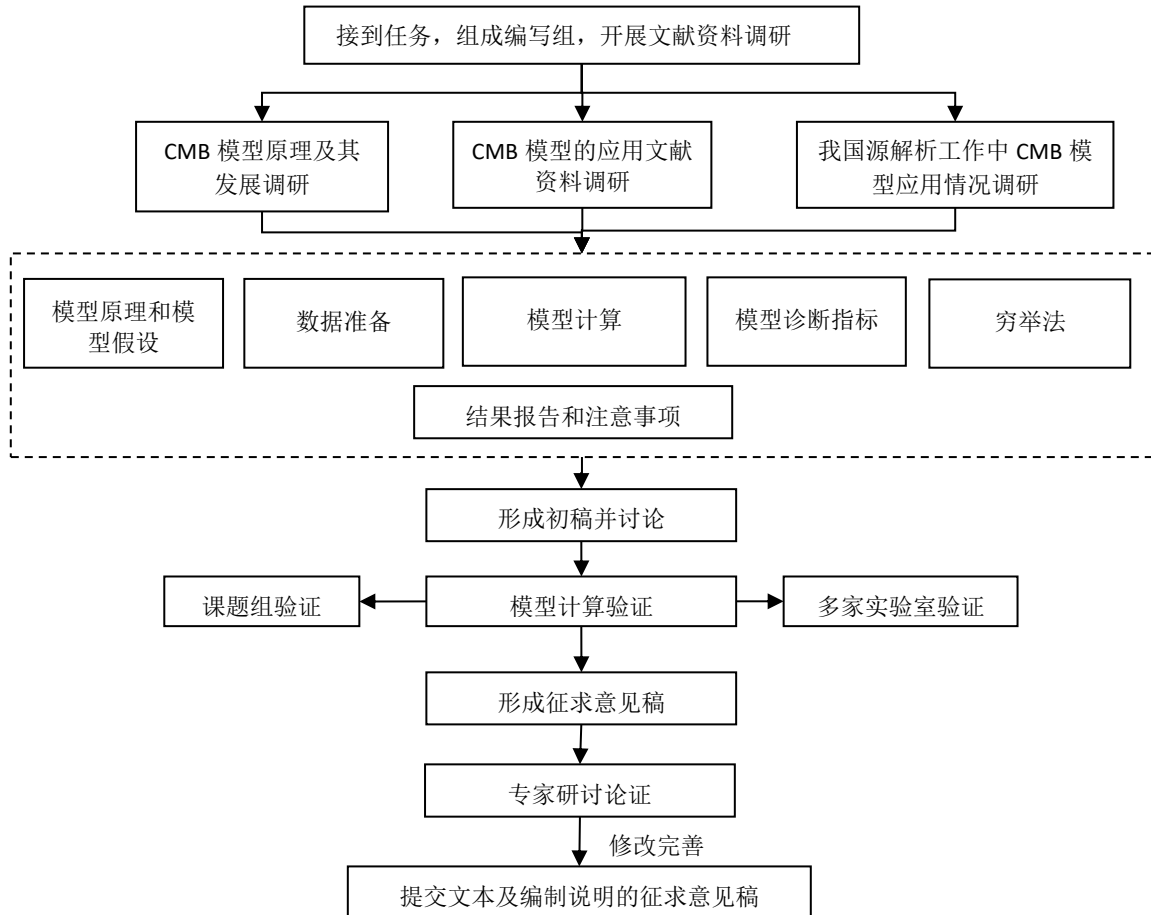


图 4-1 本标准制订技术路线图

## 5 研究报告

当前国内 CMB 相关标准规范主要为美国 EPA 目前最新版本的 EPACMB8.2 指导手册和南开大学发布的 NKCMB1.0 使用手册。推荐使用内容汉化后的 NKCMB1.0 版本。

### 5.1 适用范围

本标准对环境空气颗粒物来源解析采用化学质量平衡模型计算的模型原理、数据准备、模型计算和诊断等方面做了相应的规定。

本标准适用于环境空气颗粒物来源解析工作中，针对滤膜采样和分析得到的颗粒物质量浓度及化学组分的数据，应用化学质量平衡模型对颗粒物来源进行计算。

### 5.2 规范性引用文件

本标准内容引用了下列文件或其中的条款，凡是注明日期的引用文件，仅注日期的版本适用于本标准，凡是未注明日期的引用文件，其最新版本（包括所有的修改单）适用于本标准。

HJ ××× 环境空气 颗粒物来源解析 基于受体模型法的源解析技术规范

HJ ××× 环境空气 颗粒物来源解析 受体模型法监测数据检验技术规范

《环境空气颗粒物来源解析监测技术方法指南》（环办函[2020]8 号）

《大气颗粒物来源解析技术指南（试行）》（环发[2013]92 号）

其中后两个标准目前正在制修订中，与本标准进度相似，计划待确定标准文号之后互相引用相关内容。

### 5.3 术语和定义

#### 5.3.1 环境受体

受到污染源排放影响的环境空气，简称受体。

#### 5.3.2 化学质量平衡模型

化学质量平衡（CMB）模型是一种“源已知”类受体模型，即模型需要输入源成分谱的数据。通过在源和受体之间建立质量平衡关系来构建线性方程组，利用有效方差最小二乘的迭代计算方法得出各污染源对受体的贡献值。

#### 5.3.3 受体化学组成

环境空气颗粒物样品化学组分的浓度或占比信息。受体化学组成是 CMB 受体模型必须输入的部分，主要包括各化学组分的平均值（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$  或 %）、标准偏差（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$  或 %）等信息。

#### 5.3.4 颗粒物源成分谱

污染源排放颗粒物的化学组分浓度或占比信息，简称源成分谱。源成分谱可通过实地监测、文献调研等方式得到。源成分谱的主要信息包括化学组分的占比（g/g 或  $\mu\text{g}/\mu\text{g}$ ），即单位源样品中所含不同化学组分的质量（g 或  $\mu\text{g}$ ）。源成分谱数据是 CMB 模型必须输入的部分，主要包

括各化学组分的平均值 (g/g 或  $\mu\text{g}/\mu\text{g}$ )、标准偏差 (g/g 或  $\mu\text{g}/\mu\text{g}$ ) 等信息。

源成分谱表征了大气污染源排放颗粒物的理化特性, 通过构建大气颗粒物主要污染源成分谱库, 可以定性识别污染来源, 定量解析污染源贡献。基于颗粒物产生原理和产生过程, 将一级源类分为固定燃烧源、工艺过程源、移动源、扬尘源和其他源。其中, 其他源包括生物质燃烧、餐饮源、海洋粒子等。标准文本中通过附录的形式给出了 5 个一级源代表性源成分谱供参考。图片来源于《大气重污染成因与治理攻关项目研究报告》(国家大气污染防治攻关联合中心主编, 北京: 科学出版社, 2021 年 6 月, 70-74 页. ISBN: 978-7-03-069119-4)。

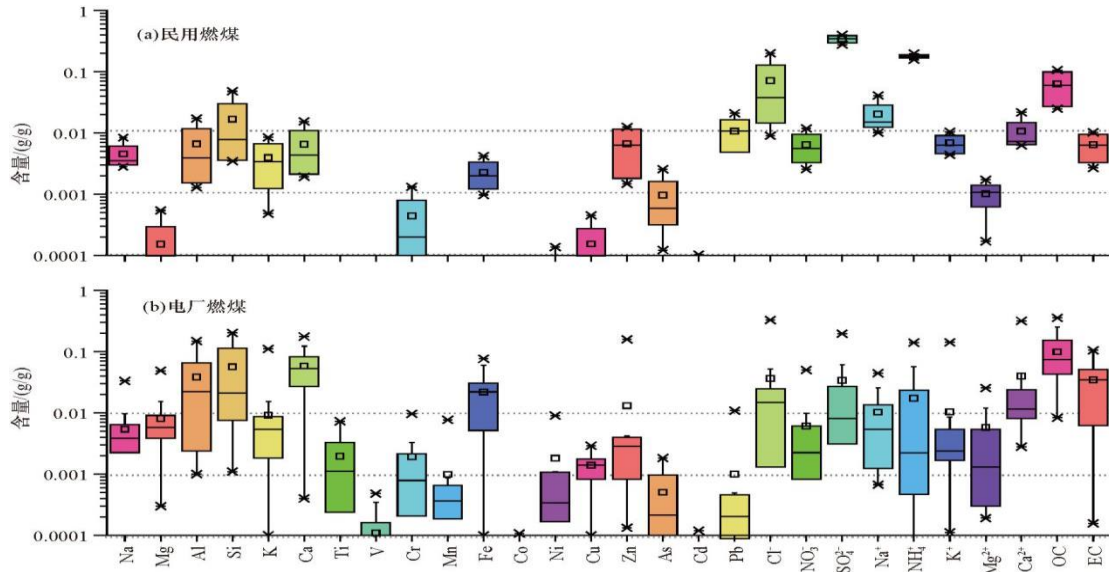


图 5.1 民用燃煤和电厂燃煤排放的 PM<sub>2.5</sub> 成分谱

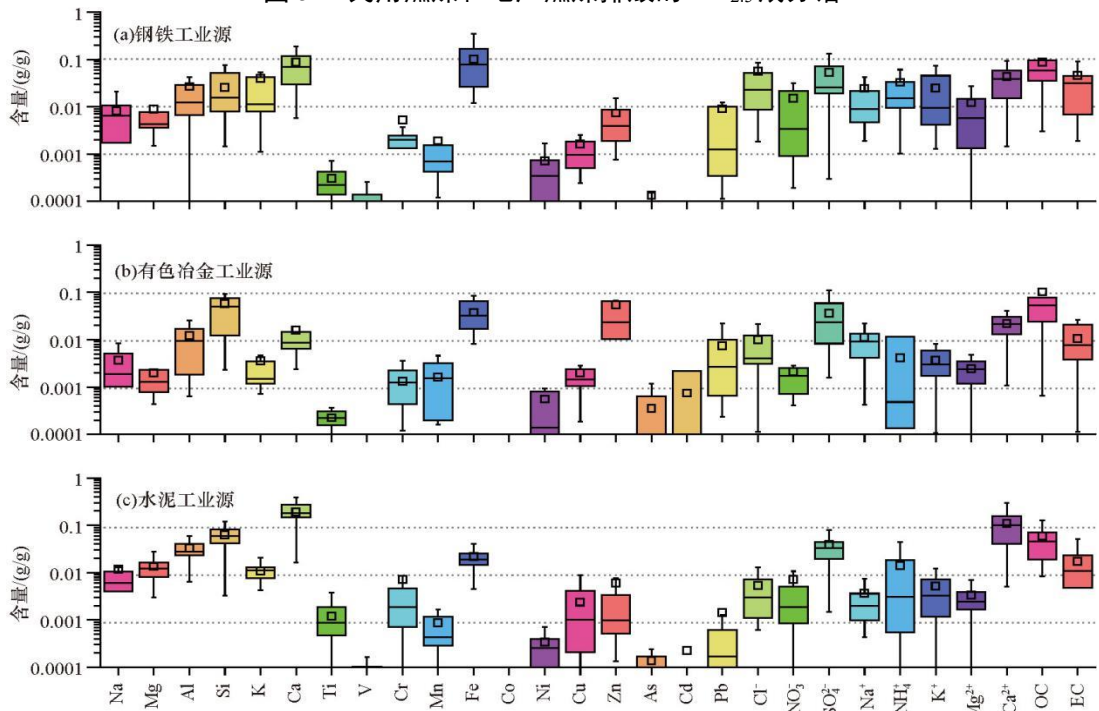


图 5.2 工艺过程源 (钢铁、有色冶金、水泥) 排放的 PM<sub>2.5</sub> 成分谱

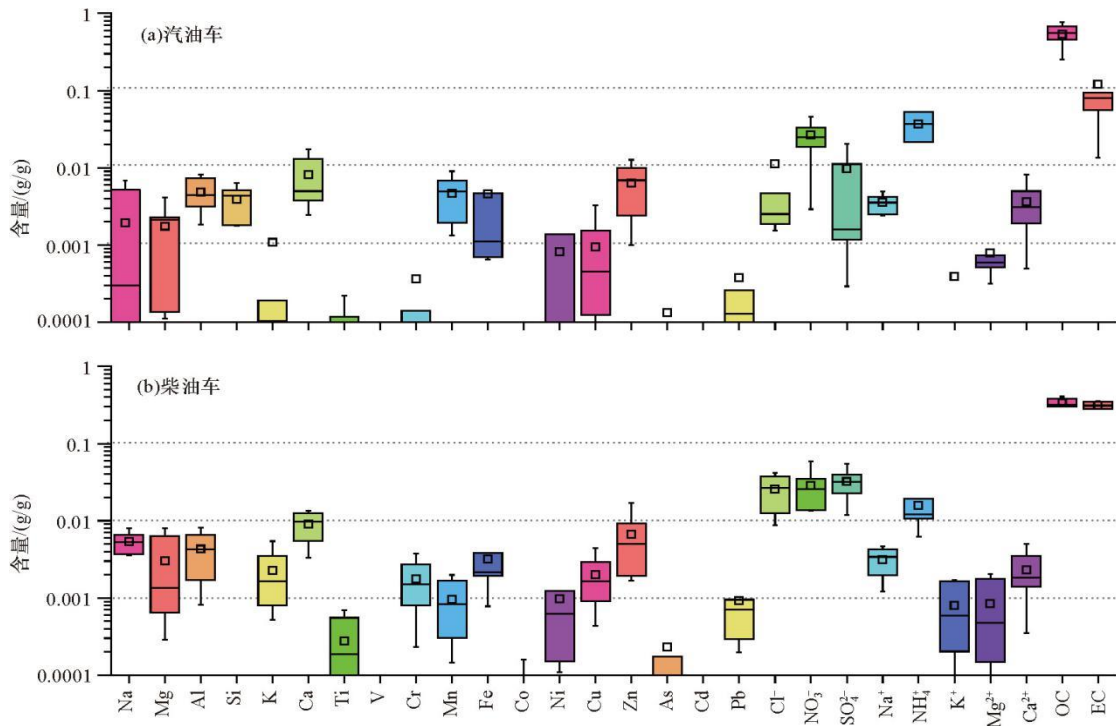


图 5.3 汽油车和柴油车排放的 PM<sub>2.5</sub> 成分谱

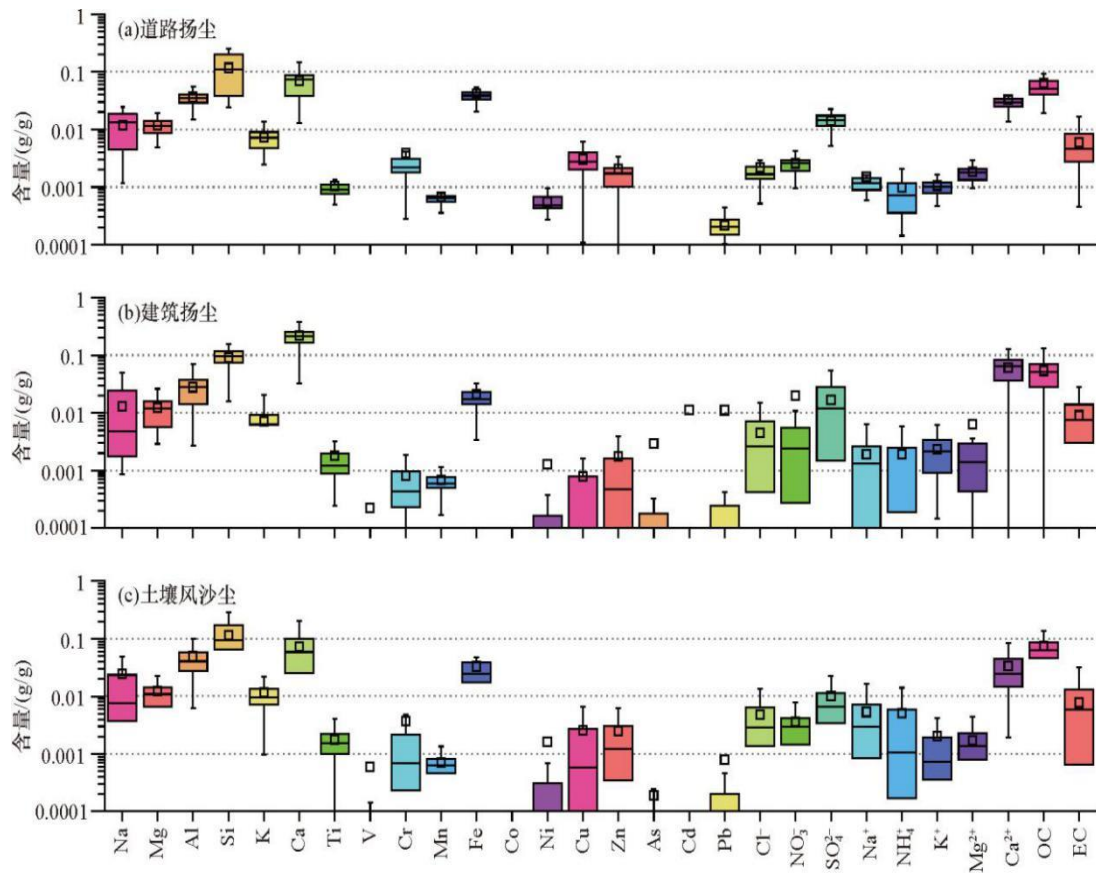


图 5.4 道路扬尘、建筑扬尘和土壤沙尘 PM<sub>2.5</sub> 成分谱

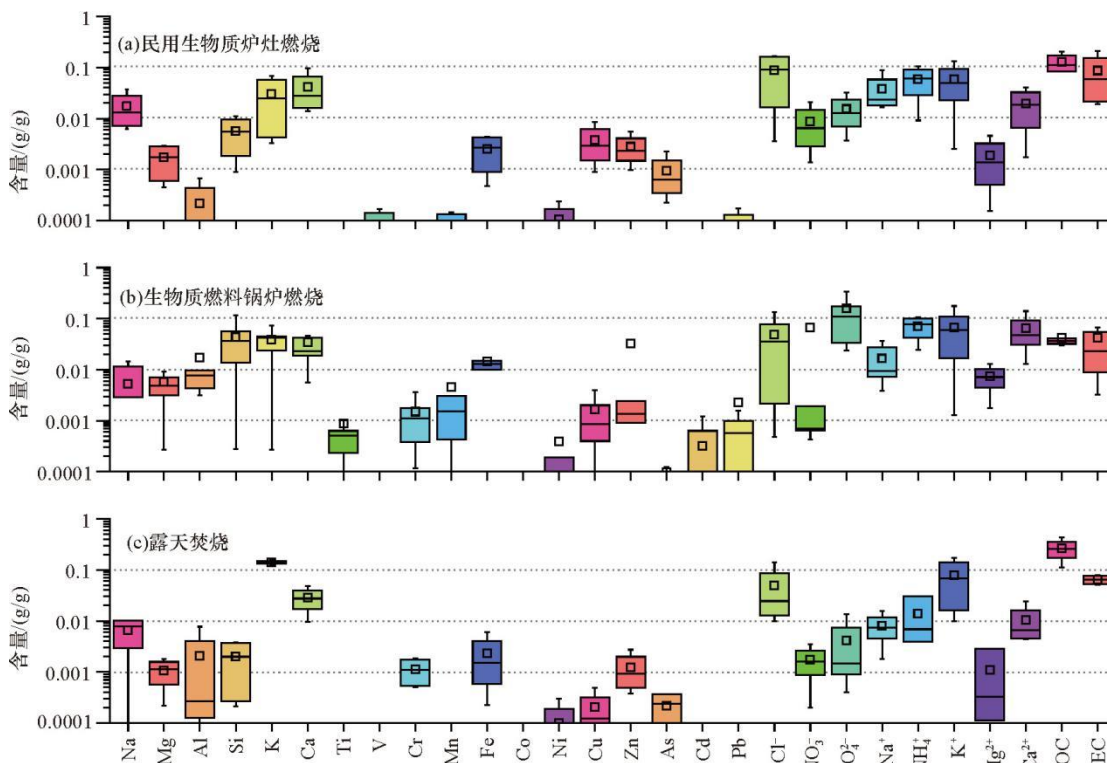


图 5.5 民用生物质炉灶燃烧、生物质燃料锅炉燃烧和露天焚烧 PM<sub>2.5</sub> 成分谱

### 5.3.5 源贡献

通过受体模型计算得到的污染源对环境空气中颗粒物的贡献，可用贡献浓度 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) 或贡献分担率 (%) 两种形式。

### 5.3.6 源标识组分

污染源化学成分谱中对该源类有指示作用的一种或多种颗粒物化学成分，又称示踪组分。源标识组分是区别该源类与其他源类的重要标识物，每种污染源有各自的标识组分。标识组分在该源成分谱中的含量，通常比在其他源类中高。

### 5.3.7 不确定度

源解析工作中采样、实验分析等环节引起的误差。

## 5.4 软件和设备

软件：推荐使用 NKCMB、EPACMB 模型或其他化学质量平衡模型。

硬件：Win 7 以上计算机系统，1 GHz 以上处理器，1 GB 以上 RAM，需安装 framework 4.0 以上版本。

## 5.5 模型原理和假设

化学质量平衡 (CMB) 模型是基于质量守恒定律建立的受体模型。模型假设化学组分在

排放源和环境受体（污染源样品和环境颗粒物样品）之间存在化学质量平衡，即污染物在从源到受体的传输过程中质量没有损失，那么受体上测量的化学组分浓度就是每一源类贡献的该化学组分浓度值的线性加和。

$$C_i = \sum_{j=1}^J F_{ij} S_j$$

其中： $C_i$ 为受体中所测的第*i*个组分的浓度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）； $F_{ij}$ 是第*j*个排放源排放的物质中第*i*个组分占的比例（ $\text{g}/\text{g}$ ）； $S_j$ 是第*j*个排放源的贡献（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）；*i*为化学物质的数目；*j*为污染源类型的数目。当组分的数量等于或大于源的数量时，该方程组有解。 $C_i$ 和 $F_{ij}$ 值作为模型输入； $C_i$ 和 $F_{ij}$ 的测量误差也需要输入模型中，用于计算有效方差，在模型迭代过程中对浓度数据进行加权；源贡献 $S_j$ 及其标准偏差由模型计算得到；此外，模型诊断技术可以对解析结果进行评估。

假设污染物在从源到受体的传输过程中质量没有损失，需要满足以下几个假设条件：

- (1) 各污染源排放的颗粒物化学组成有明显差别；
- (2) 各污染源所排放的颗粒物化学组成相对稳定；
- (3) 各污染源所排放的颗粒物之间没有相互作用，在传输过程中的变化可以被忽略；
- (4) 测量结果的不确定度是独立且随机的、符合正态分布；
- (5) 污染源的不确定性之间相互独立，没有相关关系；
- (6) 模型计算包含了所有对受体具有明显贡献的源类；

## 5.6 数据准备

### 5.6.1 数据构建

CMB 模型需要输入源成分谱数据和受体化学组成的数据，受体组分的数量要等于或大于源的数量。源和受体的化学组分主要包括无机元素、碳组分、水溶性离子等，这些组分涵盖了主要污染源的标识组分。其中：

- (1) 无机元素测定铝（Al）、硅（Si）、钙（Ca）、钾（K）、钠（Na）、镁（Mg）、铁（Fe）、锰（Mn）、砷（As）等，选测钴（Co）、钼（Mo）、银（Ag）、钪（Sc）、铊（Tl）、钯（Pd）、溴（Br）、碲（Te）、镓（Ga）、铯（Cs）、硒（Se）、汞（Hg）、铬（Cr）、铅（Pb）、镉（Cd）、锌（Zn）、铜（Cu）、镍（Ni）、钛（Ti）、锑（Sb）、锡（Sn）、钒（V）、钡（Ba）等；
- (2) 碳组分测定有机碳（OC）和元素碳（EC）；
- (3) 水溶性离子测定硫酸根（ $\text{SO}_4^{2-}$ ）、硝酸根（ $\text{NO}_3^-$ ）、铵根（ $\text{NH}_4^+$ ）、氯离子（ $\text{Cl}^-$ ）等，选测钾离子（ $\text{K}^+$ ）、钙离子（ $\text{Ca}^{2+}$ ）、钠离子（ $\text{Na}^+$ ）、镁离子（ $\text{Mg}^{2+}$ ）、氟离子（ $\text{F}^-$ ）等。

如果无机元素未测 Ca、Mg，则水溶性离子必测  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ ；如果当地有某种组分的排放源，则该组分为必测组分。

颗粒物受体样品通常由石英滤膜和有机滤膜（如特氟龙、聚丙烯等）平行采集得到，石英滤膜常用于分析有机组分，有机滤膜常用于分析无机组分。需要先计算各组分的质量百分占比

(%)，再进而合并。主要采用以下两种方法：

方法一：将化学组分含量代入模型。每个样品不同滤膜上化学组分的质量浓度，按照不同滤膜称量的颗粒物浓度进行加权计算，受体化学组分分别转化为质量百分占比（%），转化方式为：

$$\text{有机滤膜的化学组分含量} = \frac{\text{有机滤膜上化学组分的浓度}}{\text{有机滤膜的颗粒物质量浓度}} \times 100\% ;$$

$$\text{石英滤膜的化学组分含量} = \frac{\text{石英滤膜上化学组分的浓度}}{\text{石英滤膜的颗粒物质量浓度}} \times 100\% 。$$

注：受体浓度数据组分百分含量加和需小于 100%。

再将有机和石英滤膜的组分合并，构建一套数据。

方法二：将折算后的质量浓度数据（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）代入模型。在（1）的基础上，每个滤膜的化学组分含量乘以最终颗粒物质量浓度（有机和石英滤膜的平均值）得到的结果。

注：在构建受体化学组分数据时，不能直接将两张滤膜分析得到的化学组分浓度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）简单合并成一套受体化学组分数据，直接代入模型计算。

源谱的化学组分含量参考（1）的转化方式（不乘以 100%），单位为 g/g 或  $\mu\text{g}/\mu\text{g}$ 。源谱化学组分含量加和需小于 1。数据在输入模型前需要进行初步检验。对于每个颗粒物样品的质量浓度和化学组分浓度数据，需要经过颗粒物化学组分质量平衡、阴阳离子电荷平衡等方法进行检验。颗粒物化学组分质量平衡检验要求每个颗粒物样品的化学组分质量加和与颗粒物质量浓度的比值一般在 0.5~0.8 之间，颗粒物阴阳离子电荷平衡检验要求每个颗粒物样品的阴离子总电荷与阳离子总电荷的比值一般在 0.8~1.2 之间。

## 5.6.2 输入文件格式

不同版本的模型输入和操作有所差异，具体信息可以参考编制说明。本规范以 NKCMB1.0 版本为例。输入文件是 excel 格式的数据文件：包含了源成分谱和受体化学组成的均值数据、标准偏差数据。数据模板文件包含了两个工作表，即“源”和“受体”工作表。在标准文本的附录 A 中给出了两个工作表的模板。

“源”工作表包含了所有源成分谱数据信息，其中序号、名称、粒径以及日期等信息不参与计算，为源成分谱的注释信息；还包括各源类化学组分的数据，即源谱数据，包含均值和标准偏差两个部分。工作表中上半部分为各组分含量的均值（g/g 或  $\mu\text{g}/\mu\text{g}$ ），下半部分为各组分含量的偏差（g/g 或  $\mu\text{g}/\mu\text{g}$ ）。由于不同组分是采用不同材质的滤膜进行分析的，因此进行组分的含量与百分占比转换时需要一一对应，即各组分需要按照相应滤膜的质量浓度进行含量与百分占比的转换。

“受体”与“源”工作表相似，其中序号、名称、粒径、日期、采样时长、采样开始时间等注释信息不参与计算，“TOT”（Total mass）代表了颗粒物的质量浓度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$  或  $\text{ng}/\text{m}^3$ ）或占比

(100%)，受体的化学组分数据包含各组分含量的均值和偏差（单位与质量浓度单位保持一致）。化学组分数据的个数可以依据实际情况进行调整，但是源和受体、各组分均值与偏差需要一一对应，工作表的格式不可改动。化学组分浓度和偏差之间空一行。

| 序号 | 名称   | 粒径   | 日期 | Na   | Mg   | Al   | Si   | K    | Ca   | Ti   | Mn   | Fe   | Cu   |
|----|------|------|----|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| 1  | 燃煤   | fine |    | 0.01 | 0.00 | 0.12 | 0.09 | 0.00 | 0.05 | 0.00 | 0.00 | 0.02 | 0.00 |
| 2  | 扬尘   | fine |    | 0.00 | 0.01 | 0.06 | 0.14 | 0.00 | 0.08 | 0.00 | 0.00 | 0.02 | 0.00 |
| 3  | 机动车  | fine |    | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.01 | 0.00 | 0.01 | 0.00 | 0.00 | 0.01 | 0.00 |
| 4  | 二次硫酸 | fine |    | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 |
| 5  | 二次硝酸 | fine |    | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 |

| 序号 | 名称   | 粒径   | 日期 | Na   | Mg   | Al   | Si   | K    | Ca   | Ti   | Mn   | Fe   | Cu   |
|----|------|------|----|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| 1  | 燃煤   | fine |    | 0.02 | 0.00 | 0.01 | 0.01 | 0.00 | 0.02 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 |
| 2  | 扬尘   | fine |    | 0.00 | 0.00 | 0.03 | 0.02 | 0.00 | 0.03 | 0.00 | 0.00 | 0.01 | 0.00 |
| 3  | 机动车  | fine |    | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.01 | 0.00 | 0.00 | 0.01 | 0.00 |
| 4  | 二次硫酸 | fine |    | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 |
| 5  | 二次硝酸 | fine |    | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 |

| 序号 | 名称 | 粒径   | 日期         | 采样时长  | 采样开始时间 | TOT | Na       | Mg       | Al       | Si       | K        | Ca       | Ti       | Mn       | Fe       | Cu     |
|----|----|------|------------|-------|--------|-----|----------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|--------|
| 1  | 案例 | fine | 2018-10-15 | 23.00 | 10.00  | 100 | 0.646275 | 0.088332 | 0.402976 | 8.665592 | 0.961976 | 0.677906 | 0.015142 | 0.061825 | 0.712609 | 0.0159 |
| 1  | 案例 | fine | 2018-10-15 | 23.00 | 10.00  | 10  | 1.33775  | 0.131742 | 0.55127  | 10.78858 | 1.104427 | 0.558045 | 0.02552  | 0.059451 | 0.668627 | 0.0237 |

图 5.6 NKCMB1.0 输入文件工作表  
(上图为“源”，下图为“受体”)

## 5.7 模型运算

### 5.7.1 数据输入和展示

选择软件界面的“打开”窗口，选择输入文件（源谱、受体数据）。模型导入“源”和“受体”工作表中的数据（如图 5.7 所示）。软件默认第一个工作表为“源谱数据”；第二个工作表为“受体数据”。也可以手动在软件中进行设置，选择某个工作表为源或受体的数据。在“原始数据”窗口界面，显示读取的源和受体数据（如图 5.8 所示）。

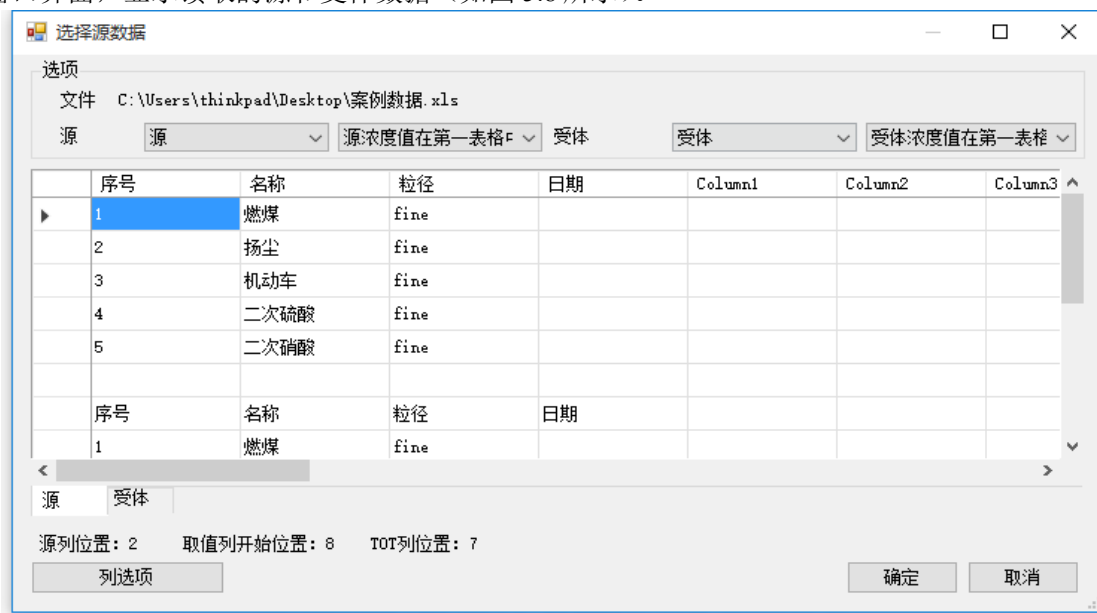


图 5.7 NKCMB1.0 输入文件导入





图 5.8 NKCMB1.0 原始数据功能界面

### 5.7.2 参数选择

模型运算之前，需要选择参与拟合的参数（如图 5.9 所示），主要包括以下三类：

- (1) “选择源”，选择参与计算的源类；
- (2) “选择组分”，选择参与计算的组分；
- (3) “选择受体”，选择参与计算的受体。

参与计算源类的选择，需要参考当地实际情况，以排放源清单和污染源调查情况为基础，一般包括机动车源，燃煤源，扬尘源等一次源，二次硫酸盐、二次硝酸盐等二次源；对于特定的城市 and 事情，还需要考虑工业源（如钢铁）和生物质燃烧（如秸秆燃烧）等。

参与计算组分的选择，原则上勾选典型源类的标识性组分，标识组分在该源成分谱的含量较其他源类高，不同源类的标识组分可能有重合，主要污染源的标识组分可参考表 5-1。一些源类有相似的标识组分，但是它们在各自源谱中的占比不尽相同；具有相似标识组分的源类，在计算过程中，可能会产生共线性问题，使结果不确定性增大，甚至出现负值。此外，可根据研究区域实际情况，增加其他特色污染源，如临海临港区域增加船舶排放源。

参与计算受体的选择，勾选需要参与计算的所有受体数据。一些源类有相似的标识组分，但是它们在各自源谱中的占比不尽相同；具有相似标识组分的源类，在计算过程中，可能会产生共线性问题，使结果不确定性增大，甚至出现负值。



图 5.9 NKCMB1.0 模型参数选择及运行界面

表 5-1 颗粒物主要污染源的标识组分

| 编号 | 源类别    | 标识组分  |
|----|--------|---|
| 1  | 燃煤源    | OC、EC、Al、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、Cl <sup>-</sup> 、Ca（或 Ca <sup>2+</sup> ）、As、藿烷、甾烷、烷基芘、多环芳烃等 |
| 2  | 机动车源   | OC、EC、Zn、藿烷、甾烷、晕苯、荧蒹、芘等   |
| 3  | 扬尘源    | Si、Al、Ca（或 Ca <sup>2+</sup> ）等  |
| 4  | 二次硫酸盐  | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>   |
| 5  | 二次硝酸盐  | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>  |
| 6  | 生物质燃烧源 | K（或 K <sup>+</sup> ）、OC、EC、左旋葡聚糖、植物甾醇、萜类物质等   |
| 7  | 工业源    | Fe、Cu、Cr、Mn、Pb、Zn、Al、Sb、V 等（视各地具体工业情况而定）  |
| 8  | 餐饮源    | OC、胆固醇、十六烷酸、十八烷酸、豆甾醇、β-谷甾醇、壬醛、9-十六烯酸等   |
| 9  | 海盐源    | Na（或 Na <sup>+</sup> ）、K（或 K <sup>+</sup> ）、Cl <sup>-</sup> 等                                       |
| 10 | 烟花燃放源  | Sr、K（或 K <sup>+</sup> ）、OC 等  |

### 5.7.3 结果展示

如图 5.10 所示，模型运算结果具体信息包含以下部分：

- (1) 源贡献计算结果，包括源贡献均值和标准偏差、T 统计结果；
- (2) 源解析结果诊断指标，包括  $df$ 、 $PM$ 、 $\chi^2$ 、 $R^2$ ；
- (3) 灵敏度矩阵，反映在计算过程中对各源类起重要作用的化学组分；

(4) 组分拟合矩阵，显示受体中各化学组分拟合和计算的结果信息，包括受体中各化学组分的监测浓度和标准偏差、模型计算出来相应组分的浓度和标准偏差以及计算值和测量值的比率。

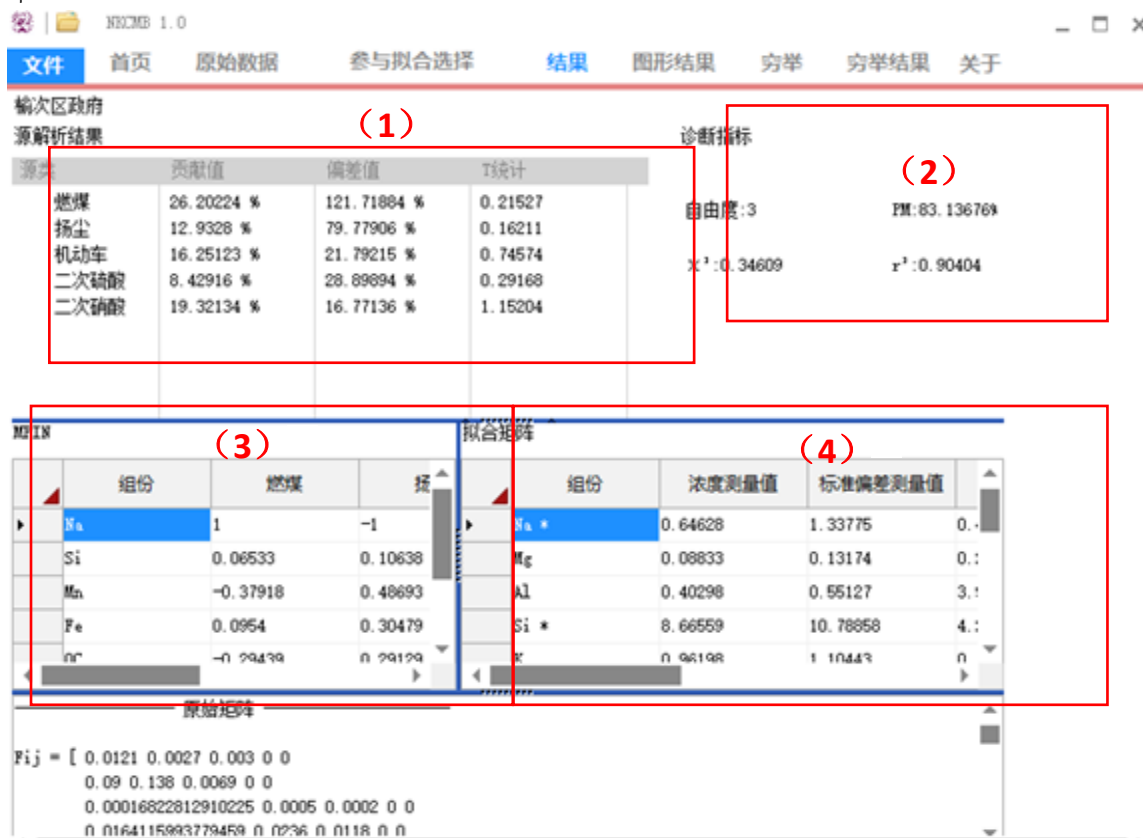


图 5.10 NKCMB 1.0 模型结果展示界面

(1) 源贡献计算结果；(2) 诊断指标；(3) 灵敏度矩阵；(4) 拟合矩阵

除以上四部分内容，结果窗口还会对迭代过程、批量计算的结果进行展示，并提供源解析结果饼状图。

### 5.7.4 结果选择

#### 5.7.4.1 模型内诊断指标

在利用 CMB 模型进行结果计算时，由于参与计算的源类不是对受体有贡献的所有源类，而在采样、分析过程中又具有不确定性，导致源和受体之间不一定有很好的匹配性；再加上源

的相似性（共线性）问题，在选择不同计算组分运算的时候，会计算得到不同的源贡献值。这是导致 CMB 模型“一套数据多重结果”的根本原因。针对这个问题，操作人员需要根据“模型内”诊断指标和“模型外”经验诊断，对结果进行选择。

“模型内”诊断指标是模型的数学诊断指标，主要包括 T-统计、拟合优度 ( $R^2$ )、残差平方和 ( $\chi^2$ )，以及灵敏度矩阵 (MPIN)、计算组分/测量浓度比 (C/M) 等。通常一个结果所对应的诊断指标需要满足各指标的要求，具体在“诊断指标”章节介绍。“模型内”诊断指标仅代表模型计算的数学诊断，如果解析结果满足了“模型内”诊断指标，仅表明该结果在数学意义上是可接受的，并不意味着该结果就是最优解析结果。此时，模型计算结果需要进一步结合“模型外”经验诊断。

“穷举法”是 NKCMB 模型所具有的功能，它为了解决 CMB 模型“一套数据多重结果”的问题，帮助用户选择合适的源解析结果。穷举法功能是依据诊断指标设置一定限制条件，利用模型内评估来优化计算结果。在标准中“7.5 穷举法”有专门的详细介绍。

#### 5.7.4.2 模型外经验诊断

“模型外”经验诊断包括监测区域的污染特征、气象条件、当地工业特征、机动车保有量、建筑施工情况、燃煤量情况等等。“模型外”经验诊断更多参考了大量源解析研究工作的经验，它从“物理意义”上帮助操作人员选择合适的源解析结果。“模型外”经验诊断主要有以下几种。

##### 5.7.4.2.1 比值法

(1) 在线  $PM_{2.5}/PM_{10}$  的比值。如果  $PM_{2.5}/PM_{10}$  的比值较高（通常高于 0.6），表明监测区域二次等细颗粒源类影响可能较高；反之，表明监测区域地壳等粗颗粒源类影响可能较高。通过分析不同季节（或区域）的  $PM_{2.5}/PM_{10}$  的比值，结合当地排放源、气象特征，可以帮助分析不同时空条件下的粗、细颗粒主导源类。

(2) 在线  $SO_2/NO_x$  的比值。如果  $SO_2/NO_x$  的比值较高（通常高于 1），表明监测区域燃煤源影响较机动车为高；反之，表明监测区域燃煤源影响较机动车低。通过分析不同季节（或区域）的  $SO_2/NO_x$  的比值，结合当地排放源、气象特征，可以帮助分析不同时空条件下的燃煤源和机动车等源类贡献的高低。

(3) OC/EC 的比值。OC/EC 比值能一定程度反应二次有机物的贡献。当 OC/EC 比值较高（通常高于 2），表明二次有机物的贡献不可忽视。此外，二次有机物的贡献，可以使用 CMB-iteration 模型进行计算。

##### 5.7.4.2.2 时间序列法

在线  $O_3$ 、CO 等污染物时空序列分析。 $O_3$  能反映光化学反应活性，可分析不同季节（或区域）的  $O_3$  浓度，如果  $O_3$  浓度较高，表明该季节（或区域）二次硫酸盐的贡献可能比其他季节（或区域）高。CO 主要由机动车或煤炭不完全燃烧排放产生，可分析不同季节（或区域）的

CO 浓度，如果 CO 浓度较高，表明散煤燃烧或机动车的贡献可能比其他季节（或区域）高。

#### 5.7.4.2.3 其他评估方法

(1) 可依据当地机动车保有量分析机动车源的贡献。如果当地机动车保有量高，说明当地机动车排放源贡献可能较高；反之可能较低。

(2) 可依据当地燃煤量信息分析燃煤源的贡献。如果当地燃煤量高，说明当地燃煤源贡献可能较高；反之可能较低。

(3) 可依据当地在建工地、在建道路等施工信息分析城市扬尘、道路尘的贡献。如果当地在建工地、道路等施工工作较多，说明当地扬尘源贡献可能较高；反之可能较低。

(4) 一些特殊源类需结合当地实际情况具体分析。如工业源需要依据当地的工业布局及特点，分析工业源的贡献；生物质燃烧源（如秸秆焚烧）需要考虑季节性等特点；海盐粒子源需要考虑监测区域的地理位置等。

注：“模型外”经验诊断更多是依据大量研究者的源解析经验，可用于辅助选择合适的源解析结果，但是还需要结合当地的实际情况，具体问题具体分析。

#### 5.7.5 穷举法

CMB 模型往往无法通过一次计算直接得到符合条件的最终结果，需要参考模型计算结果的模型诊断指标的评估，对模型参数进行不断调试，这一过程要求使用者不断进行尝试。NKCMB 通过引入穷举法，利用计算机来实现这一重复功能。“穷举法”的基本思想是让计算机代替用户进行智能批量运算和结果筛选：即使模型不断选择不同组合的计算组分，穷举计算得到所有可能的合理结果，再对结果进行分类，帮助用户筛选得到合适的结果。

穷举法需要用户选择参与计算源类、受体、组分以及结果筛选的诊断指标。在已选定的条件下，电脑会自动尝试找出所有计算的结果，进行批量计算，之后依据给定的诊断指标展示所有计算的结果。源类、受体、组分的选择与模型选择中要求基本一致。其中组分选择可分为必须组分和去除组分，必须组分选择原则为选择典型源类的标识性组分，去除组分为标准误差相对较大和浓度过低的非标识性组分。结果筛选的诊断指标包含百分含量 ( $PM$ )、残差平方和 ( $\chi^2$ )、拟合优度 ( $R^2$ ) 和自由度 ( $df$ )，默认为推荐值  $PM$  为 80~120%， $\chi^2$  为 0~4， $R^2$  为 0.8~1， $df$  为 0~100。推荐值可依据实际情况进行调整。

穷举法结果会依据所有结果按源贡献的顺序进行分类，并统计了每一类包含的结果条数。选择某个分类会具体显示了这一类所包含的结果，选择某个结果会展示出该结果所有信息。通常“穷举功能”给出的所有结果均是满足“模型内”诊断指标的结果，用户需要再次基础上，结合“模型外”经验诊断，先选择适合的源贡献排序分类结果，再从中选择合适的源解析计算结果。

### 5.8 模型诊断

### 5.8.1 源贡献值计算优度回归诊断

#### 5.8.1.1 T—统计 (TSTAT)

$$TSTAT = S_j / \sigma_{S_j}$$

TSTAT 是源贡献计算值  $S_j$  和  $\sigma_{S_j}$  ( $S_j$  的标准偏差) 的比值。源贡献值的检出限应该是源贡献值的标准偏差的两倍或三倍。因此, 如果  $TSTAT < 2.0$ , 表示源贡献值低于它的检出限, 说明计算结果不理想。反之, 如果  $TSTAT \geq 2.0$  说明计算结果好。由于源谱的“共线性”问题、源和受体化学组分浓度的不确定性等问题存在, 在实际工作中 TSTAT 指标较难  $\geq 2.0$  (尤其是共线性源类)。

#### 5.8.1.2 残差平方和 ( $\chi^2$ )

$$\chi^2 = I / (I - J) \sum_{i=1}^I \left[ \frac{(C_i - \sum_{j=1}^J F_{ij} S_j)^2}{V_{e_{ij}}} \right]$$

$$V_{e_{ij}}^k = \sigma_{C_i}^2 + \sum (S_i^k + \sigma_{F_{ij}})^2$$

$\chi^2$  表示计算组分的测量值与计算值之差的平方的加权。权值为每个化学组分的受体浓度的标准偏差和源成分谱的标准偏差的平方和。理想的情况是, 化学组分的浓度测量值和计算值之间没有差别, 那么  $\chi^2$  应该等于零。但是实际情况并非如此。因此, 定义  $\chi^2 < 1$ , 表示计算结果好;  $\chi^2 < 2$ , 表示计算结果可以接受; 如果  $\chi^2 > 4$ , 表示计算结果差, 有可能是一个或几个化学组分的浓度不能够很好地参与计算。

#### 5.8.1.3 自由度 (df)

$$df = I - J$$

自由度等于参与计算的化学组分数目减去参与计算的源的数目的值。只有当  $n \geq 0$  即  $I \geq J$  时, CMB 方程组的解才为正值。

#### 5.8.1.4 拟合优度 ( $R^2$ )

$$R^2 = 1 - [(I - J) \times \chi^2] / \left[ \sum_{i=1}^I C_i / V_{e_{ij}} \right]$$

$R^2$  取值在 0~1 之间。该值越接近于 1, 说明源贡献值的计算值越接近测量值。当  $R^2 < 0.8$  时, 定义为计算结果不理想。

### 5.8.1.5 百分质量 (PM)

$$PM = 100 \sum_{j=1}^J S_j / C_t$$

百分质量 (Percent Mass,  $PM$ ) 表示各源类贡献计算值之和与受体总质量浓度测量值  $C_t$  的百分比。该值理论上应为 100%，在 80%~120%是可以接受的。在实际工作中，由于共线性及不确定性等因素的存在，建议上面诊断指标中，拟合优度、残差平方和、百分质量需要重点关注；T—统计可以作为参考。

### 5.8.2 化学组分计算优度的诊断

CMB 模型不仅给出源贡献浓度计算值，而且还要给出每种化学组分贡献浓度计算值。化学组分浓度计算值和化学组分浓度测量值计算优劣的诊断指标以  $C/M$  和  $R/U$  表示：

(1)  $C/M$ ：化学组分浓度计算值 ( $C$ ) 与化学组分浓度测量值 ( $M$ ) 之比值。

$$C/M = M_i / C_i$$

$$\sigma_{C/M} = (\sqrt{M_i^2 \times \sigma_{C_i}^2} + \sqrt{C_i^2 \times \sigma_{M_i}^2}) / \sqrt{(M_i C_i)^2}$$

$C_i$ —i 化学组分浓度计算值， $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ；

$\sigma_{C_i}$ —i 化学组分浓度计算值的标准偏差， $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ；

$M_i$ —i 化学组分浓度测量值， $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ；

$\sigma_{M_i}$ —i 化学组分浓度测量值的标准偏差， $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ；

$C/M$  越接近于 1，说明化学组分浓度计算值与测量值越接近。

注： $C/M$  是一项非常重要的诊断指标。通常各源标识组分的  $C/M$  值应该在 0.8-1.2 范围之内。如果低于 0.8，表明某一源类可能低估；如果高于 1.2，表明某一源类可能高估。

(2)  $R/U$ ：计算值和测量值之差 ( $R$ ) 与二者标准偏差平方和的方根 ( $U$ ) 之比

$$R/U = (C_i - M_i) / \sqrt{\sigma_{C_i}^2 + \sigma_{M_i}^2}$$

$C_i$ —i 化学组分浓度计算值， $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ；

$\sigma_{C_i}$ —i 化学组分浓度计算值的标准偏差， $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ；

$M_i$ —i 化学组分浓度测量值， $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ；

$\sigma_{M_i}$ —i 化学组分浓度测量值的标准偏差， $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ；

当某化学组分的  $|R/U| > 2.0$  时，该化学组分就需要引起重视，如果该比值为正，那么可能有一个或多个源的成分谱对这个化学组分的贡献值不合理的过大；如果该比值为负，那么可能有一个或多个源成分谱对这个化学组分的贡献值不合理的过小，甚至有源成分谱被丢失。

### 5.8.3 其他诊断技术

灵敏度矩阵 (Modified Pseudo-Inverse Matrix, MPIN), 是一个归一化的源谱加权伪逆矩阵, 该矩阵反映了每个化学组分对源贡献值和源贡献值标准偏差的灵敏程度。MPIN 矩阵的表示方式如下:

$$\text{MPIN} = (\mathbf{F}^T (\mathbf{V}_e)^{-1} \mathbf{F})^{-1} \mathbf{F}^T (\mathbf{V}_e)^{-1/2}$$

该矩阵已经进行了规范化处理, 使其取值范围为±1 之间。如果某个化学组分的 MPIN 的绝对值为 1~0.5, 则被认为灵敏组分, 即对源贡献值和源贡献值标准偏差有显著影响的组分; 如果某个组分的 MPIN 的绝对值小于 0.3, 则被认为不灵敏组分, 即对源贡献值及其标准偏差没有影响的组分; 某个组分的 MPIN 的绝对值为 0.3~0.5, 则该组分的灵敏程度被认为是模糊的, 即影响不显著或者可以被认为是没有影响的组分。通常, 各源的标识组分的值在 MPIN 矩阵中应该为高。例如, 机动车源对应的 OC 或 EC 的值应该在机动车源所对应的列中最高; 二次硫酸盐的  $\text{SO}_4^{2-}$  的值应该在二次硫酸盐所对应的列中最高。如果不是标识组分最高, 则表明可能有共线源存在, 或输入的源谱标识组分不明显。MPIN 矩阵可以帮助用户判断输入的源谱及选择的拟合组分是否合适。

### 5.9 结果报告

包括选择的计算参数 (源类、组分、受体), 诊断指标, 源贡献结果等, 报告的格式附后并作为标准附录内容。

应用 CMB 模型进行颗粒物来源解析的计算流程包括数据的准备和导入, 模型参数选择和计算, 结果评估和反馈, 输出最终结果等环节。CMB 模型输入数据包含受体化学组成文件和源成分谱文件; 开展 CMB 模型计算, 需要反复优化模型参数, 同时评估对应输出结果的合理性, 最终输出相对较优的计算结果, CMB 模型计算流程图如图 5.11 所示。

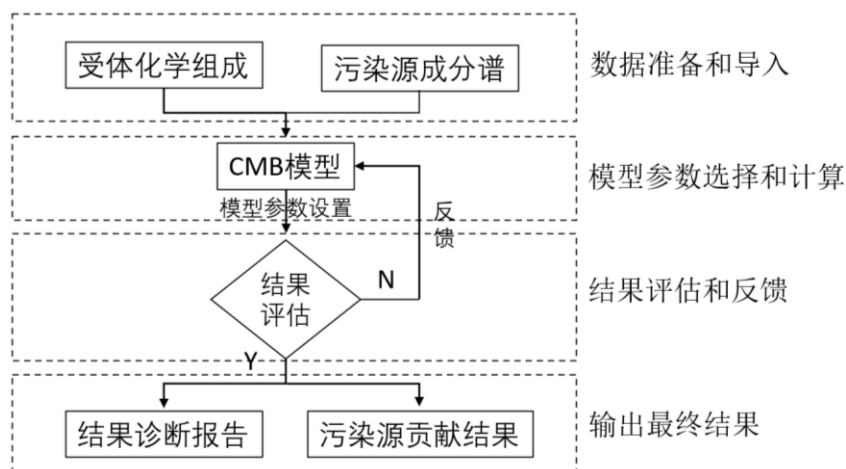


图 5.11 CMB 模型计算流程图



## CMB 模型计算记录表（一）

项目名称：

模型版本：

|               |               |                |   |
|---------------|---------------|----------------|---|
| 样品分析方法        | OC/EC:        | 水溶性离子:         | 无机元素:                                       |
| 输入数据<br>(见附件) | 采样点位:         | 采样日期和时段:       | 颗粒物粒径:                                      |
|               | 受体数量 (行):     | 组分数量 (列):      | 受体组分单位:                                     |
|               | 纳入受体时间跨度和分辨率: |                |   |
|               | 纳入解析源类:       |                |   |
| 计算参数<br>设置    | 一般拟合源类选择:     |                | 拟合组分选择:                                     |
|               | 穷举法拟合源类:      | 必须组分:<br>去除组分: | PM:<br>r <sup>2</sup> :<br>χ <sup>2</sup> : |
| 输出记录          | 源类及其贡献 (%):   |                |   |
|               | 源类 1:         | ,        %     |   |
|               | 源类 2:         | ,        %     |   |
|               | 源类 3:         | ,        %     |   |
|               | 源类 4:         | ,        %     |   |
|               | 源类 5:         | ,        %     |   |
|               | 其他:           | ,        %     |   |

记录人：

年    月    日

校核人：

年    月    日

审核人：

年    月    日

## CMB 模型计算记录表（二）

| 灵敏度矩阵 MPIN |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|------------|------|------|------|------|------|--|--|--|--|--|
| 组分         | 源类 1 | 源类 2 | 源类 3 | 源类 4 | 源类 5 |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |
|            |      |      |      |      |      |  |  |  |  |  |

记录人：                      年    月    日

校核人：                      年    月    日

审核人：                      年    月    日

### CMB 模型计算记录表（三）

| 组分拟合矩阵 |       |         |       |         |     |          |     |
|--------|-------|---------|-------|---------|-----|----------|-----|
| 组分     | 浓度测量值 | 标准偏差测量值 | 浓度计算值 | 标准偏差计算值 | C/M | C/M 标准偏差 | R/U |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |
|        |       |         |       |         |     |          |     |

记录人：  
年 月 日

校核人：  
年 月 日

审核人：  
年 月 日

## 6 模型验证

### 6.1 数据准备

编制组准备了一套源解析受体模型的实际数据作为模型验证的统一数据，数据来源为某城市源解析受体样品的监测结果。颗粒物  $PM_{2.5}$  滤膜中 OC/EC 的分析方法为热光反射法，水溶性离子的分析方法为离子色谱法，无机元素的分析方法为 ICP-MS 法，最终参与模型计算的组分包括  $NO_3^-$ 、 $SO_4^{2-}$ 、 $NH_4^+$ 、Ca、K、Mg、Al、Si、Cu、Fe、Mn、Pb、Ti、Zn、EC 和 OC 等 16 个组分，源类包括燃煤、扬尘、机动车、硫酸盐和硝酸盐。

此外，编制组还向验证人员提供了该城市的一些信息，便于更好地对计算结果进行分析判断：测试数据来自中国南方某城市，该市基准年三产占比为：第一产业（26%）、第二产业（36%）、第三产业（39%）。工业构成以轻工业为主，有较多山地，自然风光优越。该地区（以下均为采样点所在区县基准年数据）建成区面积 27 平方公里，该地区绿化覆盖率 39%；房屋施工占地面积 216 万平方米；能源消耗量 96 万吨标准煤；机动车保有量约为 17 万辆，该地区首要污染物主要为颗粒物（ $PM_{10}$ ）、细颗粒物（ $PM_{2.5}$ ）、臭氧 8 小时（ $O_3_{8h}$ ）。

### 6.2 验证结果

中国环境监测总站、西安市环境监测站、福建省福州环境监测中心站、宁波市环境监测站共 4 家单位 6 名技术人员，应用编制组准备的源解析受体模型的实际数据，按照本技术指南进行模型计算和源解析结果的分析（详见附表 1-6）。

所有验证人员均采用了穷举法，拟合的源类均选择了燃煤、扬尘、机动车、硫酸盐和硝酸盐，其他内容包括拟合组分选择、相关参数的选择、模型诊断指标的结果以及最终的源类贡献的统计结果，详见表 6-1。

由表中统计结果可见，在必须组分的选择上 6 个人有所差异，都选择的组分有  $NO_3^-$ 、 $SO_4^{2-}$ 、EC、OC，其他组分如 Si、Pb、Ca 等也有选择；均没有选择去除组分。从模型诊断指标的结果上看， $PM$ 、 $r^2$ 、 $\chi^2$ 、C/M 平方和等四个指标值比较接近，且都满足技术指南的要求，即  $PM$  接近 80%； $r^2$  值在 0~1 之间，且均大于 0.8，说明源贡献值的计算值约接近测量值；有一个结果  $\chi^2 < 1$ ，表示计算结果好，5 个结果  $\chi^2 < 2$ ，表示计算结果可以接受；C/M 在技术指南中规定约接近于 1，说明化学组分浓度计算值与测量值越接近，C/M 平方和则约接近于源类的个数越好。最终的源类及贡献中，6 个计算结果各类源所占比例较为接近，且源的排序也基本一致，即扬尘 > 其他 > 燃煤 > 机动车 > 二次硫酸盐 > 二次硝酸盐。其中，扬尘占比 32.6%~36.9%，燃煤占比 9.6%~18.9%，机动车占比 8.95%~10.8%，二次硫酸盐占比 8.5%~10.3%，二次硝酸盐占比 5.2%~5.3%，其他占比 25.5%~27.2%。

在验证过程中，根据不同单位和人员对文本反馈的结果，编制组对技术指南进一步修改和完善，编写了《环境空气颗粒物来源解析 化学质量平衡（CMB）模型计算技术指南》（试行）文本和编制说明。

表 6-1 模型计算结果统计表

| 项目             |       | 验证 1  | 验证 2   | 验证 3  | 验证 4   | 验证 5  | 验证 6   |
|----------------|-------|---|--|---|--|---|--|
| 穷举法            | 必须组分  | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、Si、EC、OC | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、EC、OC | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、Pb、EC、OC | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、Ca、Si、EC、OC | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、EC、OC、Si | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> 、NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、Ca、Si、OC、EC |
|                | 去除组分  | 无   | 无  | 无   | 无  | 无   | 无  |
| PM             |       | 74.26   | 74.26  | 74.26   | --   | 74.5  | 72.7   |
| r <sup>2</sup> |       | 0.8237  | 0.8237   | 0.8237  | 0.8543   | 0.85  | 0.91   |
| χ <sup>2</sup> |       | 1.4846  | 1.4846   | 1.4841  | 1.6191   | 1.6   | 0.86   |
| C/M 平方和        |       | 2.2511  | 2.2511   | 2.2511  | 1.1558   | 1.16  | --   |
| 源类及贡献 (%)      | 扬尘    | 32.6  | 32.6   | 32.6  | 33.0   | 33.0  | 36.9   |
|                | 燃煤    | 18.9  | 18.9   | 18.9  | 18.0   | 18.0  | 9.6  |
|                | 机动车   | 8.95  | 8.95   | 9.4   | 9.5  | 9.5   | 10.8   |
|                | 二次硫酸盐 | 8.54  | 8.54   | 8.5   | 8.7  | 8.7   | 10.3   |
|                | 二次硝酸盐 | 5.26  | 5.26   | 5.3   | 5.2  | 5.2   | 5.2  |
|                | 其他    | 25.7  | 25.7   | 25.8  | 25.6   | 25.5  | 27.2   |

## 7 对实施本标准的建议

本标准在环境空气颗粒物来源解析及其相关工作中,采用化学质量平衡受体模型法,对数据准备、模型计算和模型诊断等方面做了相应的规定。适用于环境空气颗粒物来源解析工作中,针对滤膜采样和分析得到的颗粒物质量浓度及化学组分的分析数据,应用化学质量平衡模型对颗粒物来源进行计算。

本标准的编制和发布,增强了模型计算的可操作性和普适性,为源解析工作的业务化和标准化提供重要的技术支持。同时建议随着监测技术的发展、模型计算系统的升级和监管要求的变化,对本标准进行适时修订。

## 8 参考文献

1. Miller M S, Friedlander S K, Hidy G M. A chemical element balance for the Pasadena aerosol[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1972, 39(1): 165-176.
2. Cooper J A, Watson Jr J G. Receptor oriented methods of air particulate source apportionment[J]. Journal of the Air Pollution Control Association, 1980, 30(10): 1116-1125.
3. Houglan, E.S. Chemical element balance by linear programming. 73rd Annual Meeting of the Air Pollution Control Association, 1983. Atlanta, GA.
4. Friedlander S K. Chemical element balances and identification of air pollution sources[J]. Environmental science & technology, 1973, 7(3): 235-240.
5. Watson J G. Overview of receptor model principles[J]. Journal of the Air Pollution Control Association, 1984, 34(6): 619-623.
6. Watson J G. Chemical element balance receptor model methodology for assessing the sources of fine and total suspended particulate matter in Portland, Oregon[D]. Oregon Graduate Institute of Science and Technology, 1979.
7. US Environmental Protection Agency. EPA-CMB8 Users Manual. EPA-454/R-04-XXX. US EPA, Office of Air Quality Planning and Standards Research Triangle Park, NC.
8. 朱坦, 冯银厂. 大气颗粒物来源解析[M]. 北京: 科学出版社, 2012.
9. J. Ma, R. Li, Y. Liu, G. Qu, J. Liu, W. Guo, H. Song, X. Li, Y. Liu, T. Xia, B. Yan, S. Liu. Carbon Nanotubes Disrupt Iron Homeostasis and Induce Anemia of Inflammation through Inflammatory Pathway as a Secondary Effect Distant to Their Portal-of-Entry[J]. Small, 2017, 13(15): 1603830.
10. Y. Wu, Y. Guo, H. Song, W. Liu, Y. Yang, Y. Liu, N. Sang, Y.Y. Zuo, S. Liu. Oxygen content determines the bio-reactivity and toxicity profiles of carbon black particles[J]. Ecotoxicol Environ Saf, 2018, 150: 207-214.
11. J. Ma, A. Guo, S. Wang, S. Man, Y. Zhang, S. Liu, Y. Liu. From the lung to the knee joint: Toxicity evaluation of carbon black nanoparticles on macrophages and chondrocytes[J]. J

Hazard Mater, 2018, 353: 329-339.

12. J. Ma, R. Li, G. Qu, H. Liu, B. Yan, T. Xia, Y. Liu, S. Liu. Carbon nanotubes stimulate synovial inflammation by inducing systemic pro-inflammatory cytokines[J]. *Nanoscale*, 2016, 8(42): 18070-18086.
13. 朱坦, 白志鹏, 陈威. 秦皇岛市大气颗粒物来源解析研究[J]. *环境科学研究*, 1995, 8(5): 49-55.
14. 朱坦, 白志鹏, 陈威等. 化学质量平衡受体模型新技术的应用---TEDA 大气颗粒物来源解析实例[J]. *城市环境与城市生态*, 1996, 9(1): 9-14.
15. 朱建新, 周蓉. CMB 法应用及对乌鲁木齐市大气 TSP 来源解析. *新疆环境保护*, 1996, 18(1): 29-35,38.
16. 冯银厂, 彭林, 吴建会等. 乌鲁木齐市环境空气中 TSP 和 PM<sub>10</sub> 来源解析[J]. *中国环境科学*, 2005, 25(sup): 30-33.
17. 冯银厂, 吴建会, 朱坦等. 济南市和石家庄市扬尘的化学组成[J]. *城市环境与城市生态*, 2003, 16(sup): 57-59.
18. Bi X, Feng Y, Wu J, et al. Source apportionment of PM<sub>10</sub> in six cities of northern China[J]. *Atmospheric Environment*, 2007, 41(5): 903-912.
19. 陈明华, 陈静森, 李德. 上海市大气颗粒物高浓度区污染物的源解析[J]. *上海环境科学*, 1997, 16(10): 15-17.
20. 王灿星, 易林, 林建忠. 杭州市区大气中 PM<sub>10</sub> 的污染特征及其源解析[J]. *仪器仪表学报*, 2003, 24(4): 535-536.
21. 陈添, 华蕾, 金蕾等. 北京市大气 PM<sub>10</sub> 源解析研究[J]. *中国环境监测*, 2006, 22(6): 59-63.
22. 刘咸德, 封跃鹏, 贾红等. 青岛市大气颗粒物来源的定量解析——化学质量平衡方法[J]. *环境科学研究*, 1998, 11(5): 51-54.
23. Tuncel S G, Olmez I, Parrington J R, et al. Composition of fine particle regional sulfate component in Shenandoah Valley[J]. *Environmental science & technology*, 1985, 19(6): 529-537.
24. Lewis C W, Stevens R K. Hybrid receptor model for secondary sulfate from an SO<sub>2</sub> point source[J]. *Atmospheric Environment* (1967), 1985, 19(6): 917-924.
25. Parrington J R, Zoller W H. Diurnal and longer-term temporal changes in the composition of atmospheric particles at Mauna Loa, Hawaii[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1984, 89(D2): 2522-2534.
26. Rahn K A, Lowenthal D H, Harris J M. Long-range transport of pollution aerosol from Asia and the Arctic to Okushiri Island, Japan[J]. *Atmospheric Environment* (1967), 1989, 23(11): 2597-2607.
27. Fujita E. M., Watson J. G., Chow J. C., et al. Receptor model and emissions inventory source

- apportionments of nonmethane organic gases in California's San Joaquin valley and San Francisco bay area[J]. *Atmospheric Environment*, 1995, 29(21): 3019-3035.
28. Conner T. L., Lonneman W. A., Seila R. L. Transportation-related Volatile Hydrocarbon Source Profiles Measured in Atlanta[J]. *Journal of Air and Waste Management Association*, 1995, 45(3): 383-394.
  29. Lin C., Milford D. B. Decay-adjusted Chemical Mass Balance Receptor Modeling for VOCs[J]. *Atmospheric Environment*, 1994, 28(20): 3261-3276.
  30. Lewis C. W., Stevens R. K., Rasmussen R. A., et al. Biogenic fraction of ambient VOC: Comparison of radiocarbon, chromatographic, and emissions inventory estimates for Atlanta, Georgia[J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 1999, 49(3): 299-307.
  31. Badol C., Locogea N., Galloo J. C. Using a source-receptor approach to characterise VOC behaviour in a French urban area influenced by industrial emissions Part II: Source contribution assessment using the Chemical Mass Balance (CMB) model[J]. *Science of The Total Environment*, 2008, 389(2-3): 429-440.
  32. 朱坦, 白志鹏, 朱先磊等. 源解析技术在环境评价中的应用——区域大气污染物总量控制[J]. *中国环境科学*, 2000, 20(S1): 2-6.
  33. Daisey J. M., Cheney J. L., Liou P. J. Profiles of organic particulate emissions from air pollution sources: status and needs for receptor source apportionment modeling[J]. *Journal of the Air Pollution Control Association*, 1996, 36(1): 17-33.
  34. Masclet P., Mouvier G., Nikolaou K. Relative Decay Index and Source of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons[J]. *Atmospheric Environment*, 1986, 20(3): 439-446.
  35. McDow S. R., Sun Q.-R., Vartiainen M., et al. Effect of Composition and State of Organic Compounds on Polycyclic Aromatic Hydrocarbon Decay in Atmospheric Aerosols[J]. *Environmental Science & Technology*, 1994, 28(12): 2147-2153.
  36. Miguel A. H., Pereira P. A. P. Benzo(k)fluoranthene, benzo(ghi)perylene, and indeno(1,2,3-cd)pyrene: New tracers of automotive emissions in receptor modeling[J]. *Aerosol Science and Technology*, 1989, 7(10): 292-295.
  37. Li C. K., Kamens R. M. The use of polycyclic aromatic hydrocarbons as source signatures in receptor modeling[J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1993, 27(4): 523-532.
  38. Pistikopoulou P., Masclet P., Mouvier G. A receptor model adapted to reactive species: Polycyclic aromatic hydrocarbons; Evaluation of source contributions in an open urban site—I. Particle compounds[J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1990, 24(5): 1189-1197.
  39. 朱先磊. 大气颗粒物上多环芳烃源解析的研究: [D]. 天津: 南开大学, 2001.