机动车源对细颗粒物的贡献估算方法综述

闫才青¹, 郑玫^{1,2*}

1. 北京大学环境科学与工程学院, 环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京 100871;

2. 北京大学工程科学与新兴技术高精尖创新中心, 北京 100871

* 联系人, E-mail: mzheng@pku.edu.cn

2016-09-10 收稿, 2016-12-28 修回, 2016-12-29 接受, 2017-04-07 网络版发表

国家自然科学基金(41375125, 21190050)资助

摘要 近年来, 随着机动车保有量的增加, 机动车源成为导致大气颗粒物污染的主要源类之一. 机动车源对大气细颗粒物(PM_{2.5})的浓度贡献, 以及如何准确评估机动车源贡献是目前亟需解答的问题. 本研究在调研已有文献研究的基础上, 总结了目前机动车源贡献评估的主要方法, 包括基于源清单信息的方法、受体模型法、化学传输模型法、混合源解析方法等, 阐释了各种方法的原理与应用, 评述了各种源解析方法的优势与存在的问题; 此外, 总结了国内不同城市(尤其是北京市)机动车源对细颗粒物的贡献, 指出了定量机动车源贡献中面临的挑战与尚待解决的问题.

关键词 细颗粒物, 机动车源, 估算方法, 问题与挑战

随着城市化、工业化和机动化的快速发展, 加上不利气象条件的影响, 我国空气质量状况逐渐恶化, 尤其是中东部地区, 高浓度细颗粒物污染导致的灰霾现象频繁发生, 具有发生频率高、持续时间长、覆盖范围广等特点. 高浓度细颗粒物污染不仅影响了人们的工作与生活, 同时也造成了经济和社会损失, 威胁着人体健康. 准确识别并定量解析细颗粒物的来源与贡献是提高空气质量、减缓细颗粒物污染的重要前提条件.

我国城市地区大气污染正由煤烟型向煤烟与机动车尾气混合型转化. 根据2015年环境保护部发布的中国机动车污染防治年报, 我国机动车保有量持续增加, 2014年全国机动车保有量已达2.46亿辆, 2010~2014年期间年均增长6.6%^[1]. 近年来, 机动车源对大气细颗粒物的污染贡献引起了广泛关注. 但就同一城市而言, 不同研究对机动车源贡献的认识存在较大差异. 评估方法多样化成为导致差异存在

的重要原因. 如何准确、合理地评估机动车尾气排放对细颗粒物浓度的贡献是客观评价机动车污染贡献的关键.

本文通过调研国内外机动车源对大气细颗粒物污染贡献的研究, 综述了目前研究中的主要方法、原理及应用实例, 总结了国内已发表或公布的源解析结果中机动车源细颗粒物的贡献; 在此基础上, 指出目前研究中存在的问题与挑战, 以期对机动车源贡献的准确认识与评估提供借鉴与参考.

1 机动车源对大气细颗粒物贡献的评估方法

大气细颗粒物来源解析主要是根据源清单、扩散模型和受体模型等方法^[2,3]. 其中, 受体模型和扩散模型是国内外较为普遍应用的颗粒物源解析技术; 而基于受体模型的方法来获取特定类别污染源对细

引用格式: 闫才青, 郑玫. 机动车源对细颗粒物的贡献估算方法综述. 科学通报, 2017, 62: 1256–1273

Yan C Q, Zheng M. A review of methods for quantifying contribution of vehicular emission to fine particulate matter (in Chinese). Chin Sci Bull, 2017, 62: 1256–1273, doi: 10.1360/N972016-00719

颗粒物(PM_{2.5})的贡献,是目前国内细颗粒物来源解析研究中运用的主要方法.针对某类污染源的贡献评估大致也可遵循上述几类方法,但鉴于各类源自身的特殊性,不同源贡献的评估方法存在一定差异.本文将国内外研究中涉及的机动车源对PM_{2.5}贡献评估的方法总结如下.

1.1 基于源清单信息的方法

这是一种自下而上估算机动车源颗粒物排放量的方法.通过机动车源排放细颗粒物的排放因子与该污染源在排放估算时间内活动水平的乘积获得机动车源排放量^[4],继而通过机动车排放量占同期细颗粒物总排放量的百分比来评估机动车源的贡献^[5].该类方法建立在对机动车的排放因子和活动水平有较好的调研与了解基础上.其中,机动车排放因子的获取方式主要包括台架试验^[6]、道路车载测试^[7]、隧道实验^[8]、道路遥感测量^[9]等实测研究或文献检索以及机动车排放模型等;机动车活动水平则可通过部门宏观调查和问卷调查等方式获取^[10].

运用机动车排放模型估算机动车污染物排放因子与排放总量,是机动车污染控制研究的重要方向之一.目前常用的几种机动车排放模型主要包括:(1)基于平均速度的宏观排放因子模型,例如美国环保署(US Environmental Protection Agency, EPA)研发的MOBILE(Mobile Source Emission Factor Model)模型、美国加州空气资源局开发的EMFAC(Emission Factors)模型以及欧洲环境署资助开发的COPERT (Computer Programme to Calculate Emission from Road Transport)模型等;(2)基于工况的排放因子模型,例如专门为发展中国家研发的美国IVE(International Vehicle Emission)模型等;(3)瞬时排放因子模型,例如美国加州大学河滨分校开发的CMEM(Comprehensive Modal Emission Model)模型;(4)综合排放因子模型,例如美国环保署研发的新一代移动源排放模型MOVES (Motor Vehicle Emission Simulator)等.

其中,宏观排放因子模型数据需求相对较少,在国内机动车排放研究中应用较多.例如,MOBILE模型在中国机动车排放研究中应用较早,已广泛应用于北京^[11]、上海^[12]、武汉^[13]、澳门^[14]、珠三角^[15]等多个城市、地区以及全国层面^[16]机动车排放因子和排放清单的模拟与计算.COPERT模型是欧洲编制官方排放清单最常用的排放因子模型,可用于气态污

染物、颗粒物及其中含碳组分、重金属等排放因子的计算.与MOBILE模型相比,COPERT模型更适用于具有不同机动车尾气排放标准和较少交通数据资料的国家.鉴于中国采用欧洲车辆排放测试规程和法规体系,COPERT模型在国内较为广泛地应用于全国和城市机动车排放清单的建立、机动车减排控制效果的评估等^[4,5,10,17~20].此外,基于工况的IVE模型面向发展中国家城市,已在中国、印度、墨西哥、肯尼亚、土耳其等发展中国家城市开展了实地调研和排放测试,丰富了IVE模型数据库,对发展中国家具有较好的适用性,可操作性强,具有较好的灵活性和移植性,在中国的应用也较为广泛^[21~25].其他模型在中国机动车排放因子和排放量计算研究中的应用相对较少.例如,EMFAC为评估美国加州地区机动车污染物排放而开发,可用于机动车排放污染物的排放因子和排放量的计算,但具有较强的地域性,香港结合当地因素修正获得了EMFAC-HK作为香港官方模型,但在国内其他地方应用不多^[10,17].CMEM模型虽在中国得到一定应用,但其优势在于研究车辆的瞬态排放特征,较少用于机动车排放因子水平的研究^[26].此外,美国监管部门目前主要使用的MOVES模型,是一种集区域、城市、街区和路段等多种空间尺度为一体的综合机动车排放模型,代表了排放模型研究的最新进展和发展方向,但在我国刚刚起步,受限于国内外机动车使用条件的差异,应用上存在一定困难.

鉴于上述模型多采用国外的机动车测试数据建立,内嵌的排放清单和活动水平代表欧美国家水平,在中国应用时需根据国内实际情况进行关键参数的调整和修正,使数据本地化.例如,通过调研行驶里程、车龄、维护状态、空调使用、燃料品质、运行工况、行驶状态、道路状况、环境温湿度等基本状况,并综合考虑以上因素对机动车排放的影响,或通过当地的排放实测,以修正模型中的基本排放因子.其中,机动车行驶里程数、不同类型道路(如高速路、城市公路和乡村道路)上的分布数据,可通过查阅官方统计年鉴或文献检索等途径获取,对于无法直接获取数据资料的年限,可采取线性插值方法计算获取;燃料品质(如油品和雷德蒸汽压)可通过国家和地区标准获取;气象条件(如相对湿度、最高与最低气温)则可通过中国气象局共享信息系统获取.此外,值得注意的是,目前国内绝大多数研究采用的是基于行

驶里程的污染物排放因子(g km^{-1}), 容易受到机动车重量、发动机功率和行驶状态等因素影响; 而另一种基于燃料消耗的排放因子(g kg^{-1})^[27~33], 由于燃料消耗数据相较于机动车行驶里程数据相对容易收集和获取, 且受机动车重量、行驶状态、地区等因素影响小, 目前在欧美国家应用非常广泛, 但在中国应用相对较少, 可加以拓展应用。

1.2 受体模型法

受体模型法是目前细颗粒物来源解析研究中应用最为广泛的一类方法^[2], 主要通过化学质量平衡模型(CMB)和因子分析类模型展开, 后者包括正定矩阵因子分解模型(PMF)、因子分析(FA)、主成分分析(PCA)、多元线性回归分析(MLR)和UNMIX等。其中, CMB和PMF模型目前在国内外被广泛应用^[34]。该方法基于污染源和受体间的质量平衡关系, 即受体点位测量的细颗粒物化学示踪物浓度为包含机动车源在内的各类源贡献浓度值的线性加和, 通过输入源和受体的相关信息, 从而计算出包含机动车源在内的各类污染源对受体的贡献值。也就是说, 该方法依赖于环境受体点位的监测数据, 建立在对污染源(如排放源类、源排放成分谱)和受体环境细颗粒物化学组成有一定了解的基础上。例如, CMB模型需要各类源直接排放细颗粒物的化学成分谱有详细的了解; 而因子分析类模型(如PMF, FA, PCA等)在细颗粒物的源类和源排放颗粒物特征了解较少的情况下更为适用^[35], 但鉴于统计方法, 为获取有效的源解析结果, 后者对样品量有一定的要求。

机动车源细颗粒物成分谱是影响受体模型敏感性的关键因素。使用不同机动车源成分谱会导致机动车源贡献评估结果存在很大差异。目前, 国内外已开展了一些机动车源排放颗粒物成分谱的研究, 机动车源成分谱的建立过程主要包括机动车源排放细颗粒物的样品采集与其化学组分的实验室分析。表S1列举了国内外机动车源细颗粒物成分谱建立所采用的采样与分析方法。由表S1可见, 机动车源采样方式主要包括尾气排放直接采样(含台架实验)和典型交通源环境(隧道、停车场、道路边等)现场采样等两种形式。由于机动车类型较多、机动车自身特征差异大、运行工况复杂、机动车的燃料与控制技术不断改进、机动车行驶与道路情况密切相关, 交通源环境

现场采样容易受到地面尘的影响, 直接采样法则会受到机动车排放的一次颗粒物/半挥发物质与二次粒子混合影响, 采样技术尚不完善, 机动车源排放细颗粒物成为最难监测的一类源^[36]。源样品的分析方法与环境样品^[2]相似, 主要是针对细颗粒物中离子、元素、有机碳、元素碳、单体有机物的分析, 但由表S1可见, 目前针对每类颗粒物组分的分析方法尚不统一, 且国内外常用的分析方法存在差别。例如, 针对元素碳与有机碳的分析, 国内主要使用元素分析仪或基于热-光透射法(TOT)、热-光反射法(TOR)的碳分析仪, 而国外以热-光分析法为主; 针对元素的分析方法包括X-射线荧光(XRF)、电感耦合等离子质谱、电感耦合等离子体原子发射光谱法等, 其中, 后两者在国内应用较多, 而国外主要使用XRF方法; 针对水溶性离子的分析, 国内以离子色谱法为主, 国外则以离子色谱法与原子吸收分光光度法结合为主。不同分析方法的分析原理不同, 会给源样品的分析结果带来不同, 从而导致源成分谱的差异。

限于源采样技术以及前期颗粒物工作关注的重点, 国内以往研究较多针对大颗粒物(如TSP和 PM_{10})成分谱, 针对 $\text{PM}_{2.5}$ 成分谱的研究还相对有限。随着国内 $\text{PM}_{2.5}$ 源解析工作的开展与需求, 国内细颗粒物主要排放源成分谱正在逐步陆续建立, 但目前公开发表的机动车源 $\text{PM}_{2.5}$ 成分谱仍寥寥可数。马召辉等人^[37]、温新欣等人^[38]、陈璞琨等人^[39]、张丹等人^[40]、冯小琼^[41]等分别建立了北京、济南、南京、重庆、珠江三角洲等地机动车源排放 $\text{PM}_{2.5}$ 成分谱。Cui等人^[42]、He等人^[43]、Cheng等人^[44]、Chiang和Huang^[45]等通过隧道实验研究了烟台、广州、香港、台湾等地机动车源细颗粒物的排放因子及其化学成分谱。表S2给出了目前发表的国内外典型机动车源 $\text{PM}_{2.5}$ 成分谱。由表S2可知, 机动车源排放的含碳组分有机碳(organic carbon, OC)与元素碳(elemental carbon, EC)最为丰富, 占 $\text{PM}_{2.5}$ 总质量的10%以上, OC含量为6.9%~65.5%, EC含量为1.4%~45%, OC/EC比值为0.15~2.62, 柴油车排放的EC含量高于OC; 其次是水溶性离子(例如 SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- 等)约占 $\text{PM}_{2.5}$ 总质量的1%~10%, 其中, $\text{NO}_3^-/\text{SO}_4^{2-}$ 比值为0.13~2.49; 微量元素Al, Si, K, Ca, Fe, Zn, Si, P等约占 $\text{PM}_{2.5}$ 的0.1%~1%之间, 其他痕量元素的含量则多低于0.1%。

对源有指示意义的示踪物种是利用受体模型法开展源解析研究中源类准确判识与量化的基础。目

前受体模型法研究中采用的机动车源示踪物种大致分为无机和有机示踪物两大类(表1)。Zn, Ca, Cu, Pb, Mn, Fe等被认为来自机动车润滑油、机油的主要添加剂、发动机磨损、刹车片或轮胎磨损等^[37,46-54,67],是文献中用于指示机动车源的常用无机示踪物种。鉴于不同源排放的无机示踪物种可能存在重叠和交叉,甚至一些源类缺乏典型无机示踪物,只利用无机示踪物来判断机动车源会增加源判定的不确定性。藿烷和甾烷主要存在于机动车润滑油中,是较为常用的机动车源有机示踪物种^[68-70],虽然,部分研究表明,藿烷和甾烷还可能来自燃煤源排放^[59,61,71,72],但在燃煤贡献较小的地区(如中国香港),仍可用于指示机动车源的排放贡献^[73],而在燃煤贡献明显的地区(如中国北方地区)则需与其他示踪物联合使用。Zheng和Fang^[74]发现机动车源排放的有机与无机示踪物之间具有较好相关性,二者的有机结合将增加细颗粒物源解析的准确性。为进一步细化区分汽油车和柴油车的贡献,Schauer等人^[46]提出类异戊二烯和三环萜烷与较轻气态烃类(如*n*-正己烷和异戊烷)的比值可区分柴油车和汽油车排放产物。此外,高分子量多环芳烃(PAHs)(如晕苯、茚并[1,2,3-*cd*]芘、苯并[ghi]芘)以

及不同温度下所解析出的元素碳与有机碳组分亦可作为进一步区分柴油车和汽油车的重要指标^[50,75]。例如,将气态前体物(如CO, NO, NO_x等)、不同温度下解析出的碳质组分作为示踪物种,或对源成分谱加以限制,输入受体模型^[52];以及通过CMB模型与多环芳烃、藿烷、甾烷、EC等有机示踪物联用的方法(CMB-MM^[76]),均可辅助进一步量化机动车源并区分汽油车和柴油车的贡献。鉴于同一示踪物种的“多源”特性,且不同地方机动车源排放颗粒物的特征可能存在差异,对研究地区污染源及其排放颗粒物成分谱的了解与认识,有助于示踪物种的合理选择。为提高源判识的准确性,基于受体模型方法的源解析研究,除满足受体模型获得最优解的指标要求外,可通过与机动车源排放相关的其他指标(如NO_x气体等)进行相关性分析,开展日变化、“周末效应”等对源解析结果进行验证。

1.3 化学传输模型法

化学传输模型可以模拟不同空间和时间尺度范围内PM_{2.5}及其组分浓度的时空变化。若在模型中添加源解析工具,则可在模拟污染物从源排放后,经历

表1 与机动车相关的细颗粒物无机与有机示踪物种

Table 1 Particulate inorganic and organic tracers from vehicle related sources

类别	物种	来源	参考文献
无机物种	Fe	尾气净化系统、消声器消融、刹车片、润滑油添加剂	[37,46~49]
	Cu	刹车磨损	[47]
	Ca	机油添加剂	[50~52]
	Zn	发动机内润滑油、机油添加剂、刹车片、轮胎磨损	[50,53~56]
	EC	机动车维护、尾气管排放	[53,57]
	Pb	发动机和尾气系统、含铅汽油、汽油防爆剂	[53]
	Mn	提高发动机效率的添加剂、抗爆剂	[58]
有机物种	类异戊二烯(Isoprenoid)	石油产物、汽油车、柴油车	[46]
	三环萜烷(Tricyclic terpanes)	石油产物、汽油车、柴油车	
	异己烷(Isohexane)	柴油车	
	<i>n</i> -正己烷(<i>n</i> -hexane)	柴油车	
	藿烷(Hopane)	润滑油(会受煤炭燃烧影响)	[46,59~62]
	甾烷(Sterane)	润滑油(会受木柴燃烧影响)	[46,62]
	环戊烯[cd]芘(Cyclopenta[cd]pyrene)	汽油车或机动车,受木柴燃烧影响,大气中稳定性较差	[61,63~65]
	苯并[ghi]芘(Benzo[ghi]perylene)	汽油车	[63]
	晕苯(Coronene)	汽油车	
	二苯并噻吩(Dibenzothiophene)	重型柴油车	[63,66]

各种大气物理、化学过程,对受体点位浓度贡献的同时,进一步估算包括机动车源在内的各类源对受体点位细颗粒物的影响与贡献^[77-79]。由于化学传输模型中同时考虑了颗粒物与其气态前体物,因而可区分一次组分和二次组分的浓度,解决受体模型方法无法辨识二次转化对颗粒物贡献的难题^[35,76,80]。

基于化学传输模型的源解析方法主要包括以下两大类:(1) 基于敏感性分析的方法,通过调整模型输入条件(如机动车源排放)获得模型输出响应变化的敏感性分析方法(sensitivity analysis methods),例如,空气质量模型通常使用的源扰动法/强力法(brute force method, BFM)和直接求解模型敏感性系数方程组的去耦合直接法(decoupled direct method, DDM)等;(2) 基于示踪物种的方法(reactive tracer method),通过在网格模型中增加活性示踪物种(reactive tracer)或者标记物种(tagged species)来追踪特定源排放的污染物在大气中迁移、转化和沉降等过程,并通过质量守恒估算不同排放源的浓度贡献^[3,81,82]。例如,颗粒物来源追踪技术(particulate source apportionment technology, PSAT),标记追踪物的源解析方法(tagged species source apportionment, TSSA)等,以及在TSSA基础上开发的集成源解析方法(integrated source apportionment method, ISAM)。这些不同颗粒物源解析方法可与多尺度空气质量模型(CMAQ)、综合空气质量模型(CAMx)等化学传输模型联用,从而实现了对包括机动车源在内的各类源贡献的解析结果。目前使用较多的组合包括CAMx/PSAT, CAMx/BFM, CAMx/DDM, CMAQ/BFM, CMAQ/TR, CMAQ/TSSA, CMAQ/ISAM等^[35,82-85]。此外,由美国加州大学戴维斯分校研发的一种具有源解析功能的化学传输模型——源导向性外部混合空气质量模型UCD/CIT,也被应用于研究一次与二次颗粒物来源的区域贡献与分布^[86],该模型通过跟踪模拟气团,分别跟踪包括机动车源在内的各类源排放的细颗粒物,直接输出下风向受体点位处各类源的贡献。

在化学传输模型法中,较多采用中尺度气象模型(mesoscale model, MM5)或新一代中尺度预报模式(weather research and forecasting model, WRF)提供数值模拟所需的气象场;利用源清单处理模型SMOKE(sparse matrix operator kernel emissions)来处理由特定数据库(如美国EPA的全国源排放清单NEI数据库、中国多尺度排放清单MEIC数据库等)提供的污染源

清单。值得注意的是,该类方法应用于源解析时所能区分的源类别取决于所使用源排放清单中的分类。

该类方法主要在国外建立与发展,在国外的应用较多,国内采用此类方法评估机动车源贡献的研究相对较少,主要是针对北京、上海、广州等国内大城市机动车源贡献解析的个别研究。例如,Wu等人^[84]利用CAMx模型耦合PSAT源解析工具,发现流动源(包括机动车和船舶之和)在12月和4月对珠三角地区PM_{2.5}贡献分别为9%~26%和11%~43%,对广州市PM_{2.5}的贡献约为30%和45%。Wang等人^[87]利用CAMx/PSAT解析发现2010年秋季灰霾过程中机动车源对上海市不同行政区PM_{2.5}的贡献为10%~40%。Zhou等人^[88]利用MM5-CMAQ模式模拟发现北京秋季机动车和道路扬尘对PM₁₀的贡献分别约为9%和20%。

1.4 混合源解析法

不同细颗粒物源解析方法建立的原理各异,具有各自独特的优势、不确定性和局限性。张延君等人^[3]提出多种方法集成应用和发展混合模型是未来开展颗粒物源解析工作的方向。近年来,一些耦合了敏感性分析工具的化学传输模型,与外场观测数据、受体模型相结合的混合源解析方法被建立与应用^[19,89,90]。

Cheng等人^[19]提出一种综合环境监测-数值模拟-受体模型法评估机动车源排放对PM_{2.5}贡献的新思路。由MM5-CMAQ模式结合归零法设置不同情景,模拟获取机动车排放对不同一次污染物(如一次有机气溶胶(POA), EC, SO₂, NO_x, NH₃)的贡献率(CR),而机动车排放对金属元素的CRs由观测数据通过因子分析法获取,对VOCs的贡献率则通过VOCs的源解析完成;同时,通过实测数据计算获取各物种在PM_{2.5}中的比例 P ;并假设源对二次气溶胶的贡献与其对相应气态前体物的贡献成比例,通过各种一次与二次组分CR与 P 乘积的线性加和,分别计算获取机动车源对一次、二次气溶胶及总PM_{2.5}的贡献。基于该研究思路,Cheng等人^[19]研究表明北京市交通运输年均总贡献为27.4%±4.8%,其中,机动车尾气排放年均贡献为22.5%±3.5%,道路尘贡献为4.9%±1.3%。机动车对硝酸盐的贡献最大(约38%~47%),对二次有机气溶胶(SOA)的贡献次之(约24%~37%),对硫酸盐的贡献最低(约1%~2%)。Cui等人^[89]在该思路基础上,同时考虑了各部门的排放贡献及区域传输的影响,结

合观测数据与WRF/Chem-ZM的混合源解析方法,研究表明流动源对广州市PM_{2.5}具有重要贡献(干季:20.7%;湿季:37.4%),其主要原因在于流动源对NO_x(干季:56.0%;湿季:68.6%), VOCs(干季:23.4%;湿季:28.6%), POA(干季:39.0%;湿季:46.5%)等均具有重要贡献。

美国佐治亚理工学院Russell教授研究团队建立了利用化学传输模型与CMB模型相结合的混合源解析方法,通过CMAQ-DDM方法模拟PM_{2.5}及其组分的网格化浓度,并确定PM_{2.5}及其组分对包括机动车源在内的各类源的敏感性;将CMAQ-DDM获得的源敏感性分析结果作为源贡献初始值(SA);然后将SA、受体点位测量浓度及其不确定性、化学模式模拟浓度及其不确定性、源贡献不确定性、调整因子(*R*)等输入建立的混合模型;目标函数通过岭回归结构建立,利用类似CMB模型的有效方差方法优化模型输出;通过求解的*R*值重新调整CMAQ-DDM获取的初始源贡献SA,获得优化后的源贡献结果。Hu等人^[90]利用该思路解析发现美国CSN监测网络的六大城市站点机动车源一次贡献为13%~22%,一次与二次源的总贡献为23%~34%。

混合模型方法相较于原始的化学传输模型源解析方法结果更接近实测,能够提供比传统受体模型更多源类的贡献解析结果,建立源和受体点位二次组分间的关系,开展源和观测的空间与时间关联;提供源解析的不确定性估算、源强和组分测量的误差分析,具有一定的优越性。该类方法存在的缺陷在于,只适用于有观测数据的观测点位,因而具有一定的时间和空间局限性^[90,91]。

1.5 其他方法

上述4类机动车源贡献解析方法主要是建立在对细颗粒物来源解析的基础上,在源解析过程中优化机动车源相关的输入条件,并从源解析结果中获取机动车源的贡献。此外,根据机动车源的污染特征,机动车源贡献的评估还可以采用其他方法。例如,对比研究也是机动车源贡献评估的重要方法之一。主要方式包括:(1)选择道路边和其他背景站点开展同步观测,二者的差异可用于表征机动车导致的增量^[92]。在特殊情况下,利用NO_x作为机动车源的示踪物种,并假设机动车是所选择受体观测站点NO_x的最主要或者唯一来源,建立PM_{2.5}与NO_x之间的线性关

系,当NO_x为零时对应的PM_{2.5}即为非机动车源贡献,其他浓度则是由机动车源引起^[92~95];(2)由于工作日与周末交通出行行为差异(“周末效应”)的存在,周末与工作日PM_{2.5}的差异分析也可用于区分与研究机动车源的贡献^[96]。

综上所述,各种机动车源贡献评估方法各有利弊,目前均存在一定的局限性或不确定性。混合源解析方法是最新提出的一种集成方法,当前的应用还十分有限,尤其在國內,亟需通过开展与加强中国本地化的机动车源排放因子、排放清单、PM_{2.5}源成分谱的实测研究,以及颗粒物的二次形成机制研究,加强高时空分辨率的网格化布点观测,促进化学传输模型与受体模型的有效结合,进一步优化与拓展混合源解析方法在國內的应用。

2 国内各城市机动车排放对细颗粒物的贡献

Karagulian等人^[97]综述了全球51个国家城市大气颗粒物的源解析研究表明,在全球尺度上,城市大气环境中机动车源对PM_{2.5}的贡献约为22%;机动车源是印度(35%)、东亚(34%)、东南亚(36%)、欧洲西南部(35%)、巴西(33%)和美洲其他部分(30%)等众多地区的主要贡献源。中国地区机动车的相对贡献(北方地区:15%;南方地区(黄河以南,含台湾):18%)虽比其他国家和地区低,但绝对浓度贡献较高。表2总结了国内目前文献报道的PM_{2.5}源解析结果中城市机动车源的贡献范围,可发现不同城市机动车源对细颗粒物的贡献大致呈现以下特征:南方城市略高于北方城市、城市站点略高于郊区站点、路边站点高于其他环境站点。特殊污染时期与平常情况下机动车的排放贡献还可能存在差异。

总结发现,目前国内细颗粒物来源解析研究主要集中在北京地区^[76,98~115],且90%以上使用的是受体模型法(表3),只有少数研究使用化学传输模型方法。此外,需要注意的是,基于源清单信息的方法,除机动车源排放清单外,需同时具备其他污染源(如燃煤、扬尘等)的排放清单,工作量大,且清单的更新通常需要相对较长的时间,目前用于直接评估机动车源对PM_{2.5}一次排放量的贡献比较有限,而主要用于机动车源PM_{2.5}排放量的长时期变化趋势与空间分布趋势研究、不同类型机动车的排放量评估以及减排控制措施的有效性评估等,或与其他扩散模型、化学

表 2 国内各大城市机动车源对细颗粒物贡献的文献研究

Table 2 Vehicular contributions to PM_{2.5} from different cities in China based on previous studies

地点	年限	季节	站点	贡献值(%)	研究方法	示踪物种	参考文献
北京	1989~2014年	不同季节	城市站点/郊区站点/交通站点	4~36	受体模型 (CMB/PMF/PCA/ME-2/UNMIX)、化学传输模型	OC/EC/Cu/Ni/Pb/Zn/EC/As/Mn	[76,98~115]
济南	2007~2008年	年均	城市站点	6.1	PMF	EC/Pb/Fe/OC/Cu/Zn/K/Mn/EC	[116]
西安	2013年	冬季	城市站点	6.9	CMB+PMF/ME2		[113]
西安	2010年	年均	城市站点	14.9	PMF	NO ₃ ⁻ /EC	[117]
			郊区站点	12.9	PMF		
南京	2011~2014年	年均	城市站点	22.4	PMF	OC/EC/Zn/Cu/Mn/Pb	[118]
南京	2011~2012年	年均	城市站点	12.5	CMB	OC/EC	[39]
			郊区站点	16.5			
南京	2004~2005年	夏季(8月)	城市站点	2.0~3.9	CMB	Al/Zn/Ca/Si/P	[119]
		冬季	城市站点	2.3~4.3	CMB		
上海	2013年	冬季	城市站点	6.8	CMB+PMF/ME2		[113]
广州	2013年	冬季	城市站点	8.6	CMB+PMF/ME2		
广州	2004年	秋季	城市站点+半郊区站点	38.4(32.6~43.3)	CMB	OC/EC	[120]
广州	2013年	干季	全市	20.7	WRF/Chem+归零法		[89]
广州	2013年	湿季	全市	37.4			
深圳	2009年	年均	城市站点	26.9	PMF & (OC/EC)比值法	OC/EC	[121]
香港	2011~2012年	年均	路边站点	16.0~35.6	PMF结合(OC/EC)min		[122]
香港	2011~2012年	年均	城市站点	24.0			[122]
			城市站点	23±4			
			郊区站点	20±3	PCA/APCS	OC/As/Cu/Mn/Br/K/Zn/Pb	[123]
香港	2004~2005年	年均	路边站点	33±1 (柴油车)			
				18±2 (其他车)			
鄂尔多斯	2005年	秋季	城市站点	22.7	PCA-MLR	OC/EC	[124]
珠三角	2006年	全年	整个区域	35.3	源清单		[125]
全国	2010年	全年	全国	3.7	源清单		[126]

传输模型等结合进一步评估机动车源对环境大气中PM_{2.5}的贡献。图1和表3进一步总结了北京地区不同研究^[76,98~115]报道的机动车源贡献,虽然不同研究小组、不同研究方法的结果难以直接对比,但仍可见一定的趋势。根据已有文献报道,1989~2000,2000~2010,2010~2014年间北京市机动车源对PM_{2.5}的贡献平均值分别为11.9%±10.7%,12%±8.6%,17.8%±9.3%。2000年后,北京市机动车源贡献平均值为15%±9.2%,较2000年前呈现增加趋势;2010年后,机动车源的贡献明显增加。Lv等人^[34]综述了2000~2010年间北京市细颗粒物源解析结果,同样发现机动车源的贡献呈现增加趋势,2006年前北京市机动车的排

放贡献约为6.8%,2006年后约为10.6%。

由图1可见,就北京而言,不同研究报道的机动车贡献值差异较大,可能是由研究年限、采样点位、采样方法、实验分析方法、源解析方法、源谱或源示踪物种的差异等所导致。例如,采用相同的源解析方法,但采样点位、输入数据,或者示踪物种选择的差异等均可致使源解析结果存在较大差异^[110,111]。即使基于相同的观测数据,使用不同源解析方法,结果也可能存在差异^[3]。例如,Song等人^[55,100]与Zheng等人^[76]利用相同观测数据,采用3种最为常用的受体模型解析结果较为接近(PMF/PCA,6%;CMB,7%),但使用UNMIX方法的研究结果较高(11%);王琴等

图 1 不同研究中北京市机动车源对PM_{2.5}的贡献。不同颜色柱表示不同季节的平均值,黑色柱表示全年平均,白色柱表示夏季平均,网格柱表示冬季平均

Figure 1 Vehicular contribution to PM_{2.5} in Beijing based on the different studies. Bars in different color represent the average contributions in different seasons. Black bars present yearly average contributions; white bars present summer average contributions; and bars filled in grids present winter average contributions

人^[110]与杨妍妍等^[109]利用2012~2013年间北京市10个监测站点的相同监测数据,分别采用PMF和CMB受体模型开展细颗粒物来源解析,结果同样存在较大差异(PMF: 10%; CMB: 16%)。此外,相近年限的研究中,基于化学传输模型法的研究结果较受体模型法略高^[19,108]。

3 问题与挑战

3.1 一次源与二次源的区分

机动车源不仅是一次颗粒物的直接排放源,同

时,也是城市环境中气体污染物(如NO_x, SO₂, NH₃, VOCs等,尤其是NO_x和VOCs)的重要来源,其对城市大气中VOCs贡献率可高达40%~60%^[127]。此外,机动车对大气臭氧也有重要贡献^[128]。这些气态前体物可促进二次组分的生成,例如,VOCs类前体物经过氧化反应形成SOA, NO_x则氧化生成硝酸盐,从而导致间接贡献,也是PM_{2.5}的重要来源之一。但由于对大气细颗粒物中二次组分的形成机理了解尚不全面,例如,并非所有硫酸盐、硝酸盐和铵盐均来自于二次转化,一些一次源也可直接排放贡献^[53],因而一次源与二次源的区分、二次源对细颗粒物的贡献解析成

表3 基于不同方法对北京地区机动车源的贡献解析结果

Table 3 Summary of the contribution of vehicular emissions in Beijing based on the various methods

模型		使用比例 (占总研究%)	贡献值 (%)	优点	存在问题	文献
受体模型法	CMB模型	29	6~36	对样品量无需求;从受体角度包括了源排放、气象、传输等综合作用的结果	需要输入源成分谱;源谱受限于对当地源的研究;只解析一次源贡献;受限于监测点位	[76,98,99,102,105,109,113]
	PMF模型	46	4~28	不需要输入源成分谱;从受体角度包括了源排放、气象、传输等综合作用的结果	对样品量有要求;受限于观测的时空分辨率输出源谱包括一次与老化的共同贡献	[55,102,104,106~108,110~113,115]
	其他(PCA/FA/UNMIX/ME-2)	17	6~11	不需要输入源成分谱	对样品量有需求,受限于监测的时空分辨率	[100,103,115]
化学传输模型法		8	4~27	空间覆盖范围大;可区分本地排放源与外来传输源、一次与二次源的贡献;不存在共线性问题	受源清单、气象场模拟、模型参数估算误差不确定性影响;源清单更新迟缓,且未实现实时动态化	[19,114]

为目前源解析工作的难点之一。

烟雾箱实验作为模拟研究大气污染物的大气化学过程与光化学反应机理的重要手段,也为研究机动车源污染物的二次转化提供了重要途径。目前部分研究在烟雾箱中模拟测试了机动车尾气经稀释后产生的SOA。研究表明,除配备颗粒物过滤膜和氧化催化剂的机动车外,其他机动车排放的气态前体物均能通过光化学反应产生相当数量的SOA;且在多数情况下,生成SOA的质量甚至会超过POA。例如,Deng等人^[129]通过烟雾箱实验发现柴油车消耗单位燃料排放产物经过二次转化后,产生的SOA约为POA的1.6倍。Gentner等^[130]认为汽油车贡献的SOA较柴油车可忽略,而Bahreini等人^[131]和Nordin等人^[132]则发现汽油车产生的SOA氧化程度更高,超过柴油车。Liu等人^[133]通过烟雾箱实验研究表明怠速状态轻型汽油车排放形成SOA量可比POA高2个数量级;Gordon等人^[134,135]通过烟雾箱对15辆轻型汽油车排放细颗粒物的老化过程研究表明,轻型汽油车排放对环境细颗粒物的贡献主要来自于二次有机气溶胶和硝酸盐。Platt等人^[136]通过可移动的新型环境反应烟雾箱实验发现,新型汽油车排放产物经光化学反应与老化后,可形成高达一次气溶胶15倍的SOA,且主要来自之前未关注的气态前体物和反应过程。为解答机动车排放对国内环境中SOA贡献这一问题,亟需针对国内具有代表性的车辆类型和行驶工况加强研究,且需全面测量机动车排放物的颗粒物与气态污染物组成。

考虑到机动车排放产物可在环境大气中存在约一个周或者更长时间,烟雾箱实验不能真实模拟环

境大气中机动车排放物所经历的多代氧化反应^[137]。此外,烟雾箱实验测量机动车数量有限,不能模拟环境中真实车队的影响,隧道成为研究机动车尾气二次转化与老化的潜在“烟雾箱”。Tkacik等人^[138]通过隧道研究发现美国匹兹堡隧道机动车尾气,经过2~3天大气等效氧化反应后,产生SOA峰值;同时,光学氧化反应中产生一定量的硝酸铵,且通常超过SOA质量。该研究认为,美国机动车每年贡献的SOA约为 $2.9 \pm 1.6 \text{ Tg a}^{-1}$,比国家源排放清单公布的机动车源颗粒物高6倍。Bahreini等人^[131]研究表明美国汽油车产生SOA的速率约为 1 Tg a^{-1} 。目前,亟需通过机动车尾气管排放自下而上地评估SOA的产量。

综前所述,基于源清单信息的方法只能获得机动车源的一次排放贡献。基于受体模型的方法同样无法辨别一次源与二次源的贡献^[19,89]。例如,通过PMF模型解析的机动车源谱中会有 SO_4^{2-} 存在,表明其可能是一次源与二次源的混合^[62];然而,即使在机动车源样品成分谱的检测中也会发现 SO_4^{2-} 的存在^[53],这给机动车源采样技术的标准化与规范化提出了更高的要求。部分研究中将 NH_4^+ 和 NO_3^- 作为拟合物种放入CMB模型,通过虚拟构建的“纯”硫酸铵、硝酸铵和有机物成分谱,以表征二次源,从而扣除二次气溶胶的背景值^[55,109]。另外一些研究则通过受体模型与气态前体物的排放清单相结合解析颗粒物的一次与二次源贡献。例如,王苏蓉等人^[118]首先采用OC/EC最小比值估算SOA含量,通过PMF模型对 $\text{PM}_{2.5}$ 中非SOA的部分开展源解析;然后,根据 SO_2 、 NO_x 、 VOC_s 三种主要前体污染物的排放量,分别对二次无机气溶胶(SNA)和SOA在一次来源中进行再分

配,从而获得机动车源的一次(17.5%)与二次(SIA: 3.8%; SOA: 1.1%)贡献.运用化学传输模型法和混合源解析法则可避免这个问题,它们同时考虑机动车源一次排放的气态与颗粒态污染物与其大气化学过程与二次转化机制,从而实现机动车源一次与二次贡献的区分,但基于化学传输模型的方法以及混合源解析方法亟需引入并结合国内外最新的源清单与烟雾箱实验研究结果.

3.2 直接与间接排放的区分

机动车对大气细颗粒物的贡献除尾气排放外,还包括轮胎磨损、道路尘再悬浮等几个方面.其中,机动车尾气贡献的主要是细颗粒($PM_{2.5}$),而非尾气排放源贡献的主要是粗颗粒($PM_{2.5-10}$).非机动车尾气颗粒物源(如轮胎磨损、道路磨损、刹车片磨损、道路尘再悬浮等)甚至可能比机动车尾气本身产生更多的细颗粒物,由于多数研究与现有政策法规主要聚焦于尾气排放影响,严格的控制和技术提高导致尾气排放细颗粒物的极大降低,使得非尾气排放变得尤为重要^[139].但目前针对非尾气源的特性和定量研究仍较少^[67].

基于源清单的方法主要集中于尾气排放贡献的评估,而忽视了轮胎磨损与再悬浮尘等机动车相关源的贡献.利用PMF受体模型解析的机动车尾气因子中常含有地壳元素,如Al和Si等.非机动车尾气源贡献的主要是微量元素(如Cu, Zn, Ba, Sb, Mn等)、少量PAHs和烷烃等^[67].与一般的土壤扬尘(示踪物为Si, Al, Fe, Ca)不同,道路扬尘除了含有较高的Al, Ca, Fe, Si, Ti等元素,还可能在与机动车刹车片、轮胎磨损等因素相关的元素(如Cu, Zn, As, Ba, Pb, Cr, Ni)^[107],以及OC, EC等.痕量元素的排放与车辆类型、排放量与车流量、行驶状态、交通路况、气象等条件有关,随地区而变化^[140,141].轮胎磨损和刹车导致的排放除与道路有关外,还与机动车本身的材料、制造商等有关,因而给自下而上的源排放法分析与源清单建立带来了极大困难^[142,143],并由此导致基于道路尘排放清单的化学传输模型模拟结果不确定性增加.

3.3 源成分谱需规范化与公开化

机动车源成分谱是影响受体模型法源解析结果的重要因素之一.由表S1和S2可知,目前国内机动车源成分谱具有以下特征:(1)源成分谱的建立尚未

形成标准化、规范化的采样方法与监测方法.(2)针对机动车源 $PM_{2.5}$ 的成分谱研究较少,现有源谱建立的时间相对较早,而各地机动车类型、燃油类型、尾气控制技术等均发生了变化.(3)源成分谱中细颗粒物的组分、粒径与受体环境监测内容不符,国内包含颗粒物全组分的机动车源成分谱尚不多见,现有源谱研究中绝大多数仅针对颗粒物中主要组分、痕量元素或有机示踪物等部分物种展开测量,分析物种不全面,缺乏针对源特征性示踪物种的分析,这可能与分析方法有关.只有少数研究开展了单体有机物的测试.例如,张元勋^[172]建立了较为全面的机动车源颗粒有机物成分谱,Cui等人^[42]测定了隧道中机动车源细颗粒物的全组分排放特征,但仅给出了各组分的排放因子.(4)已发表的机动车源谱缺乏数据公开、且存在形式不规范,同时未给予具体的采样方法、测试机动车类型与数量、燃料类型与运行参数等介绍.与之相比,美国已建立了规范化的颗粒物、挥发性有机物等源成分谱库共享平台SPECIATE,融入了各主要源成分谱研究团队的研究结果,并不断加以完善;源成分谱所包含物种涵盖元素碳、有机碳、离子、金属和单体有机物等.

目前国内细颗粒物源解析研究中,仍较多借用美国或其他地区的机动车源成分谱.Yan等人^[144]指出,缺乏本地代表性的源成分谱和不考虑区域的差异性,会导致基于受体模型解析结果的不确定性增加.郝明途等人^[145]对国内不同研究团队在不同城市建立的机动车源成分谱进行对比研究,表明使用不同采样方法建立的机动车源 $PM_{2.5}$ 成分谱差异较大(如特征组成 SO_4^{2-} 和Ca等)、相关性较差,指出需要建立机动车源排放成分谱的规范或者标准.由表S2可见,不同地点、不同车辆类型机动车源成分谱具有较大的差异,因此,借用国外或非本地的机动车源成分谱会导致源解析结果存在较大误差.我国亟需形成优化、统一、规范的机动车源成分谱采样与分析方法,增加源成分谱中分析物种指标,补充机动车源不同粒径颗粒物成分谱的测量与分析,逐步更新与完善具有高时间与空间分辨率的机动车源成分谱,公开发表各团队机动车源成分谱的研究数据,建立完善的机动车源成分谱库共享机制.

3.4 选择正确源示踪物种的挑战

如1.2节所述,目前使用较多的受体模型方法中,

机动车源示踪物种存在很大差异. 现有研究中对示踪物种的选择尚未形成统一规范, 一方面, 是由于对机动车源细颗粒物成分谱的认识与研究不足; 另一方面, 则受限于环境与源样品中测量的化学组分有限, 以细颗粒物主要成分与无机元素的分析为主, 导致示踪物种的选择以无机示踪物为主. 鉴于无机示踪物的“多源”现象明显, 同一种无机组分可能产生于多种不同源, 从而对源的准确判定产生干扰. 例如, 基于受体模型解析出来的机动车源类因子易与其他源类(如扬尘源)混在一起, 无法分开; 其次, 即使是机动车源, 其一次与二次、直接与间接以及不同机动车类型、不同行驶状态等排放的颗粒物成分均可能存在差异.

为提高机动车源判定的准确性, 合理地选择示踪物种, 增加示踪物的种类限制, 合理结合无机与有机示踪物以及增加示踪物种之间的比值限制; 通过解析获得的机动车源颗粒物与机动车源相关的示踪性物种进行相关性分析, 均可提高机动车源解析的准确性.

3.5 建立多种机动车源成分谱的挑战

由于中国部分地区道路建设速度赶不上机动车的增长速度, 加上部分地区道路配套设施差, 交通堵塞造成机动车低速行驶, 怠速情况下机动车的排放增加. 另一方面, 车速越大, 车辆受到的摩擦阻力越

大, 发动机需输出的功率越大, 油耗和燃烧温度也随之增加. 因而, 自下而上地评估机动车的排放贡献, 需对当地的路况等条件具有很好的了解. 机动车源成分谱的建立亟需综合考虑不同行驶工况、路况以及不同车型、燃料类型等条件下的排放情况.

4 展望

目前机动车源贡献的准确评估仍存在着众多问题与挑战. 为准确评估机动车源对大气细颗粒物的贡献, 亟需加强以下多个方面的研究: (1) 从源头上加深对机动车源直接排放细颗粒物、气态前体物及相关非机动车尾气排放与二次转化的了解, 细化机动车源排放细颗粒物的源成分谱研究, 开发与建立统一、规范化的机动车源样品采集技术与方法; (2) 准确测量机动车源颗粒物与气态前体物的排放因子, 提高机动车源排放清单的时间与空间分辨率; (3) 结合无机与有机示踪物种, 集成多种源解析技术, 尤其是促进受体模型与扩散模型的结合, 完善混合模型方法, 加强机动车源直接排放与二次生成颗粒物贡献的全面研究; (4) 多角度综合验证源解析结果, 验证机动车排放对颗粒物贡献评估的准确性; (5) 考虑机动车与地区特征, 建立与完善分地区、分车型、分物种的机动车排放因子、源成分谱、源排放清单等中国特色数据库, 并实现数据的公开与共享.

致谢 本文撰写过程中得到北京大学环境科学与工程学院王雪松副教授对化学传输模型方法部分的订正, 在此表示衷心感谢. 同时, 感谢中国-东盟环境保护合作中心的部分资助.

参考文献

- 1 Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. China Vehicle Emission Control Annual Report (in Chinese). Beijing: Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China, 2015 [中华人民共和国环境保护部. 中国机动车污染防治年报. 北京: 中华人民共和国环境保护部, 2015]
- 2 Zheng M, Zhang Y J, Yan C Q, et al. Review of PM_{2.5} source apportionment methods in China (in Chinese). Acta Sci Nat Univ Pekinensis, 2014, 50: 1141–1154 [郑玫, 张延君, 闫才青, 等. 中国 PM_{2.5} 来源解析方法综述. 北京大学学报(自然科学版), 2014, 50: 1141–1154]
- 3 Zhang Y J, Zheng M, Cai J, et al. Comparison and overview of PM_{2.5} source apportionment methods (in Chinese). Chin Sci Bull, 2015, 60: 109–121 [张延君, 郑玫, 蔡靖, 等. PM_{2.5} 源解析方法的比较与评述. 科学通报, 2015, 60: 109–121]
- 4 Cai H. Evolution and trend study on emission inventories of on-road motor vehicles in China (in Chinese). Doctor Dissertation. Beijing: Peking University, 2011 [蔡皓. 中国道路机动车排放清单的演变与趋势研究. 博士学位论文. 北京: 北京大学, 2011]
- 5 Lang J L, Cheng S Y, Wei W, et al. A study on the trends of vehicular emissions in the Beijing-Tianjin-Hebei (BTH) region, China. Atmos Environ, 2012, 62: 605–614
- 6 Shah S D, Johnson K C, Miller J W, et al. Emission rates of regulated pollutants from on-road heavy-duty diesel vehicles. Atmos Environ, 2006, 40: 147–153

- 7 Shah S D, Ogunyoku T A, Miller J W, et al. On-road emission rates of PAH and *n*-alkane compounds from heavy-duty diesel vehicles. *Environ Sci Technol*, 2005, 39: 5176–5284
- 8 Weingartner E, Keller C, Stahel W A, et al. Aerosol emission in a road tunnel. *Atmos Environ*, 1997, 31: 451–462
- 9 Kuhns H D, Mazzoleni C, Moosmüller H, et al. Remote sensing of PM, NO, CO and HC emission factors for on-road gasoline and diesel engine vehicles in Las Vegas, NV. *Sci Total Environ*, 2004, 322: 123–137
- 10 He K B, Huo H, Wang Q D, et al. Technique Method and Application of On-road Motor Vehicle Emission Model (in Chinese). Beijing: Science Press, 2014 [贺克斌, 霍红, 王岐东, 等. 道路机动车排放模型技术方法与应用. 北京: 科学出版社, 2014]
- 11 Fu L X, Hao J M, He D Q, et al. The emission characteristics of pollutants from motor vehicles in Beijing (in Chinese). *Environ Sci*, 2000, 3: 68–70 [傅立新, 郝吉明, 何东全, 等. 北京市机动车污染物排放特征. 环境科学, 2000, 3: 68–70]
- 12 Li L. Research on vehicle exhaust pollution in Shanghai under the GIS environment (in Chinese). Master Dissertation. Shanghai: East China Normal University, 2004 [李莉. GIS 环境下上海市机动车尾气污染研究. 硕士学位论文. 上海: 华东师范大学, 2004]
- 13 Yu H. The research of emission list in Wuhan (in Chinese). Master Dissertation. Wuhan: Wuhan University of Technology, 2007 [余慧. 武汉市机动车排放清单研究. 硕士学位论文. 武汉: 武汉理工大学, 2007]
- 14 Wu Y, Hao J M, Li W, et al. Calculating emissions of exhaust particulate matter from motor vehicles with PART5 model (in Chinese). *Environ Sci*, 2002, 23: 6–10 [吴烨, 郝吉明, 李伟, 等. 应用 PART5 模式计算机动车尾气管的颗粒物排放. 环境科学, 2002, 23: 6–10]
- 15 Ma Y T. The compilation of vehicle emission of emission inventory in Pearl River Delta Region and its uncertainty analysis (in Chinese). Master Dissertation. Beijing: Peking University, 2004 [马因韬. 珠江三角洲机动车排放清单的开发及其不确定性分析. 硕士学位论文. 北京: 北京大学, 2004]
- 16 Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, et al. Asian emission in 2006 for the NASA INTEX-B mission. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 5131–5153
- 17 Qiang Y W, Shan C Y. Vehicular emission models of particulate matter and their application in China (in Chinese). *Acta Sci Nat Univ Nankaiensis*, 2013, 46: 41–47 [强彦雯, 单春艳. 机动车 PM_{2.5} 排放模型及其在中国的应用. 南开大学学报(自然科学版), 2013, 46: 41–47]
- 18 Song X Y, Xie S D. Development of vehicular emission inventory in China (in Chinese). *Environ Sci*, 2006, 27: 1041–1045 [宋翔宇, 谢绍东. 中国道路机动车排放清单的建立. 环境科学, 2006, 27: 1041–1045]
- 19 Cheng S Y, Lang J L, Zhou Y, et al. A new monitoring-simulation-source apportionment approach for investigating the vehicular emission contribution to the PM_{2.5} pollution in Beijing, China. *Atmos Environ*, 2013, 79: 308–316
- 20 Wang H K, Fu L X, Zhou Y, et al. Trends in vehicular emissions in China's mega cities from 1995 to 2005. *Environ Pollut*, 2010, 158: 394–400
- 21 Yao Z L, He K B, Wang Q D, et al. Application study of IVE vehicle emission model (in Chinese). *Environ Sci*, 2006, 27: 1928–1933 [姚志良, 贺克斌, 王岐东, 等. IVE 机动车排放模型应用研究. 环境科学, 2006, 27: 1928–1933]
- 22 Wang H K, Chen C H, Huang C, et al. Application of the international vehicle emission model for estimating of vehicle emissions in Shanghai (in Chinese). *Acta Sci Circumst*, 2006, 26: 1–9 [王海鲲, 陈长虹, 黄成, 等. 应用 IVE 模型计算上海市机动车污染物排放. 环境科学学报, 2006, 26: 1–9]
- 23 Guo H, Zhang Q Y, Shi Y, et al. Evaluation of the international vehicle emission (IVE) model with on-road remote sensing measurements. *J Environ Sci*, 2007, 19: 818–826
- 24 Huang C, Chen C H, Li L, et al. Emission inventory of anthropogenic air pollutants and VOC species in the Yangtze River Delta region, China. *Atmos Environ*, 2011, 11: 4105–4120
- 25 Wang Q D, Huo H, Yao Z L, et al. Development of the driving cycle-based mobile emission model (DCMEM) (in Chinese). *Environ Sci*, 2008, 29: 3285–3290 [王岐东, 霍红, 姚志良, 等. 基于工况的城市机动车排放模型 CEMEM 的开发. 环境科学, 2008, 29: 3285–3290]
- 26 He C Y, Wang Q D. Vehicle emission factor determination using CMEM in Beijing (in Chinese). *Res Environ Sci*, 2006, 19: 109–112 [何春玉, 王岐东. 运用 CMEM 模型计算北京市机动车排放因子. 环境科学研究, 2006, 19: 109–112]
- 27 Singer B C, Harley R A. A Fuel-based motor vehicle emission inventory. *J Air Waste Manage*, 1996, 46: 581–593
- 28 Harley R A, Giddings S N, Marr L C. Decadal trends in air pollutant emission from motor vehicles in central California. Technical Report. San Joaquin Valleywide Air Pollution Study Agency and California Air Resources Board. Berkeley: University of California, 2004
- 29 Kean A J, Harley R A, Kendall G R. Effects of vehicle speed and engine load on motor vehicle emissions. *Environ Sci Technol*, 2003, 37: 3739–3746
- 30 Marr L C, Black D R, Harley R A. Formation of photochemical air pollution in central California 1. Development of a revised motor vehicle emission inventory. *J Geophys Res*, 2002, 107, doi: 10.1029/2001JD000689
- 31 Pierson W R, Gertler A W, Robinson N F, et al. Real-world automotive emissions summary of studies in the Fort McHenry and Tuscarora mountaintunnels. *Atmos Environ*, 1996, 30: 2233–2256

- 32 Schifter I, Díaz L, Múgica V, et al. Fuel-based motor vehicle emission inventory for the metropolitan area of Mexico City. *Atmos Environ*, 2005, 39: 931–940
- 33 Tong H, Hung W, Cheung C. On-road motor vehicle emissions and fuel consumption in urban driving conditions. *J Air Waste Manage*, 2000, 50: 543–554
- 34 Lv B L, Zhang B, Bai Y Q. A systematic analysis of $PM_{2.5}$ in Beijing and its sources from 2000 to 2012. *Atmos Environ*, 2016, 124: 98–108
- 35 Bove M C, Cassola B F, Cuccia E, et al. An integrated $PM_{2.5}$ source apportionment study: Positive matrix factorization vs. the chemical transport model CAMx. *Atmos Environ*, 2014, 94: 274–286
- 36 Watson J G, Chow J C. Source characterization of major emission sources in the Imperial and Mexicali Valleys along the US/Mexico border. *Sci Total Environ*, 2001, 276: 33–47
- 37 Ma Z H, Liang Y P, Zhang J, et al. $PM_{2.5}$ profiles of typical sources in Beijing (in Chinese). *Acta Sci Circum*, 2015, 35: 4043–4052 [马召辉, 梁云平, 张健, 等. 北京市典型排放源 $PM_{2.5}$ 成分谱研究. *环境科学学报*, 2015, 35: 4043–4052]
- 38 Wen X X, Cui Z J, Zhang G Q. Analysis of the source apportionment of $PM_{2.5}$ in Jinan (in Chinese). *J Univ Jinan*, 2009, 23: 292–295 [温新欣, 崔兆杰, 张桂芹. 济南市 $PM_{2.5}$ 来源的解析. *济南大学学报*, 2009, 23: 292–295]
- 39 Chen P L, Wang T J, Hu X, et al. A study of chemical mass balance source apportionment of fine particulate matter in Nanjing (in Chinese). *J Nanjing Univ*, 2015, 51: 524–534 [陈璞珑, 王体健, 胡忻, 等. 南京市细颗粒物来源解析研究. *南京大学学报*, 2015, 51: 524–534]
- 40 Zhang D, Zhou Z E, Zhang C, et al. The $PM_{2.5}$ source profile in the Chongqing urban areas (in Chinese). *Environ Ecol Three Gorges*, 2011, 33: 14–18 [张丹, 周志恩, 张灿, 等. 重庆市主城区 $PM_{2.5}$ 污染源成分谱的建立. *三峡环境与生态*, 2011, 33: 14–18]
- 41 Feng X Q. Source characteristics of VOCs and $PM_{2.5}$ for vehicle exhausts in the Pearl River Delta region (in Chinese). Master Dissertation. Guangzhou: South China University of Technology, 2013 [冯小琼. 珠江三角洲机动车 VOCs 和 $PM_{2.5}$ 排放特征谱研究. 硕士学位论文. 广州: 华南理工大学, 2013]
- 42 Cui M, Chen Y J, Tian C G, et al. Chemical composition of $PM_{2.5}$ from two tunnels with different vehicle fleet characteristics. *Sci Total Environ*, 2016, 550: 123–132
- 43 He L Y, Hu M, Zhang Y H, et al. Fine particle emissions from on-road vehicles in the Zhujiang Tunnel, China. *Environ Sci Technol*, 2008, 42: 4461–4466
- 44 Cheng Y, Lee S C, Ho K F, et al. Chemically-speciated on-road $PM_{2.5}$ motor vehicle emission factors in Hong Kong. *Sci Total Environ*, 2010, 408: 1621–1627
- 45 Chiang H L, Huang Y S. Particulate matter emissions from on-road vehicles in a freeway tunnel study. *Atmos Environ*, 2009, 43: 4014–4022
- 46 Schauer J J, Kleeman M J, Cass G R, et al. Measurement of emissions from air pollution sources. 5. C_1 – C_{32} organic compounds from gasoline-powered motor vehicles. *Environ Sci Technol*, 2002, 36: 1169–1180
- 47 Adachi K, Tainosho Y. Characterization of heavy metal particles embedded in tire dust. *Environ Int*, 2004, 30: 1009–1017
- 48 Hwang I J, Hopke P K. Comparison of source apportionment of $PM_{2.5}$ using PMF2 and EPA PMF version 2. *Asian J Atmos Environ*, 2011, 5: 86–96
- 49 Kulshrestha A, Massey D D, Masih J, et al. Source characterization of trace elements in indoor environments at urban, rural and roadside sites in a semi arid region of India. *Aerosol Air Qual Res*, 2014, 14: 1738–1751
- 50 Sahu M, Hu S H, Ryan P H, et al. Chemical compositions and source identification of $PM_{2.5}$ aerosols for estimation of a diesel source surrogate. *Sci Total Environ*, 2011, 409: 2642–2651
- 51 Dallmann T R, Onasch T B, Kirchstetter T W, et al. Characterization of particulate matter emissions from on-road gasoline and diesel vehicles using a soot particle aerosol mass spectrometer. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14: 7585–7599
- 52 Ålander T, Antikainen E, Raunemaa T, et al. Particle emissions from a small two-stroke engine: Effects of fuel, lubricating oil, and exhaust aftertreatment on particle characteristics. *Aerosol Sci Technol*, 2005, 39: 151–161
- 53 Watson J G, Chow J C, Houck J E. $PM_{2.5}$ chemical source profiles for vehicle exhaust, vegetative burning, geological material, and coal burning in Northwestern Colorado during 1995. *Chemosphere*, 2001, 43: 1141–1151
- 54 Lough G C, Schauer J J, Park J S, et al. Emissions of metals associated with motor vehicle roadways. *Environ Sci Technol*, 2005, 39: 826–836
- 55 Song Y, Zhang Y H, Xie S H, et al. Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing by positive matrix factorization. *Atmos Environ*, 2006, 40: 1526–1537
- 56 Zhou L, Hopke P K, Paatero P, et al. Advanced factor analysis for multiple time resolution aerosol composition data. *Atmos Environ*, 2004, 38: 4909–4920

- 57 Dahl R. Car culture accelerates. *Environ Health Persp*, 2005, 113: A238–A245
- 58 Lewis C W, Norris G A, Conner T L, et al. Source apportionment of phoenix PM_{2.5} aerosol with the Unmix receptor model. *J Air Waste Manage*, 2003, 53: 325–338
- 59 Cass G R. Organic molecular tracers for particulate air pollution sources. *Trac-Trend Anal Chem*, 1998, 17: 356–366
- 60 Omar M J, Abs M R B, Ketuly K A, et al. Heavy molecular-weight organic compounds in the atmosphere: The hopanes. *Malaysian J Anal Sci*, 2001, 7: 203–208
- 61 Schauer J J, Rogge W, Hildemann L M, et al. Source apportionment of airborne particulate matter using organic compounds as tracers. *Atmos Environ*, 1996, 30: 3837–3855
- 62 Ke L, Liu W, Wang Y H, et al. Comparison of PM_{2.5} source apportionment using positive matrix factorization and molecular marker-based chemical mass balance. *Sci Total Environ*, 2008, 394: 290–302
- 63 Larsen R H, Baker J E. Source apportionment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere: A comparison of three methods. *Environ Sci Technol*, 2003, 37: 1873–1881
- 64 Rogge W F, Hildemann L M, Mazurek M A, et al. Sources of fine organic aerosol. 9. Pine, oak, synthetic log combustion in residential fireplaces. *Environ Sci Technol*, 1998, 21: 13–22
- 65 Fine P M, Cass G R, Simoneit B R T. Chemical characterization of fine particle emissions from fireplace combustion of woods grown in the northeastern United States. *Environ Sci Technol*, 2001, 35: 2665–2675
- 66 Bostrom C E, Gerde P, Hanberg A, et al. Cancer risk assessment, indicators, and guidelines for polycyclic aromatic hydrocarbons in the ambient air. *Environ Health Persp*, 2002, 110: 451–488
- 67 Pant P, Harrison R M. Estimation of the contribution of road traffic emissions to particulate matter concentrations from field measurements: A review. *Atmos Environ*, 2013, 77: 78–97
- 68 Watson J G, Chow J C, Lowenthal D H, et al. Differences in the carbon composition of source profiles for diesel- and gasoline-powered vehicles. *Atmos Environ*, 1994, 28: 2493–2505
- 69 Schauer J J, Cass G R. Source apportionment of wintertime gas-phase and particle-phase air pollutants using organic compounds as tracers. *Environ Sci Technol*, 2000, 34: 1821–1832
- 70 Simoneit B R T. Organic matter of the troposphere-III characterization and sources of petroleum and pyrogenic residues in aerosols over the western United States. *Atmos Environ*, 1984, 18: 51–67
- 71 Oras D R, Simoneit B R T. Identification and emission factors of molecular tracers in organic aerosols from biomass burning Part 1. Temperate climate conifers. *Appl Geochem*, 2001, 16: 1513–1544
- 72 Zhang Y X. Study on speciation of particulate organic matter from combustion sources (in Chinese). Doctor Dissertation. Beijing: Peking University, 2006 [张元勋. 燃烧源排放细颗粒物有机物的化学组分研究. 博士学位论文. 北京: 北京大学, 2006]
- 73 Yu J Z, Huang X H H, Ho S S H, et al. Nonpolar organic compounds in fine particles: Quantification by thermal desorption-GC/MS and evidence for their significant oxidation in ambient aerosols in Hong Kong. *Anal Bioanal Chem*, 2011, 401: 3125–3139
- 74 Zheng M, Fang M. Correlations between organic and inorganic species in atmospheric aerosols. *Environ Sci Technol*, 2000, 34: 2721–2726
- 75 Fujita E M, Campbell D E, Aronoff W P, et al. Evaluations of the chemical mass balance method for determining contributions of gasoline and diesel exhaust to ambient carbonaceous aerosols. *J Air Waste Manage*, 2007, 57: 721–740
- 76 Zheng M, Salmon L G, Schauer J J, et al. Seasonal trends in PM_{2.5} source contributions in Beijing, China. *Atmos Environ*, 2005, 39: 3967–3976
- 77 Russell A, Dennis R. NARSTO critical review of photochemical models and modeling. *Atmos Environ*, 2000, 34: 2283–2324
- 78 Seigner C. Current status of air quality modeling for particulate matter. *J Air Waste Manage*, 2001, 51: 1508–1821
- 79 Pirovano G, Balzarini A, Bessagnet B, et al. Investigating impacts of chemistry and transport model formulation on model performance at European Scale. *Atmos Environ*, 2012, 53: 93–109
- 80 Burr M J, Zhang Y. Source apportionment of fine particulate matter over the Eastern U.S. Part I. Source sensitivity simulations using CMAQ with the Brute Force Method. *Atmos Pollut Res*, 2011, 2: 300–317
- 81 Wagstrom K M, Pandis S N, Yarwood G, et al. Development and application of a computationally efficient particulate matter apportionment algorithm in a three-dimensional chemical transport model. *Atmos Environ*, 2008, 42: 5650–5659
- 82 Wang Z S, Chien C J, Tonnesen G S. Development of a tagged species source apportionment algorithm to characterize three-dimensional transport and transformation of precursors and secondary pollutants. *J Geophys Res Atmos*, 2009, 114: D21206
- 83 Marmur M, Park S K, Mulholland J A, et al. Source apportionment of PM_{2.5} in the southeastern United States using receptor and emission-based models: Conceptual differences and implications for time-series health studies. *Atmos Environ*, 2006, 40: 2533–2551
- 84 Wu D W, Fung J C H, Yao T, et al. A study of control policy in the Pearl River Delta region by using the particulate matter source apportionment method. *Atmos Environ*, 2013, 76: 147–161

- 85 Kwok R H F, Napelenok S L, Baker K R. Implementation and evaluation of $PM_{2.5}$ source contribution analysis in a photochemical model. *Atmos Environ*, 2013, 80: 398–407
- 86 Held T, Ying Q, Kleeman M, et al. A comparison of the UCD/CIT air quality model and the CMB source-receptor model for primary airborne particulate matter. *Atmos Environ*, 2005, 39: 2281–2297
- 87 Wang Y J, Li L, Chen C H, et al. Source apportionment of fine particulate matter during autumn haze episodes in Shanghai, China. *J Geophys Res*, 2014, 119: 1903–1914
- 88 Zhou Y, Cheng S Y, Liu L, et al. A coupled MM5-CMAQ modeling system for assessing effects of restriction measures on PM_{10} pollution in Olympic city of Beijing, China. *J Environ Inform*, 2012, 19: 120–127
- 89 Cui H Y, Chen W H, Dai W, et al. Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Guangzhou combining observation data analysis and chemical transport model simulation. *Atmos Environ*, 2015, 116: 262–271
- 90 Hu Y, Balachandran S, Pachon J E, et al. Fine particulate matter source apportionment using a hybrid chemical transport and receptor model approach. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14: 5415–5431
- 91 Ivey C E, Holmes H A, Hu Y T, et al. Development of $PM_{2.5}$ source impact spatial fields using a hybrid source apportionment air quality model. *Geosci Model Dev*, 2015, 8: 2153–2165
- 92 Harrison R M. Airborne particulate matter from road traffic: Current status of knowledge and research challenges paper presented at the ETTO09. In: 17th Transport and Air Pollution Symposium 3rd Environment and Transport Symposium. 2009
- 93 Harrison R M, Deacon A R, Jones M R. Sources and processes affecting concentrations of PM_{10} and $PM_{2.5}$ particulate matter in Birmingham (UK). *Atmos Environ*, 1997, 31: 4103–4117
- 94 Fuller G W, Carslaw D C, Lodge H W. An empirical approach for the prediction of daily mean PM_{10} concentrations. *Atmos Environ*, 2002, 36: 1431–1441
- 95 Lim L H, Harrison R M, Harrad S. The contribution of traffic to atmospheric concentrations of polyaromatic hydrocarbons. *Environ Sci Technol*, 1999, 33: 3538–3542
- 96 Barmpadimos I, Nufer M, Oderbolz D C, et al. The weekly cycle of ambient concentrations and traffic emissions of coarse ($PM_{10}/PM_{2.5}$) atmospheric particles. *Atmos Environ*, 2011, 45: 4580–4590
- 97 Karagulian F, Belis C A, Dora C F C, et al. Contributions to cities' ambient particulate matter (PM): A systematic review of local source contributions at global level. *Atmos Environ*, 2015, 120: 475–483
- 98 Chen Z L, Ge S, Zhang J. Measurement and analysis for atmospheric aerosol particulates in Beijing (in Chinese). *Res Environ Sci*, 1994, 7: 1–9 [陈宗良, 葛苏, 张晶. 北京大气气溶胶小颗粒的测量与解析. 环境科学研究, 1994, 7: 1–9]
- 99 He K, Zhang Q, Ma Y, et al. Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing. *Fuel Chem Division Preprints*, 2002, 47: 677–678
- 100 Song Y, Xie S D, Zhang Y H, et al. Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing using principal component analysis/absolute principal component scores and UNMIX. *Sci Total Environ*, 2006, 372: 278–286
- 101 Song Y, Tang X Y, Xie S D, et al. Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing in 2004. *J Hazard Mater*, 2007, 146: 124–130
- 102 Zhang W, Guo J H, Sun Y L, et al. Source apportionment for urban PM_{10} and $PM_{2.5}$ in the Beijing area. *Chin Sci Bull*, 2007, 52: 608–615
- 103 Sun Y L, Zhuang G S, Wang Y, et al. The air-borne particulate pollution in Beijing-concentration, composition, distribution and sources. *Atmos Environ*, 2004, 38: 5991–6004
- 104 Wang H L, Zhuang Y H, Wang Y, et al. Long-term monitoring and source apportionment of $PM_{2.5}/PM_{10}$ in Beijing, China. *J Environ Sci*, 2008, 20: 1323–1327
- 105 Wang Q, Shao M, Zhang Y H, et al. Source apportionment of fine organic aerosols in Beijing. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 8573–8585
- 106 Zhang R, Jing J, Tao J, et al. Chemical characterization and source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing: Seasonal perspective. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13: 7053–7074
- 107 Yu L D, Wang G F, Zhang R J, et al. Characterization and source apportionment of $PM_{2.5}$ in an urban environment in Beijing. *Aerosol Air Qual Res*, 2013, 13: 574–583
- 108 Jin X C, Zhang G Y, Xiao C J, et al. Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Xinzhen, Beijing using PIXE and XRF (in Chinese). *Atomic Energy Sci Technol*, 2014, 48: 1325–1330 [金象春, 张贵英, 肖才锦, 等. PIXE和XRF用于北京新镇地区 $PM_{2.5}$ 源解析研究. 原子能科学技术, 2014, 48: 1325–1330]
- 109 Yang Y Y, Li J X, Liang Y P, et al. Source apportionment of $PM_{2.5}$ in Beijing by the chemical mass balance (in Chinese). *Acta Sci Circum*, 2015, 35: 2693–2700 [杨妍妍, 李金香, 梁云平, 等. 应用受体模型(CMB)对北京市大气 $PM_{2.5}$ 来源的解析研究. 环境科学学报, 2015, 35: 2693–2700]
- 110 Wang Q, Zhang D W, Liu B X, et al. Spatial and temporal variation of ambient $PM_{2.5}$ source contributions using positive matrix factorization (in Chinese). *China Environ Sci*, 2015, 35: 2917–2924 [王琴, 张大伟, 刘保献, 等. 基于PMF模型的北京市 $PM_{2.5}$ 来源的时空分布特征. 中国环境科学, 2015, 35: 2917–2924]

- 111 Zikova N, Wang Y G, Yang F M, et al. On the source contribution to Beijing PM_{2.5} concentrations. *Atmos Environ*, 2016, 134: 84–95
- 112 Yang H N, Chen J, Wen J J, et al. Composition and sources of PM_{2.5} around the heating periods of 2013 and 2014 in Beijing: Implications for efficient mitigation measures. *Atmos Environ*, 2016, 124: 378–386
- 113 Huang R J, Zhang Y L, Bozzetti C, et al. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China. *Nature*, 2014, 514: 218–222
- 114 Li X, Zhang Q, Zhang Y, et al. Source contributions of urban PM_{2.5} in the Beijing-Tianjin-Hebei region: Changes between 2006 and 2013 and relative impacts of emissions and meteorology. *Atmos Environ*, 2015, 123: 229–239
- 115 Gao J, Peng X, Chen G, et al. Insights into the chemical characterization and sources of PM_{2.5} in Beijing at a 1-h time resolution. *Sci Total Environ*, 2016, 542: 162–171
- 116 Yang L X, Cheng S H, Wang X F, et al. Source identification and health impact of PM_{2.5} in a heavily polluted urban atmosphere in China. *Atmos Environ*, 2013, 75: 265–269
- 117 Wang P, Cao J J, Shen Z X, et al. Spatial and seasonal variations of PM_{2.5} mass and species during 2010 in Xi'an, China. *Sci Total Environ*, 2015, 508: 477–487
- 118 Wang S R, Yu Y Y, Wang Q G, et al. Source apportionment of PM_{2.5} in Nanjing by PMF (in Chinese). *China Environ Sci*, 2015, 35: 3535–3542 [王苏蓉, 喻义勇, 王勤耕, 等. 基于 PMF 模式的南京市大气细颗粒物源解析. *中国环境科学*, 2015, 35: 3535–3542]
- 119 Huang H J, Liu H N, Jiang W M, et al. Physical and chemical characteristics and source apportionment of PM_{2.5} in Nanjing (in Chinese). *Clim Environ Res*, 2006, 11: 713–722 [黄辉军, 刘红年, 蒋维楣, 等. 南京市 PM_{2.5} 物理化学特性及来源解析. *气候与环境研究*, 2006, 11: 713–722]
- 120 Wang X H, Bi X H, Sheng G Y, et al. Chemical composition and sources of PM₁₀ and PM_{2.5} aerosols in Guangzhou, China. *Environ Monit Assess*, 2006, 119: 425–439
- 121 Huang X F, Yun H, Gong Z H, et al. Source apportionment and secondary organic aerosol estimation of PM_{2.5} in an urban atmosphere in China. *Sci China Earth Sci*, 2014, 57: 1352–1362
- 122 Huang X H H, Bian Q J, Louie P K K, et al. Contributions of vehicular carbonaceous aerosols to PM_{2.5} in a roadside environment in Hong Kong. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14: 9279–9293
- 123 Guo H, Ding A J, So K L, et al. Receptor modeling of source apportionment of Hong Kong aerosols and the implication of urban and regional contribution. *Atmos Environ*, 2009, 43: 1159–1169
- 124 Wang Z S, Wu T, Shi G L, et al. Potential source analysis for PM₁₀ and PM_{2.5} in autumn in a northern city in China. *Aerosol Air Qual Res*, 2012, 12: 39–48
- 125 Zheng J Y, Zhang L J, Che W W, et al. A highly resolved temporal and spatial air pollutant emission inventory for the Pearl River Delta region, China and its uncertainty assessment. *Atmos Environ*, 2009, 43: 5112–5122
- 126 Zhao B, Wang S X, Wang J D, et al. Impact of national NO_x and SO₂ control policies on particulate matter pollution in China. *Atmos Environ*, 2013, 77: 453–463
- 127 Qiao Y Z, Wang H L, Huang C, et al. Source profile and chemical reactivity of volatile organic compounds from vehicle exhaust (in Chinese). *Environ Sci*, 2012, 33: 1071–1079 [乔月珍, 王红丽, 黄成, 等. 机动车尾气排放 VOCs 源成分谱及其大气反应活性. *环境科学*, 2012, 33: 1071–1079]
- 128 Liu F, Zhu Y G, Zhao Y. Contribution of motor vehicle emissions to surface ozone in urban areas: A case study in Beijing. *Int J Sust Dev World*, 2008, 15: 345–349
- 129 Deng W, Hu Q H, Liu T Y, et al. Chamber simulation on the formation of secondary organic aerosols (SOA) from diesel vehicle exhaust in China. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2016, 1–46, doi: 10.5194/acp-2016-50
- 130 Gentner D R, Isaacman G, Worton D R, et al. Elucidating secondary organic aerosol from diesel and gasoline vehicles through detailed characterization of organic carbon emissions. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2012, 109: 18318–18323
- 131 Bahreini R, Middlebrook A M, de Gouw J A, et al. Gasoline emissions dominate over diesel in formation of secondary organic aerosol mass. *Geophys Res Lett*, 2012, 39: L06805, doi: 10.1029/2011GL050718
- 132 Nordin E Z, Eriksson A C, Roldin P, et al. Secondary organic aerosol formation from idling gasoline passenger vehicle emissions investigated in a smog chamber. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13: 6101–6116
- 133 Liu T, Wang X, Deng W, et al. Secondary organic aerosol formation from photochemical aging of light-duty gasoline vehicle exhausts in a smog chamber. *Atmos Chem Phys*, 2015, 15: 9049–9062
- 134 Gordon T D, Preston A A, May A A, et al. Secondary organic aerosol formation exceeds primary particulate matter emissions for light-duty gasoline vehicles. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14: 4661–4678
- 135 Gordon T D, Tkacik D S, Presto A A, et al. Primary gas- and particle-phase emissions and secondary organic aerosol production from gasoline and diesel off-road engines. *Environ Sci Technol Lett*, 2013, 47: 14137–14146

- 136 Platt S M, Haddad I E I, Zardini A A, et al. Secondary organic aerosol formation from gasoline vehicle emissions in a new mobile environmental reaction chamber. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13: 9141–9158
- 137 Lambe A T, Onasch T B, Croasdale D R, et al. Transitions from functionalization to fragmentation reactions of laboratory secondary organic aerosol (SOA) generated from the OH oxidation of alkane precursors. *Environ Sci Technol*, 2012, 46: 5430–5437
- 138 Tkacik D S, Lambe A T, Jathar S, et al. Secondary organic aerosol formation from in-use motor vehicle emissions using a potential aerosol mass reactor. *Environ Sci Technol*, 2014, 48: 11235–11242
- 139 Amato F, Cassee F R, Denier van der Gon H A C, et al. Urban air quality: The challenge of traffic non-exhaust emissions. *J Hazard Mater*, 2014, 275: 31–36
- 140 Grieshop A P, Lipsky E M, Pekney N J, et al. Fineparticle emission factors from vehicles in a highway tunnel: Effects of fleet composition and season. *Atmos Environ*, 2006, 40: 287–298
- 141 Duong T T, Lee B K. Determining contamination level of heavy metals in road dust from busy traffic areas with different characteristics. *J Environ Manage*, 2011, 92: 554–562
- 142 Canepari S, Perrino C, Olivieri F, et al. Characterisation of the traffic sources of PM through size-segregated sampling, sequential leaching and ICP analysis. *Atmos Environ*, 2008, 42: 8161–8175
- 143 Gietl J K, Lawrence R, Thorpe A J, et al. Identification of brakewear particles and derivation of a quantitative tracer for brake dust at a major road. *Atmos Environ*, 2010, 44: 141–146
- 144 Yan B, Zheng M, Hu Y, et al. Roadside, urban, and rural comparison of primary and secondary organic molecular markers in ambient PM_{2.5}. *Environ Sci Technol*, 2009, 43: 4287–4293
- 145 Hao M T, Wei L Y, Li Y, et al. Comparative study on particulate matters chemical source profile of vehicle exhaust (in Chinese). *Adm Tech Environ Mon*, 2012, 24: 23–26 [郝明途, 魏立岩, 李燕, 等. 机动车排放颗粒物成分谱对比研究. 环境监测管理技术, 2012, 24: 23–26]

补充材料

表 S1 不同研究中机动车源 PM_{2.5} 成分谱的建立方法

表 S2 国内外机动车源排放细颗粒物化学成分谱

本文以上补充材料见网络版 csb.scichina.com. 补充材料为作者提供的原始数据, 作者对其学术质量和内容负责.

Summary for “机动车源对细颗粒物的贡献估算方法综述”

A review of methods for quantifying contribution of vehicular emission to fine particulate matter

YAN CaiQing¹ & ZHENG Mei^{1,2*}

¹ State Key Joint Laboratory of Environmental Simulation and Pollution Control, College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871, China;

² Beijing Innovation Center for Engineering Science and Advanced Technology, Peking University, Beijing 100871, China

* Corresponding author, E-mail: mzheng@pku.edu.cn

China is facing serious haze problems due to the levels of fine particulate matter (PM_{2.5}). Therefore, source apportionment of PM_{2.5} is required for formulating effective air pollution control strategies. The fast increase of the vehicle population, especially in the megacities of China in recent years, makes vehicular emissions one of the most important sources of PM_{2.5} and has led to it receiving great attention and concern. There is an urgent need to accurately and quantitatively estimate the contribution of vehicular emissions. A growing number of studies have been conducted for source apportionment of PM_{2.5} in China and report the contribution from vehicular emissions using different methods. However, it is still a big challenge as to how vehicular emissions can be accurately quantified.

This study summarizes the various methods that have been used to identify and quantify the vehicular emissions contribution to PM_{2.5} in published literature by international and domestic scientists, lists advantages and disadvantages of each method, and proposes ways to reduce its uncertainty. In general, methods for estimating vehicular emission contributions in previous studies include emission inventory based methods, chemical transport models, receptor models, hybrid models etc. The receptor model based method is the most commonly applied method in China. Source profiles of vehicular emissions based on source testing in China, and organic and inorganic tracers used for diagnosing vehicular emissions, which are two key factors for quantifying vehicular exhaust in receptor models, are also summarized here.

Contributions of vehicular emissions to ambient PM_{2.5} reported in different areas in China, especially Beijing, are listed and compared. It can be seen that the contribution of vehicular emissions to PM_{2.5} varies significantly with the study area, year of the study, as well as the methods in use. The vehicular emissions contribution to PM_{2.5} in Beijing is reported to be in the range of 4%–36% based on previous studies from 1989 to 2014, primarily using the receptor model method.

This work also points out challenges in the current studies, provides suggestions in order to better quantify the contribution from vehicular emissions in China, and proposes ways to optimize the methods. For example, besides primary emissions from vehicular exhaust, quantifying secondary organic and inorganic aerosols formed from gaseous and particulate precursors from vehicular emissions, as well as traffic related sources (e. g., resuspended road dust) is also a big concern and challenge for accurately estimating vehicular emissions. In addition, there is still a pressing need to develop more detailed and comprehensive chemical profiles and an emissions inventory of vehicular emissions, with standardized sampling and analytical protocols in the future. An improved emission inventory with high time, spatial and species resolutions should be established. A hybrid model, which integrates emission inventory, chemical transport model, receptor model and observational data is a promising direction to provide an accurate estimate of vehicular emissions in the future. In addition, there is a need to develop a system to verify the results obtained from a source apportionment study.

fine particulate matter, vehicular emission, quantification method, problem and challenge

doi: 10.1360/N972016-00719