

《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》

编制说明

标准编制组

2026 年 9 月

目 录

一、项目背景	1
二、项目立项目的与意义	2
三、工作过程	4
四、国内外相关研究	5
五、文件内容结构	8
六、主要条文说明	9
七、关于标准中道路沉积颗粒物样品采集方法的说明	10
八、关于标准中重金属来源样品采集方法的说明	12
九、关于方法准确性的说明	13
十、应用案例	30
附表	41
参考文献	42

一、项目背景

随着我国经济社会的快速发展，城市化进程不断加速，城市路网规模与机动车保有量持续攀升。截至 2024 年 6 月，全国机动车保有量已达 4.4 亿辆，96 个城市的汽车保有量超过百万辆。在车流量激增、交通日益拥堵的背景下，大量污染物（尤其是重金属）在城市道路路面上持续累积，并主要吸附于道路沉积颗粒物之中，对城市环境构成了复合型威胁。

道路沉积颗粒物重金属污染不仅通过扬尘形式恶化大气环境质量，更对宝贵的水资源安全构成直接挑战。在降雨冲刷下，富含重金属的道路沉积颗粒物随地表径流进入城市水系，最终排入受纳水体，对水生生态系统造成严重危害。这一污染路径与我国许多城市面临的水资源短缺问题形成了尖锐矛盾。自 2014 年起，我国大力推行海绵城市建设，旨在通过雨水的就地消纳与利用来缓解水资源压力与洪涝风险。城市道路作为最主要的不透水下垫面，其雨水径流的收集与回用是实现这一目标的关键环节。然而，道路沉积颗粒物所携带的重金属等污染物严重影响了径流水质，直接威胁雨水回用的生态安全与公共卫生安全，使得面源污染管控与水资源化利用的目标陷入两难境地。

面对这一严峻挑战，环境监管机构对精准溯源与有效管控提出了明确要求。然而，当前在道路沉积颗粒物上的污染物，尤其是重金属的精准溯源技术上存在明显短板，定量化的来源解析技术尤为缺乏，导致监管工作缺乏针对性的技术依据和统一的评估标准。为彻底摸清城市道路沉积颗粒物中重金属的主要来源，满足精细化环境监管的迫切需求，科学指导广东省乃至全国的道路雨水径流污染管控和道路扬尘防治工作，2024 年 10 月，由深圳大学牵头申报了本技术规范。该项目于 2024 年 12 月经广东省环境科学学会正式批准立项（立项文

号：粤环学函[2024]55号）。

本标准的核心在于引入并规范“随机方法与元素指纹法”相结合的溯源技术。该技术能够科学量化解析结果的不确定性，精准识别汽车源类、道路材料类、周边土壤等各类污染源的贡献率，从而为环境监管部门制定“一源一策”的精细化管控方案、评估污染治理效果以及落实排污责任提供坚实的科学依据和统一的方法支撑。本规范的制定与实施，将有效填补当前监管工作中定量溯源技术的空白，为依法、科学、精准治污提供关键技术保障，对提升环境监管效能、实现城市环境的持续改善具有重要意义。

二、项目立项目的与意义

2.1 面向国家战略与精准治污的要求

近年来，国家持续加强重金属污染防治。2025年7月，经国务院同意，生态环境部、国家发展改革委、科技部等九部门联合印发了《重金属环境安全隐患排查整治行动方案（2025—2030年）》，明确了未来几年重金属污染治理的路线图和时间表。该《方案》强调按照“查、评、改、治、防、管”的思路开展工作，其中首要环节就是“查清底数”，要求“摸准摸细重金属污染源数量和分布情况，编制污染源排查清单”。本规范所规定的随机方法和元素指纹法，正是为了精准完成“查清底数”这一关键任务，直接支撑了国家行动方案的落实。

2.2 实现有效水环境管理的重要保障

道路沉积颗粒物是城市水环境面源污染的重要“源库”，本标准通过精准溯源，为水环境管理提供了关键抓手。《重金属环境安全隐患排查整治行动方案（2025—2030年）》将Pb、Cd、Cr等列为重点管控污染物，这些物质也正是道路沉积颗粒物中常见且易随径流迁移的

成分。通过解析其来源，可以从根本上识别并控制进入水体的重金属污染源，有效支撑地表水、地下水等水环境的保护工作。另外，本标准有助于保障海绵城市建设中雨水回用的安全。通过源头解析道路沉积颗粒物中的重金属，可以为道路雨水径流收集与回用的风险评估和精准处理提供科学依据，促进水资源的安全利用。

2.3 对于大气污染防治具有重要意义

道路扬尘是环境空气中颗粒物（PM₁₀、PM_{2.5}）的重要来源。传统的扬尘管控多依赖于普适性的洒水与清扫，缺乏针对性，效率有待提升。本标准通过元素指纹法建立污染源成分谱，能够清晰区分并量化周边土壤尘、路面磨损尘、机动车源尘等不同来源对道路沉积颗粒物的贡献率。这一技术使得环境管理部门能够从“一刀切”的粗放式管理，转向“一源一策”的精准治理。这种基于溯源结果的差异化管控，能以最小的经济成本实现最优的抑尘效果，显著提升大气污染治理的效能，助力“蓝天保卫战”目标的实现。

2.4 满足监管部门的核心需求

当前，环境监管部门在对道路扬尘和径流污染进行执法与管理时，普遍面临“溯源难、定责难”的困境。本标准的出台，为监管部门提供了一套权威、统一的执法依据和技术“标尺”，使其能够准确界定污染责任主体，评估治理成效，并依法实施差异化、精细化的管控措施，极大地提升了环境监管的权威性、科学性和执行力。

2.5 满足用户群体的社会需求

本标准的直接用户群体包括环境监测机构、科研院所、环保企业及政府管理部门。他们亟需一项稳定、可靠、可重复的标准化方法来解决实际问题。本标准具有极高的使用频率和推广价值。在单个城市

范围内，即可应用于常态化环境监测、重点区域排查、建设项目环境影响评估、污染事件调查等多个高频场景。在更广范围内，其方法普适，可复制性强，能够迅速在全国各省市推广，形成规模效益，为整个环保产业的技术升级和服务拓展提供核心动力，社会、环境和经济效益显著。

三、工作过程

2024 年 4 月，收到《关于征集 2024 年度第一批广东省环境科学学会标准项目的通知》（粤环学[2024]3 号），征集生态环境领域产排、技术、管理和工作标准规范及其相关内容。

2024 年 5-9 月，标准牵头单位深圳大学组织开展基于随机方法和元素指纹法的城市道路沉积颗粒物重金属溯源技术规范立项前期研究工作，收集整理了有关污染物溯源相关技术规范、参考文献、以及国内外相关领域的环保法规和标准等资料。

2024 年 10 月初，编制完成《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》标准立项申报材料，并向广东省环境科学学会报送立项。

2024 年 11 月 20 日，广东省环境科学学会在广州市组织召开团体标准“道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法”立项论证会。专家组听取了标准起草单位的汇报，审阅了相关资料，经认真讨论，给出了同意立项的结论。2024 年 12 月 10 日广东省环境科学学会印发了“广东省环境科学学会关于《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》等 3 项团体标准项目立项的通知”（粤环学函[2024]55 号），《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》正式立项。

2024 年 11~2026 年 8 月，组织召开多次讨论会，就道路沉积颗

颗粒物采样方法、溯源技术模型选取、技术参数取值等关键问题进行咨询讨论，形成标准征求意见稿初稿和编制说明。

2026年9月1日，广东省环境科学学会组织召开《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》（征求意见稿初稿）专家咨询会。

2026年9月，结合专家咨询意见和《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》（征求意见稿）新要求，修改完善形成《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》（征求意见稿）。

2026年XX月~2026年XX月，对《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》（征求意见稿）广泛征求生态环境局主管部门、技术单位及行业单位意见，共征求XX家单位意见，其中X家单位反馈意见XX条，其他单位无意见。具体修改情况见附表。

2026年XX月，经修改完善形成《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》（评审稿）。

2026年XX月XX日，广东省环境科学学会组织召开《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》专家审查会，本标准顺利通过审查。

四、国内外相关研究

在道路沉积颗粒物所含的有毒污染物中，重金属因其对人类健康和生态系统的显著威胁而备受关注^[1]。以Pb、Zn、Cr、Cu、Ni和Mn为例，这些金属在环境中具有不可生物降解的特性，更易引发环境风险^[2]。它们可能在人体内累积，影响中枢神经系统，或富集于血液循环系统导致器官功能障碍，甚至作为其他疾病的协同因子引发DNA

损伤，产生致突变、致畸和致癌效应^[3,4]。具体而言，Pb 可能导致智力障碍、贫血和生殖系统异常^[5]；Zn 会引起免疫应答功能受损^[6]；Cr 则具有强毒性和高度致癌性^[7]。有研究分析了中国车河矿区的道路沉积颗粒物中 As、Cd、Co、Cr、Cu、Mn、Ni、Pb、Sb 和 Zn 重金属风险，潜在生态风险指数（PI）显示 Cd、Sb、As、Zn 和 Pb 污染程度较高，内梅罗综合风险指数（NIRI）和 RI 的平均值分别为最高风险限值的 104.09 倍和 86.49 倍，属于极高生态风险^[8]；太原市冬季道路沉积颗粒物中潜在有害元素（As、Cd、Pb、Ni、Cr、Cu 和 Zn）的生态风险属于中度风险等^[9]。基于以上对道路沉积颗粒物中重金属风险评价的研究现状可知，道路沉积颗粒物重金属生态风险较高，尤其是在交通繁忙、工业发达的城市区域。因此，与道路沉积颗粒物重金属相关的研究引起了更多学者的关注。例如，有研究通过采集吉林省内 5 条不同高速公路上的道路沉积颗粒物样品，发现所有高速公路上的道路沉积颗粒物含有比背景土壤更多的重金属且 Cd、Cr、Cu、Ni、Pb 和 Zn 的浓度随交通量的增加而增加^[10]；研究发现北京市在夏、秋两季金属的浓度和污染水平是相似的，但冬季 Hg、Ni、Pb 和 Zn 的平均浓度略高于夏季，此外，除 As 和 Fe 外，大多数金属的平均浓度均高于相应的土壤背景值^[11]；珠江三角洲地区的道路沉积颗粒物重金属研究发现 As、Cd、Cr、Cu、Pb、Hg、Ni 和 Zn 的平均浓度超过了其土壤背景值，且在研究区域内，工业区的 Cr、Cu、Ni 和 Zn 污染以及商业区的 Cd 和 Hg 污染显著高于其他功能区^[12]。这些研究表明，道路沉积颗粒物中的重金属污染不仅普遍存在于城市环境中，而且高浓度的重金属对生态环境和人类健康构成了潜在威胁。

道路沉积颗粒物是城市环境中污染物运输转移的关键载体，是城市地表径流污染的关键来源之一^[13]。准确解析道路沉积颗粒物中重金

属的来源,对于制定有效的污染控制策略和环境保护措施具有重要意义,因此国内外不少学者对道路沉积颗粒物重金属开展了源解析的工作。受体模型在道路沉积颗粒物重金属污染源解析工作上起到了重要作用。有研究使用正交矩阵因子分解法(PMF)、地理信息系统(GIS)分析了道路沉积颗粒物的重金属来源(类型、比例、空间强度)和不确定性信息^[14];有学者通过主成分分析(PCA)、PMF和莫兰指数(Moran)组合,研究了典型工业区四种粒径等级的道路沉积颗粒物中Cr、Mn、Ni、Cu、Zn、Cd和Pb的季节性分布和来源分配,结果表明:冬季至夏季,<45 μm级粉尘占道路沉积颗粒物总质量的比例由6.72%增加到15.92%,63~150 μm颗粒的比例由31.13%下降到21.76%,重金属在夏季相对富集在63~150 μm颗粒中,而冬季在<45 μm颗粒中^[15];还有学者使用PMF法在天津采集的道路沉积颗粒物中的Fe、Mn、Pb、Zn、Cr和Cu进行来源解析和风险评估,发现交通非尾气排放在春季(45%)和夏季(36%)的致癌风险中占主导地位^[16];也有学者使用Unmix模型解析道路沉积颗粒物中水溶性成分中重金属的主要来源,得到五种类型的源和各自的贡献率:源1(天然来源,10%)、源2(铜矿尾矿污染,19%)、源3(农业活动,22%)、源4(空气污染,15%)、源5(工业活动,34%)^[17]。然而,这些传统的受体模型,如美国环保署(USEPA)开发的PMF、Unmix和化学质量平衡法(CMB)等方法最初被开发应用于大气污染研究,但是道路污染物的累积和来源特征与大气污染有非常大的区别。与大气污染相比,城市道路污染物来源的种类比较固定,污染源主要集中在机动车辆的排放和磨损以及道路磨损方面,不同研究区域的污染源种类的差异较小^[18]。与此同时,污染物的累积过程相对简单,各污染物之间较少发生二次反应生成新的污染物。因此,USEPA开发的针对大气污

染物溯源的方法针对城市道路污染物的溯源准确性偏低。

此外，目前国内更多的溯源研究针对的环境介质也主要是大气环境，而针对城市道路上累积的污染物溯源尚未深入开展。其主要原因是城市道路污染物的采集较为繁琐，在采集样品数量上有非常大的局限性。更重要的是，城市道路污染物时空异质性较大，不同时间，不同交通特征，不同的路面铺装材料，不同的周边功能区环境和采样点的污染物含量往往具有较大的随机性和不确定性，获得的数据通常也有数个数量级的差异。因此，已有的污染物溯源方法和软件并不适用于城市道路污染物的溯源。目前，由于城市道路污染复杂的累积特征，已有的方法仅能获得定性或者准确性较低的定量溯源结果，例如，当污染源的源成分谱之间高度相似时，协方差问题可能会导致 CMB 模型出现负贡献，部分源在 Unmix 或 PMF 模型中可能无法区分^[19]。本标准所采用的基于随机方法和元素指纹法（SCMD），是专门为道路沉积颗粒物源解析设计的模型^[20]。其核心优势在于拓展性强、解析精度高，能够有效克服传统受体模型的局限性，实现对城市道路重金属污染来源的更精准识别与量化。

五、文件内容结构

- 1 范围
- 2 规范性引用文件
- 3 术语与定义
- 4 工程程序
- 5 重金属来源样品采集方法
- 6 道路沉积颗粒物样品采集方法
- 7 道路沉积颗粒物样品和重金属来源样品的检测
- 8 道路沉积颗粒物重金属溯源计算方法

9 质量控制

10 结果报告

六、主要条文说明

6.1 范围

本文件规定了城市道路沉积颗粒物中重金属溯源的方法。

本文件中的污染物包括铁元素（Fe）和重金属，其中重金属主要包括：砷（As）、钡（Ba）、镉（Cd）、铬（Cr）、钴（Co）、铜（Cu）、锰（Mn）、镍（Ni）、铅（Pb）和锌（Zn）。

本文件中的重金属来源包括刹车片磨损颗粒，刹车蹄磨损颗粒，汽油车排放颗粒，柴油车排放颗粒，道路沥青颗粒，道路骨料颗粒，道路周边土壤，轮胎磨损颗粒。

本文件适用于基于随机方法和元素指纹法的城市道路沉积颗粒物中重金属溯源。

其他环境介质、其他重金属种类、其他来源种类可参照本文件执行。

6.2 规范性引用文件

本部分为在编制道路沉积颗粒物中重金属溯源方法规范时所需要遵循的相关环境保护标准和文件。这些标准和文件的有关条文将成为本标准的组成部分。

6.3 术语和定义

本部分为执行本标准制定的专门的术语和对容易引起歧义的名词进行的定义。

6.4 工作程序

本条规定了城市道路沉积颗粒物中重金属溯源的工作程序。

6.5 重金属来源样品的采集方法

本部分内容明确了道路沉积颗粒物中重金属来源样品的采集方法及样品数量等内容。

6.6 道路沉积颗粒物样品采集方法

本部分内容明确了道路沉积颗粒物样品的采样设备要求，采样点设置，采样条件，采样操作步骤等内容。

6.7 道路沉积颗粒物样品和重金属来源样品的检测

本部分内容明确了道路沉积颗粒物样品和重金属来源样品的检测方法，以及如何记录检测结果等内容。

6.8 道路沉积颗粒物重金属溯源计算方法

本条明确了如何进行重金属溯源的具体计算方法。

6.9 质量控制

本条明确了溯源计算过程中如何保证结果准确性的方法、参数等。

6.10 结果报告

本条明确了结果报告包含的内容及报告样本等。

七、关于标准中道路沉积颗粒物样品采集方法的说明

本标准中采用湿法的吸尘采样方式对城市道路沉积颗粒物样品进行采集。该方法较传统的干法来说，采集效率更高。编制人员在相同路面上分别对干法和湿法的采样效率进行了测试，每种采样方法进行了 10 次试验，其结果如图 7-1 所示。从图 7-1 中可以看出，湿法的

采样效率远远高于干法采集法，干法的采样效率平均值不到 50%，但湿法的采样效率平均值可达 90%以上。因此，在本标准中规定道路沉积颗粒物样品采集应使用湿法。图 7-2 为道路沉积颗粒物的湿法采样参考图片。

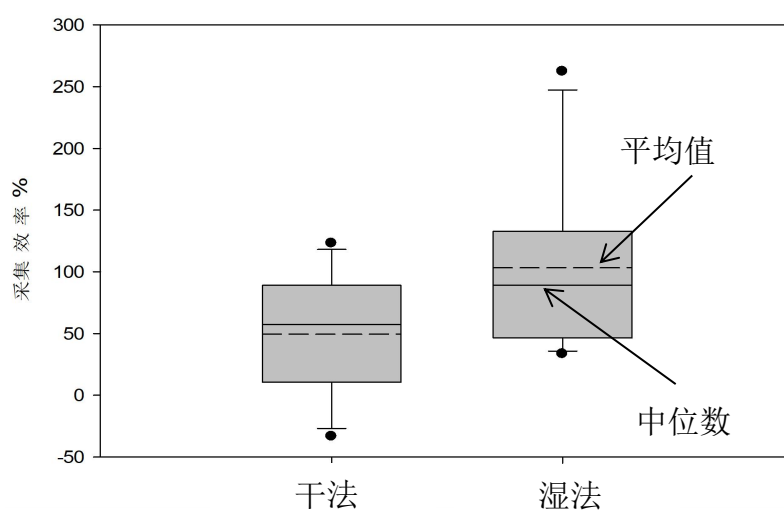
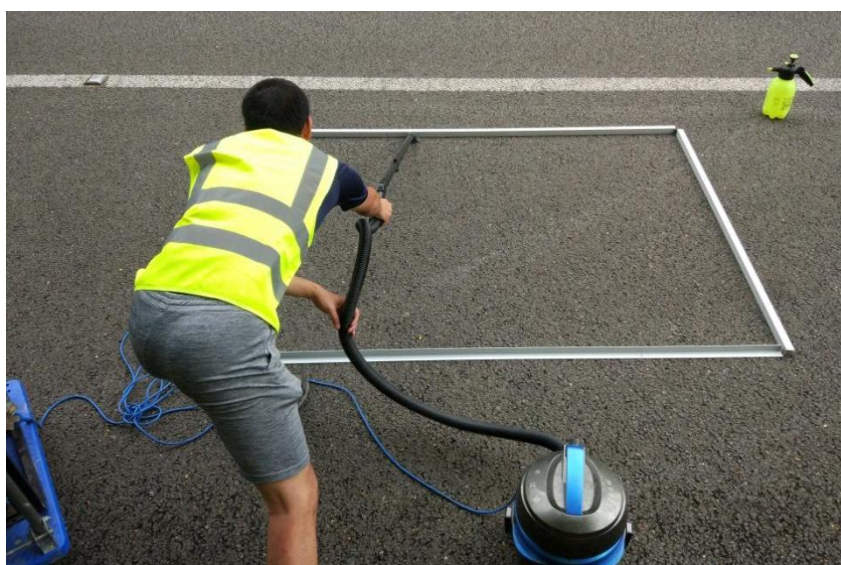
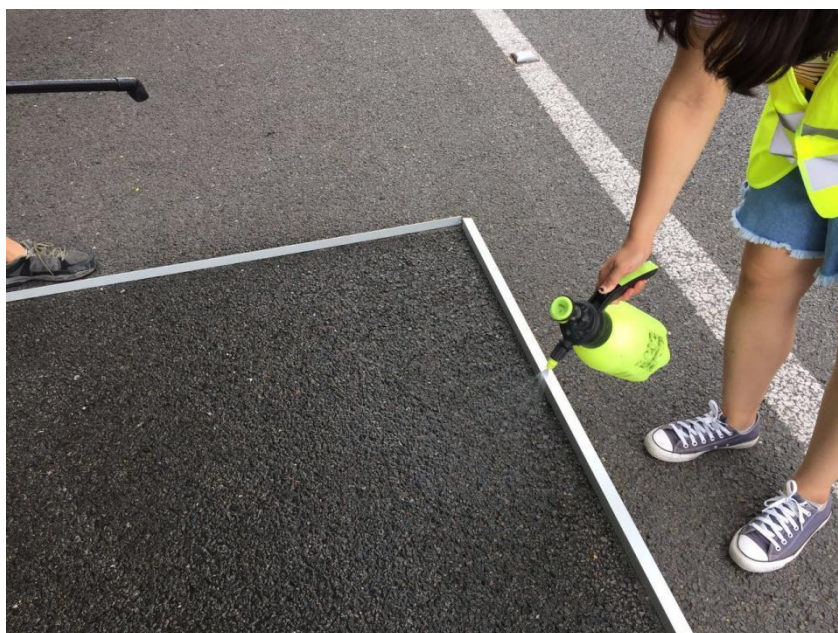


图 7-1 采样方法效率比较



a: 在路面干燥的状态下，针对单个采样点吸尘至少三次



b: 将路面喷湿，且不形成径流，再吸尘至少三次

图 7-2 道路沉积颗粒物湿法采样参考图片

八、关于标准中重金属来源样品采集方法的说明

重金属来源包括汽车源类、道路材料类、道路周边土壤及其他来源。其中汽车源类包括汽油车排放颗粒、柴油车排放颗粒、刹车片磨损颗粒、刹车蹄磨损颗粒、轮胎磨损颗粒；道路材料类包括道路骨料颗粒和道路沥青颗粒。其他来源指除上述来源外，用户自行判定且添加的其他来源。每种重金属来源样品采集不少于 10 个样品。表 8-1 为重金属来源样品的参考图片。

表 8-1 重金属来源样品的参考图片

重金属来源 样品	采集方法	参考图片	备注
刹车片磨损颗粒	从各类汽车刹车片 上人工刮取		收集的刹车片样品 和刹车蹄样品均 ≥10 个。

刹车蹄磨损颗粒

从各类汽车刹车蹄上人工刮取



轮胎磨损颗粒

从各类汽车轮胎表面人工刮取



收集包含轻型汽车、重型汽车、新能源汽车等不同汽车类型的轮胎磨损颗粒样品应 ≥ 10 个。

汽油车排放颗粒

用干净的聚乙烯刮片在汽油车排气管尾部人工反复刮取



柴油车排放颗粒

用干净的聚乙烯刮片在柴油车排气管尾部人工反复刮取



选择汽油车 ≥ 10 辆和柴油车 ≥ 10 辆。

道路骨料颗粒

将路面材料破碎后，人工区分并采集



道路沥青颗粒



人工敲击道路表面，直到有颗粒松动。道路沥青和道路骨料颗粒样品的采集数量均应 ≥ 10 个。

道路周边土壤

从道路沉积颗粒物采样点附近绿化带采集



采集深度为0-10 cm的表层土壤，每条道路采集三个土壤样品，且之间相距3-5 m，然后混合形成该道路的土壤样品，所采集的道路应 ≥ 10 条。

九、关于方法准确性的说明

合成数据集是根据模拟真实环境道路沉积颗粒物的源成分谱来人工生成的数据集^[21]。该方法已被用于验证大气污染研究中受体模型的解决方案^[22, 23]。由于在源解析过程中不能完全确定完整的源成分谱，

合成数据集通常被设计为包括多个真实环境的源和一个未知的源组成，以此来增强数据集的真实性^[24, 25]。本标准通过使用这种方法来评估传统受体模型与 SCMD 模型在道路沉积颗粒物源解析中的准确程度，并量化其质量贡献。首先是关于道路沉积颗粒物合成数据集的构建，主要步骤如下。

9.1 合成数据集的结构

本标准是基于 Brinkman 等人^[19]的研究来生成合成数据集。合成的道路沉积颗粒物中金属浓度 C_{ij} (mg/m^2) 根据式 9-1 来计算。

$$C_{ij} = \sum_{k=1}^p F_{ik} S_{kj} \quad (9-1)$$

其中， p 为源的数量， F_{ik} 为样本 j 的第 k 个源中第 i 个元素的质量分数（无量纲）， S_{kj} 表示第 k 个样品中金属元素的总质量浓度（ mg/m^2 ）。在本研究中， F_{ik} （即源成分谱）包括 4 个真实污染源和一个未知源。源成分谱中每个污染源由 19 种金属元素组成，即 Pb、Zn、Cr、Cu、Ni、Fe、Mn、Ba、Na、K、Mg、Ca、Al、Cd、Sb、Co、Sn、Mo 和 Sr。 S_{kj} （即源贡献值）是随机生成。

9.2 源成分谱的获取

根据以往的研究，道路沉积颗粒物的主要来源是与车辆相关的磨损和释放^[26]。本研究选择了在城市道路上对道路沉积颗粒物有高贡献的样本。其中包括刹车磨损颗粒（BW）、车辆尾气颗粒（VE）、轮胎磨损颗粒（TW）和道路周边土壤颗粒（RS）。为了模拟真实环境的条件，这四个真实环境的源和一个未知源（UnS）被用来开发合成数据集。

9.3 未知源的生成

未知源的源成分谱是人为生成的，用来模拟真实环境中的未识别源。未知源的生成要基于以下标准^[24]：

- (1) 未知源的源成分谱与 4 个真实源的源成分谱不相似；
- (2) 4 个真实源的标识元素在未知源成分谱中不能有很高含量；
- (3) 未知源的平均贡献应在总质量百分比的 10-15%，为研究未知源贡献大小对四种源解析方法准确程度的影响，本研究分别设置了 10%、15%、20% 三种未知源贡献。

除此之外，为了使未知源的源成分谱更加合理，对于未知源的源成分谱中的每个元素数值，本研究采用四个实际源的对应元素的平均值乘以 MATLAB 中随机生成取值范围为 0.2~0.8 的数字来产生。这是为了使未知源的源成分谱尽可能与实际偏差不会太大。在生成合成数据集中使用的污染源源成分谱如图 9-1 所示。

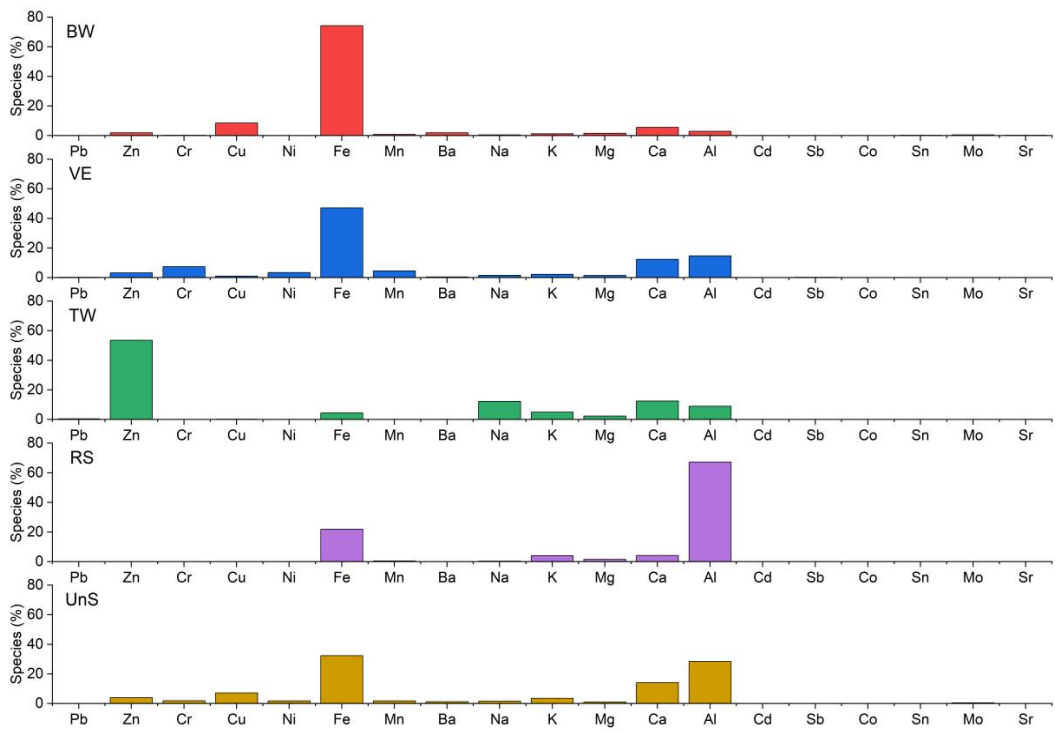


图 9-1 源成分谱图

9.4 源贡献值的生成

源贡献值 (S_{kj}) 是在 MATLAB 2021a 软件中, 根据对数正态分布随机生成的, 这可以反映源释放的特征和环境条件下不确定性的影响。本标准随机生成 100 个源贡献值, 每个合成数据集包含 100 个合成的道路沉积颗粒物样品。基于真实环境的道路沉积颗粒物采样, 本标准假设每 1 m^2 采集的道路沉积颗粒物样品质量为 20 g, 20 g 道路沉积颗粒物中含有 935.90 mg 金属, 标准差为 270.55 mg。

为了使研究的合成道路沉积颗粒物更贴合实际, 本标准建立了两种不同的城市道路交通情景, 即高交通流量情景和低交通流量情景。本标准假设刹车磨损、车辆尾气排放和轮胎磨损的影响在高交通流量的道路上更为明显, 而路边土壤的贡献相对较小。因此, 我们将 BW、VE、TW 和 RS 的贡献率分别设置约为 20%、25%、35%和 20%。相反, 在低交通流量道路上, 刹车磨损、车辆尾气排放和轮胎磨损的影响相对较少。因此, 对低交通流量场景中 BW、VE、TW 和 RS 的贡献率分别设置为 10%、20%、30%和 40%。为了探究未知源贡献大小的影响, 本标准还设置了三种不同的未知源贡献: 10%、15%和 20%。在生成四个真实源的源贡献值时, 按比例减少四种真实源的贡献率。

9.5 浓度数据的生成

根据式 9-1, 源成分谱数据 (F_{ik}) 与源贡献值数据 (S_{kj}) 的乘积便是合成道路沉积颗粒物的浓度数据 (C_{ij})。本标准总共开发了 6 个合成数据集 (SD 1~SD 6), 每个数据包含 100×19 个数据点。合成数据集的污染源的贡献率见表 9-1。

表 9-1 合成数据集中污染源的贡献率

合成数据集	污染源	贡献率	合成数据集	污染源	贡献率
SD1	BW	18.67%	SD4	BW	8.17%
	VE	22.73%		VE	16.20%
	TW	31.48%		TW	25.39%
	RS	16.94%		RS	35.08%
	UnS	10.18%		UnS	15.16%
SD2	BW	8.89%	SD5	BW	16.09%
	VE	17.58%		VE	19.79%
	TW	25.66%		TW	28.81%
	RS	37.80%		RS	15.24%
	UnS	10.06%		UnS	20.07%
SD3	BW	17.15%	SD6	BW	8.10%
	VE	20.46%		VE	15.94%
	TW	29.85%		TW	24.05%
	RS	17.35%		RS	31.81%
	UnS	15.18%		UnS	20.09%

注：SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集；BW、VE、TW 和 RS 分别为刹车磨损、车辆尾气、轮胎磨损和道路周边土壤。

为了评估四种受体模型的源解析结果的准确性，本标准采用相对误差^[27]（ RE ，见式 9-2）、相对预测误差^[28]（ RPE ，见式 9-3）和对称平均绝对百分比误差^[29]（ $SMAPE$ ，见式 9-4）进行评估。此外，使用标准识别距离^[30]（ SID ，见式 9-5）分别检验两种源未知模型的源解析结果与源成分谱的可比性，使用加权差分^[31]（ WD ，见式 9-6）检验 PMF 解析得到的源中每个元素的测量不确定度之间的关系。

$$RE = \sum \left| \frac{Y_{calculated} - Y_{SD}}{Y_{SD} \times p} \right| \times 100\% \quad (9-2)$$

$$RPE = \sqrt{\frac{\sum (Y_{calculated} - Y_{SD})^2}{\sum Y_{SD}^2}} \times 100\% \quad (9-3)$$

$$SMAPE = \frac{1}{p} \sum_{i=1}^p \frac{|Y_{calculated} - Y_{SD}|}{(Y_{calculated} + Y_{SD}) / 2} \times 100\% \quad (9-4)$$

$$SID_{ab} = \frac{1}{m} \sum_{j=1}^m \frac{\frac{1}{\sqrt{2}} |x_{ja} - y_{jb}|}{MAD_{ab}} \quad (9-5)$$

$$WD_{ab} = \frac{1}{m} \sum_{j=1}^m \frac{|x_{ja} - y_{jb}|}{\sqrt{u_{ja}^2 + u_{jb}^2}} \quad (9-6)$$

其中 p 为污染源的数量； m 为金属元素数量； $Y_{calculated}$ 为受体模型源解析的结果； Y_{SD} 是污染源在合成数据集中的数据； x_{ja} 和 y_{jb} 分别代表源成分谱 a 和 b 中元素的相对浓度； u_{ja} 和 u_{jb} 分别为 x_{ja} 和 y_{jb} 的不确定性； MAD_{ab} 是可接受性阈值和通过该点的识别线 (x_{ja}, y_{jb}) 之间的距离。由于标准识别距离和加权差分是用来补充检验源未知模型源解析结果，在本研究中，源已知模型源解析结果评价中并没有用到这两个评价指标。关于标准识别距离和加权差分这两个评价指标的详细原理参考 Belis 等人的文章^[30, 31]。在实际值和模型计算值之间的完美拟合的情况下， $RE = 0$ 、 $RPE = 0$ 、 $SMAPE = 0$ 、 $SID < 1$ 和 $0 < WD < 2$ 。

校正结果 ($Y_{predicted_cor}$)、校正相对误差 (RE_cor)、校正相对预测误差 (RPE_cor) 和校正对称平均绝对百分比误差 ($SMAPE_cor$)，计算公式如下：

$$Y_{calculated_cor} = Y_{calculated} \times (1 - r) \quad (9-7)$$

$$RE_cor = \sum \left| \frac{Y_{calculated_cor} - Y_{SD}}{Y_{SD} \times p} \right| \times 100\% \quad (9-8)$$

$$RPE_cor = \sqrt{\frac{\sum (Y_{calculated_cor} - Y_{SD})^2}{\sum Y_{SD}^2}} \times 100\% \quad (9-9)$$

$$SMAPE_cor = \frac{1}{p} \sum_{i=1}^p \frac{|Y_{calculated_cor} - Y_{SD}|}{(Y_{calculated_cor} + Y_{SD}) / 2} \times 100\% \quad (9-10)$$

其中， $Y_{calculated_cor}$ 为模型的校正结果； r 为未知源的质量贡献率。有关不同场景中 UnS 源贡献的详细值，请参见表 9-1。

9.6 受体模型源解析结果及误差比较

9.6.1 源未知模型的源解析结果与误差评价

按照前文所述过程，使用 PMF 和 Unmix 模型对构建的合成数据集进行源解析。在所有数据集中，PMF 和 Unmix 均只能获得 4 个源的解决方案，并且都未能识别出完整的 5 个污染源（BW、VE、TW、RS 和 UnS）。PMF 得到的 R^2 值接近于 1 的结果（表 9-2）。对于满足模型基本诊断要求的所有数据集，来自 Unmix 的结果满足最小 $R^2 > 0.8$ ，最小 $S/N > 2$ 。

表 9-2 合成数据集在 PMF 模型中的 R^2

元素	SD1	SD2	SD3	SD4	SD5	SD6
Pb	0.99973	0.99945	0.99935	0.99905	0.99855	0.99884
Zn	0.99999	0.99999	0.99998	0.99997	0.99994	0.99997
Cr	0.99809	0.99715	0.99648	0.99643	0.99530	0.99731
Cu	0.99448	0.99331	0.98969	0.99341	0.98833	0.99654
Ni	0.99618	0.99498	0.99125	0.98670	0.98566	0.98964
Fe	0.97123	0.95558	0.91524	0.91359	0.911966	0.92557
Mn	0.99909	0.99894	0.99864	0.99889	0.99788	0.99928
Ba	0.99923	0.99463	0.99720	0.98936	0.99904	0.99439
Na	0.99998	0.99995	0.99996	0.99993	0.99972	0.99992
K	0.99905	0.99712	0.99696	0.99618	0.99885	0.99485
Mg	0.99121	0.99534	0.98458	0.99126	0.97325	0.98913
Ca	0.99389	0.991168	0.98847	0.98625	0.98574	0.98787
Al	0.99967	0.99758	0.99672	0.99701	0.99818	0.99532
Cd	0.99989	0.99985	0.99976	0.99969	0.99992	0.99962
Sb	0.99076	0.98849	0.98239	0.97830	0.97567	0.98519
Co	0.99665	0.99601	0.99470	0.99480	0.99178	0.99544
Sn	0.99511	0.97714	0.98193	0.95042	0.99150	0.97271

Mo	0.99049	0.98733	0.98298	0.98609	0.98166	0.99249
Sr	0.99751	0.99718	0.99486	0.99684	0.99454	0.99823

注：SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集

本标准中，对 PMF 和 Unmix 模型得出的结果进行来源识别的过程均基于先前的研究和污染源特征。以 PMF 模型对 SD1 的源解析结果为例（见图 9-2）。本标准通过综合考虑四个来源来进行源识别。通过对图 9-2 的分析可见，对于 Zn、Cu、Cr、Ni、Al 和 Sr，源 1 的 Cu 质量贡献率最高（50.62%）；源 2 对 Cr（51.26%）和 Ni（47.96%）的贡献最大；源 3 是 Al（57.71%）和 Sr（30.71%）的主要贡献者；源 4 是 Zn（54.51%）和 Cd（57.17%）的主要贡献者，且对 Cu 的贡献较小。源 1 的 Cu 负荷较高并且根据先前的研究，Cu 是车辆制动系统磨损颗粒的有用标志物^[32]。因此，源 1 被认为是制动磨损（BW）。源 2 主要负荷是 Cr 和 Ni，这与车辆尾气中有着较高浓度的 Cr 和 Ni 相对应^[33]。因此，源 2 被确定为车辆尾气（VE）。源 3 的 Al 和 Sr 负荷较高，根据学者的研究，可被识别为来自路边土壤^[34]。因此，源 3 被确定为道路周边土壤（RS）。轮胎中的 Zn 和 Cd 含量较高^[35, 36]，所以，源 4 被确定为轮胎磨损颗粒（TW）。

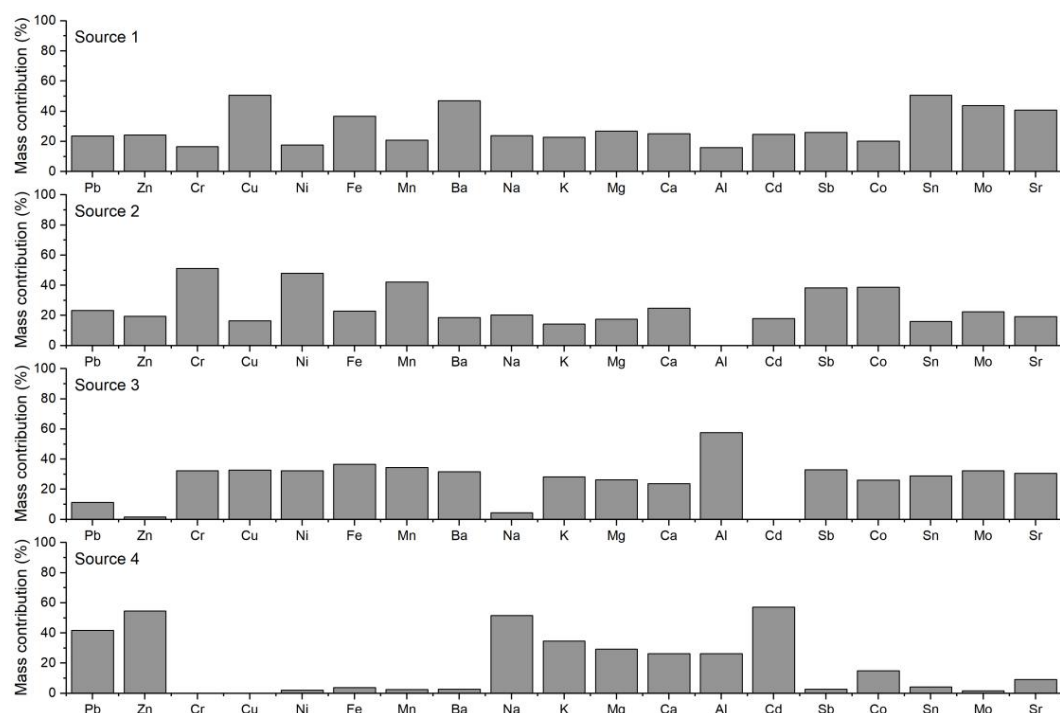


图 9-2 PMF 模型得到的 SD1 的 19 种金属元素的质量贡献

本标准使用 PMF 和 Unmix 模型对 SD1~SD6 数据集进行了源解析，所获得的结果可通过以上类似的识别过程进行源识别。各数据集的源识别结果见表 9-3。

表 9-3 PMF 和 Unmix 模型的源识别结果及质量贡献

序号	PMF			Unmix		
	源识别	贡献 (mg/m ²)		源识别	贡献 (mg/m ²)	
SD1	Source 3	RS	297.72	Source 3	VE	329.84
	Source 1	BW	262.11	Source 4	TW	272.34
	Source 4	TW	225.72	Source 1	RS	180.73
	Source 2	VE	172.76	Source 2	BW	175.47
SD2	Source 3	RS	386.49	Source 2	RS	506.86
	Source 2	VE	295.52	Source 3	BW	227.51
	Source 4	TW	191.79	Source 4	TW	207.00
SD3	Source 1	BW	170.16	Source 1	VE	85.49
	Source 2	TW	343.44	Source 3	VE	262.06

SD4	Source 1	RS	221.90	Source 4	BW	258.56
	Source 3	BW	221.03	Source 1	RS	249.41
	Source 4	VE	189.33	Source 2	TW	205.94
	Source 4	VE	351.32	Source 2	RS	408.28
	Source 3	TW	280.47	Source 4	VE	295.57
	Source 1	RS	278.56	Source 1	BW	269.47
SD5	Source 2	BW	106.51	Source 3	TW	45.03
	Source 2	RS	325.27	Source 1	RS	258.70
	Source 4	BW	276.08	Source 2	BW	176.57
	Source 1	TW	213.90	Source 3	VE	146.43
	Source 3	VE	168.10	Source 4	TW	60.35
	Source 4	RS	345.22	Source 1	RS	326.28
SD6	Source 2	VE	265.44	Source 3	BW	325.43
	Source 3	TW	206.37	Source 4	TW	236.81
	Source 1	BW	188.40	Source 2	VE	115.70

注：SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集；BW、VE、TW 和 RS 分别为刹车磨损、车辆尾气、轮胎磨损和道路周边土壤。

模型源解析结果和合成数据集的源质量贡献在图 9-3 中显示。黑色柱子代表合成数据集，而黄色和绿色柱子分别是 PMF 和 Unmix 模型的结果。黄色和绿色柱子越接近黑色柱子，源解析结果就越准确。在大多数情况下，PMF 和 Unmix 模型 4 个源的结果与合成数据集之间存在明显差异。具体的模型结果准确程度的评价由误差评价指标进行计算与比较。

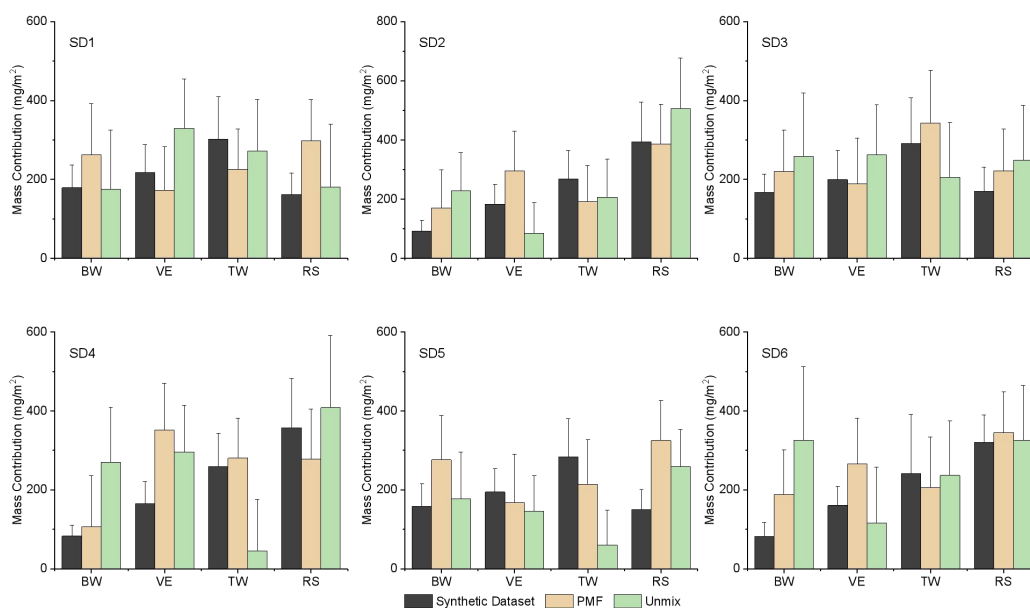


图 9-3 PMF 和 Unmix 模型源解析结果 (SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集)

使用前文所述评价指标, 分别对 PMF 和 Unmix 模型的源解析结果各污染源的质量贡献进行计算, 计算结果见表 9-4。从表格整体而言, PMF 模型和 Unmix 模型的误差均较大, 特别是随着未知源贡献的增大, 模型的误差变得更大。未知源的增大对模型的源解析准确程度产生了影响, 例如 Unmix 在 SD1 中 RE 、 RPE 和 $SMAPE$ 分别为 18.60%、26.43%和 15.95%, 在 SD5 中 RE 、 RPE 和 $SMAPE$ 分别为 46.86%、62.26%和 55.55%。在 SD4 和 SD6 中, Unmix 模型的 RE 值更是高达 99.95%和 83.03%。PMF 模型受未知源增大误差影响没有 Unmix 模型那么明显, 但也有着较大的误差, 并且在低未知源贡献时, 例如 SD1 时, PMF 的 RE 、 RPE 和 $SMAPE$ 分别为 43.95%、40.98%和 37.13%。从误差比较结果而言, PMF 模型误差受未知源贡献影响比 Unmix 模型更小, 但其在低未知源贡献时也有着不小的误差。在实际的道路沉积颗粒物源解析应用中, 很难识别未知源的场景和贡献, 这种程度的计算误差难以指导实际实践。

表 9-4 PMF 和 Unmix 模型源解析结果误差评价

Number	Model	RE^a	RPE	$SMAPE$
SD1	PMF	43.95%	40.98%	37.13%
	Unmix	18.60%	26.43%	15.95%
SD2	PMF	43.69%	30.06%	35.18%
	Unmix	62.41%	40.41%	51.87%
SD3	PMF	21.52%	21.57%	19.05%
	Unmix	40.56%	37.77%	35.59%
SD4	PMF	42.85%	42.82%	32.40%
	Unmix	99.95%	66.11%	79.08%
SD5	PMF	57.34%	54.95%	42.67%
	Unmix	46.86%	62.26%	55.55%
SD6	PMF	54.85%	35.52%	38.01%
	Unmix	83.03%	56.64%	39.06%

注：SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集； RE 、 RPE 和 $SMAPE$ 分别为相对误差、相对预测误差和对称平均绝对百分比误差。

此外，如图 9-4 和 9-5 所示，有关 SID 这一项评价指标，不论是 PMF 模型还是 Unmix 模型，只有一半的数据集包含 SID 小于 1 的单个来源，这说明了 PMF 和 Unmix 模型获得的源的结果与真实源成分谱的化学特征并不完全匹配。又如图 9-6 所示， WD 的值均在 0 和 2 之间，这说明了 PMF 模型源解析结果中源成分谱产生的不确定性与在真实环境源成分谱中观察到的差异是一致的。这表明 PMF 模型在源解析过程中没有低估源的不确定性。以上这些结果表明 PMF 和 Unmix 模型在合成道路沉积颗粒物数据集源解析得到的结果存在着显著的误差。

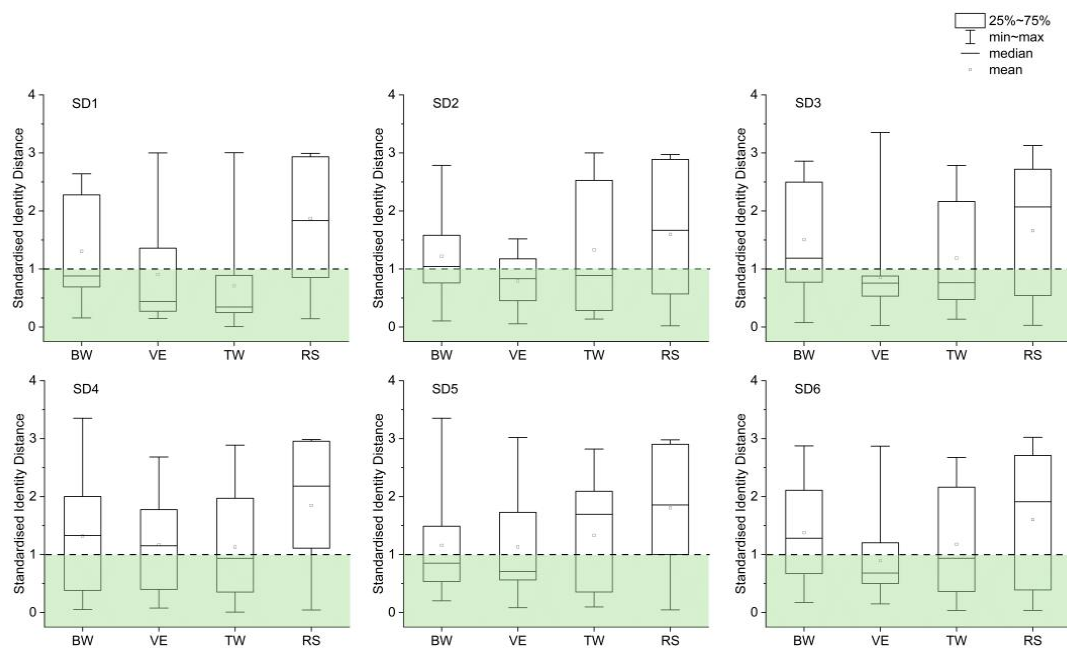


图 9-4 PMF 模型源解析结果的标准识别距离评价 (SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集; 可接受的值是虚线以下的值)

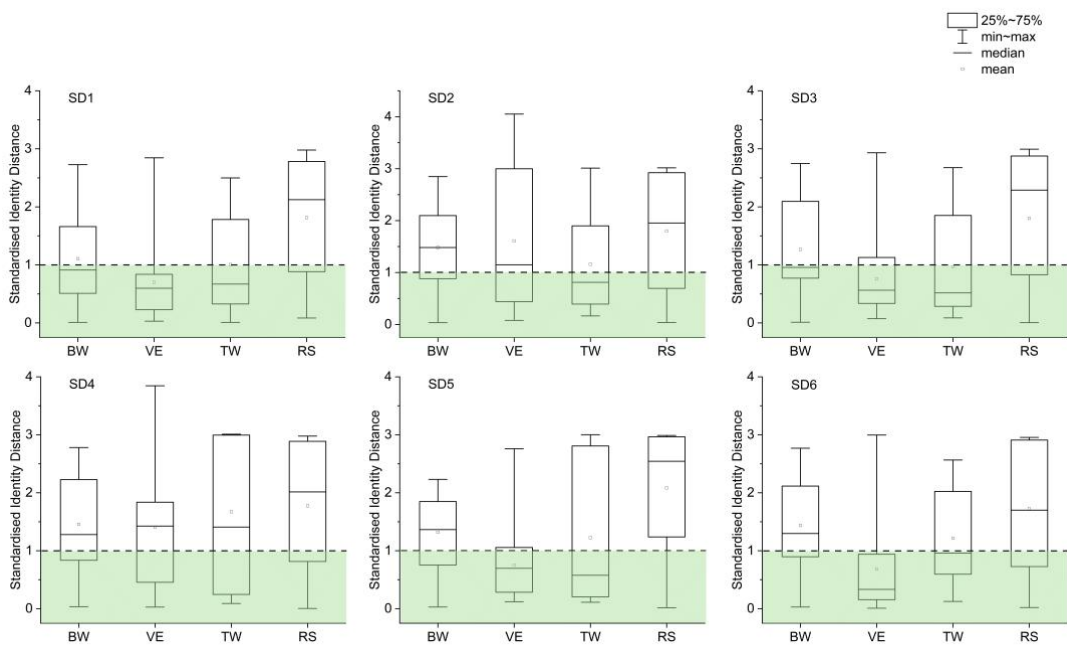


图 9-5 Unmix 模型源解析结果的标准识别距离评价 (SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集; 可接受的值是虚线以下的值)

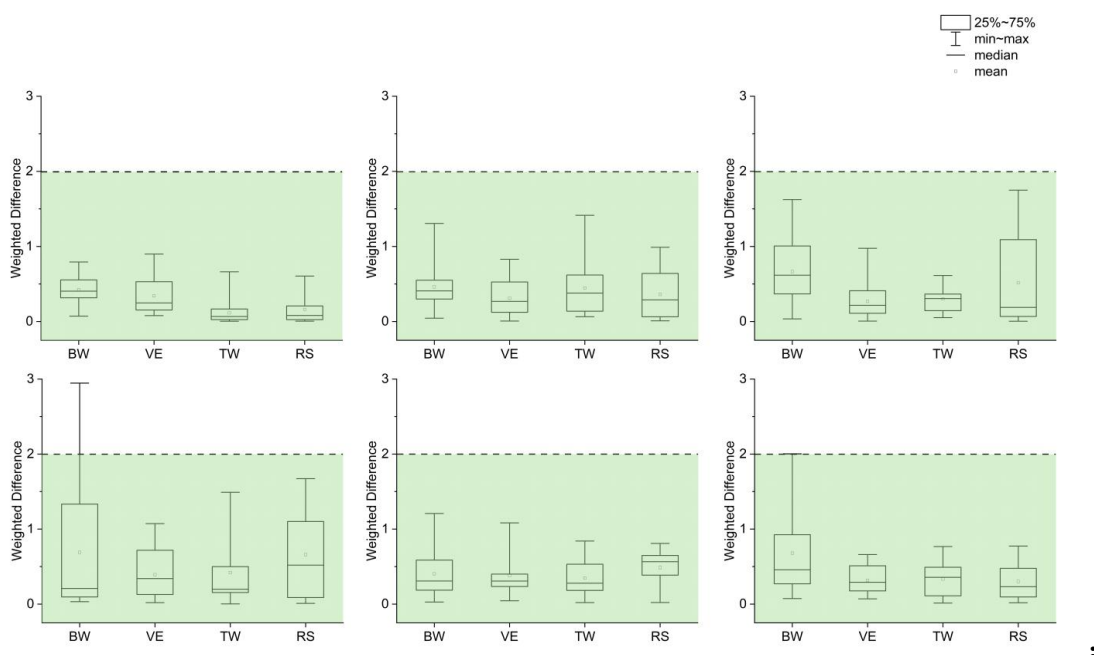


图 9-6 PMF 模型源解析结果的加权差分评价（SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集；可接受的值是虚线以下的值）

尽管许多研究表明 PMF 模型具有优势，例如不需要输入源成分谱数据和提供良好的结果可解释性^[37]，但基于已知源特征的源识别过程仍然高度主观^[38]。在本标准中，大多数来源只能根据具有特定特征的金属来识别，而不是所有金属，主要来源没有充分的代表性。此外，确定 PMF 中污染源的数量是另一个难点。在本标准中，当基于先验信息将源个数设置为四个时，可以得到结果。然而，有五个来源（四个已知和一个未知），结果是次优的。在道路沉积颗粒物方面，PMF 模型不适用于四个以上主要来源的道路沉积颗粒物来源解析，它所能识别出的源的数量远没有在大气领域那么完全。Unmix 模型的优点是不需要指定源的数量。在本研究中，Unmix 模型在不需要先验信息的情况下成功识别了所有数据集中的四个来源，也未能识别出五个来源。此外，与 PMF 模型类似，Unmix 模型中的源识别过程具有很强的主观性，识别出的源不具有完全的代表性。另一方面，道路沉积颗粒物和相关污染源在不同采样点和金属浓度范围内的数据表现出显著的

变异性，远高于大气研究中通常看到的数据。例如，在许多大气研究中，不同污染物之间的数值变化范围大约在 10 到 1000 之间^[39-41]。相比之下，在道路沉积颗粒物样品中，不同金属之间的数值变化范围从小于 1 到约 50000（本研究），明显比大气污染物（比如 PM_{2.5}）更高。因为源未知模型对输入数据的质量更敏感，并且在没有可用示踪剂或随机时间变化的情况下添加非特定源可能会增加输入数据中的“噪声”^[42]。因此，基于目前的误差评价结果，PMF 和 Unmix 模型不适合用于道路沉积颗粒物的源解析研究。

9.6.2 源已知模型的源解析结果与误差评价

按照前文章节所述过程，使用 CMB 和 SCMD 模型对六个合成数据集进行源解析。源已知模型不需要进行主观的源识别这一过程，由 CMB 和 SCMD 模型得到的各污染源的质量贡献如图 9-7 所示。

同时为了进一步比较 CMB 模型和 SCMD 模型对城市道路表面重金属源解析的适用性，本标准还进行去除未知源贡献后的 CMB 和 SCMD 模型源解析修正结果如图 9-8 所示。在图 9-7 和图 9-8 中，黑色柱子表示合成数据集污染源质量贡献，而红色和蓝色柱子分别为 CMB 和 SCMD 模型的结果。从图 9-7 和图 9-8 中可以看到，在大多数情况下，SCMD 在实现准确的源解析结果方面显示出了良好的能力。此外，经过去除未知源贡献后，红色和蓝色柱子更加接近黑色柱子。具体的模型结果准确程度的评价由误差评价指标进行计算与比较。

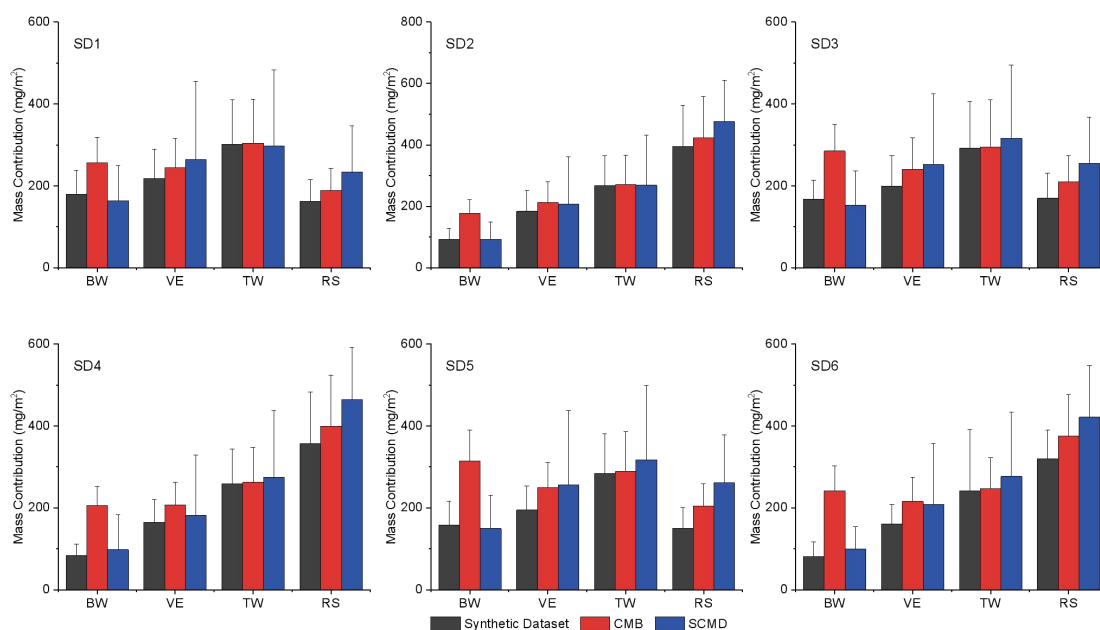


图 9-7 CMB 和 SCMD 模型源解析结果 (SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集)

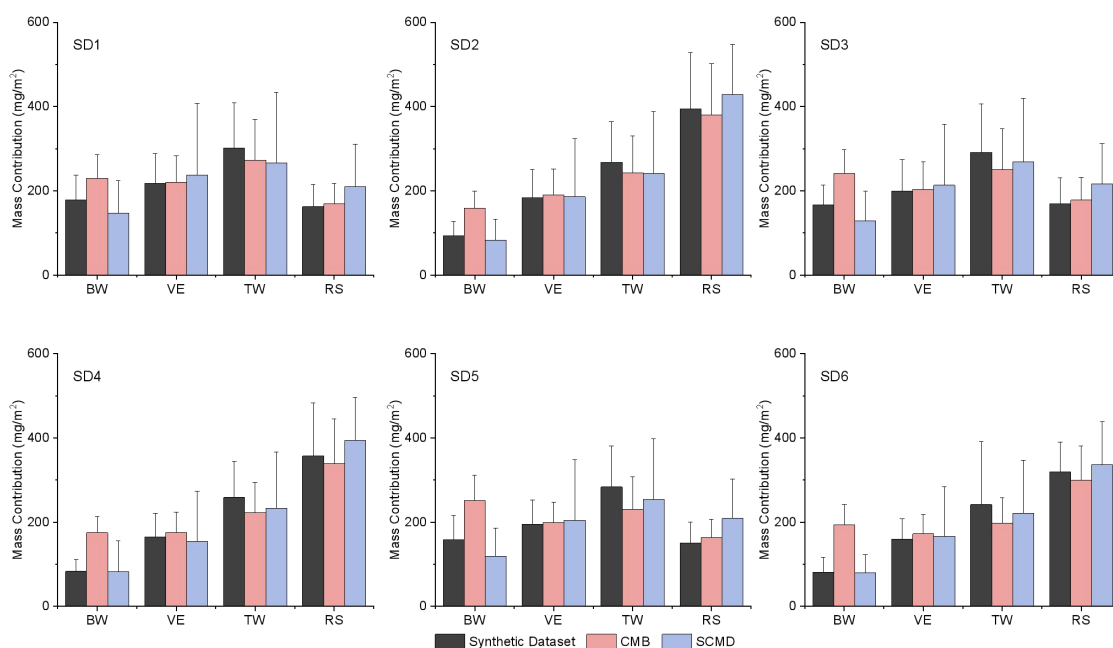


图 9-8 修正后的 CMB 和 SCMD 模型源解析结果 (SD1-6 分别是 6 种情形的合成数据集)

使用前文所述评价指标, 分别对 CMB 和 SCMD 模型的源解析结果各污染源的质量贡献进行计算, 计算结果见表 9-5。CMB 和 SCMD 模型源解析结果的误差评价结果如表 9-5 所示。CMB 模型的最大 RE 、 RPE 和 $SMAPE$ 值分别为 62.70%、42.73%和 36.63%, 而 SCMD 的最

大值分别为 30.76%、32.34%和 24.55%。除 SD1 的 *RE* 和 *SMAPE* 值外，SCMD 模型的结果均优于 CMB 模型。随着未知源贡献的增加，CMB 和 SCMD 模型的 *RE*、*RPE*、*SMAPE* 值均有所增加，CMB 模型的误差从 20%增加到 60%，SCMD 的误差则是从 20%增加到 30%。SCMD 模型的源解析结果比 CMB 模型明显稳定和准确。另外，这两种模型经过修正后的 *RE_cor*、*RPE_cor*、*SMAPE_cor* 值明显更小，说明减少未知源贡献的相关性会提高这两种模型的准确程度。此外，修正后的 SCMD 模型的相关指标降低幅度更大于 CMB 模型，甚至最小的 *RE_cor* 值为 5.04%。

表 9-5 CMB 和 SCMD 模型源解析结果误差评价

序号	模型	<i>RE</i>	<i>RPE</i>	<i>SMAPE</i>	<i>RE_cor</i>	<i>RPE_cor</i>	<i>SMAPE_cor</i>
SD1	CMB	18.18%	19.41%	15.77%	10.89%	13.35%	10.08%
	SCMD	18.89%	19.54%	16.50%	16.97%	15.79%	16.56%
SD2	CMB	28.49%	17.90%	21.15%	21.96%	13.89%	17.41%
	SCMD	8.48%	16.32%	7.81%	7.55%	8.45%	7.73%
SD3	CMB	28.89%	30.67%	23.23%	16.39%	20.03%	14.61%
	SCMD	23.55%	24.54%	20.24%	16.32%	15.53%	16.22%
SD4	CMB	46.60%	28.56%	30.04%	33.95%	21.07%	24.43%
	SCMD	15.95%	23.10%	14.45%	6.76%	9.59%	6.81%
SD5	CMB	41.04%	42.73%	30.67%	22.09%	26.53%	19.14%
	SCMD	30.76%	32.34%	24.55%	19.82%	18.95%	19.18%
SD6	CMB	62.70%	40.61%	36.63%	42.43%	27.94%	28.90%
	SCMD	24.54%	27.00%	21.68%	5.04%	6.25%	5.10%

注：*RE*、*RPE* 和 *SMAPE* 分别为相对误差、相对预测误差和对称平均绝对百分比误差；*RE_cor*、*RPE_cor* 和 *SMAPE_cor* 分别为修正后相对误差、修正后相对预测误差和修正后对称平均绝对百分比误差。

与源未知模型相比，源已知模型利用了更多的先验信息，从而获得了更准确的源解析结果。以前的研究也认识到 CMB 模型的稳定性和易于解释，特别是在源识别过程中。由于使用了已知的污染源源成

分谱，因此在源识别过程中没有主观性或困难^[43]。然而，CMB 模型需要完整和准确的源成分谱配置文件。如果污染源的资料不完整或不准确，CMB 模型可能难以准确地分配源贡献^[44]。因此，如表 9-5 所示，随着未知源贡献的增加，CMB 的误差评价指标迅速上升，当未知源贡献达到 30% 时，误差变得不可接受。除此之外，在不同采样点的道路沉积颗粒物和相关污染源样品的金属浓度范围内的数据表现出很大的差异，严重影响了源成分谱和源解析结果的准确性。在 SCMD 模型中，使用 Fe 与其他金属之间的对数线性关系创建了大量污染源和道路沉积颗粒物的生成样本。然后使用全局优化算法计算这些样本，该算法有助于覆盖不完整或高度可变的源成分谱的不确定性，从而获得更准确的结果^[45]。此外，很可能没有明确的示踪剂，使得 PMF 和 Unmix 无法将未知源（UnS）作为有效的单一来源提取出来。因此，UnS 的贡献被分割以匹配识别出的四个源成分中，从而导致了误差的增加。然而，在相同的合成数据集条件下，SCMD 显示出较小的误差，特别是当通过去除未知源的贡献对源解析结果进行修正时，误差更小，源解析结果更准确。结果表明，SCMD 模型比 CMB 模型更适合于道路沉积颗粒物中重金属的源解析。综上所述，根据两个误差评价表（表 9-4 和表 9-5），SCMD 模型比 PMF、Unmix 和 CMB 模型更适合于道路沉积颗粒物的源解析。

十、应用案例

10.1 案例 1

本应用案例区域位于广东省深圳市，选择了 20 条道路路段作为采样点，且包含典型城市功能区工业区、商业区、居民区等。所有路段表面相对平坦，铺设沥青。利用湿式道路沉积颗粒物采样方法采集

了道路沉积颗粒物样品，并检测了道路沉积颗粒物样品的总质量^[46,47]。具体采样地点如图 10-1 所示。

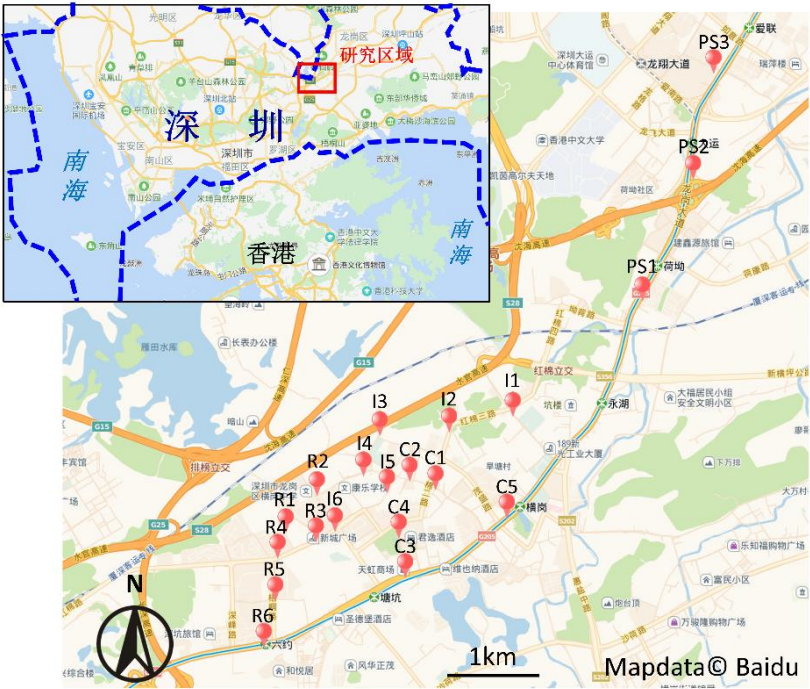


图 10-1 深圳市采样点分布图

另外，编制人员采集了重金属来源颗粒样品，包括刹车片磨损颗粒、刹车蹄磨损颗粒、汽油车排放颗粒、柴油车排放颗粒、轮胎磨损颗粒、道路沥青颗粒、道路骨料颗粒和道路周边土壤。本应用案例中采集刹车片磨损颗粒样品 32 个、刹车蹄磨损颗粒样品 12 个、汽油车排放颗粒样品 43 个、柴油车排放颗粒样品 26 个、轮胎磨损颗粒样品 19 个、道路沥青颗粒样品 12 个、道路骨料颗粒样品 12 个和道路周边土壤样品 12 个。所有道路沉积颗粒物和重金属来源颗粒样品采用 HJ 700-2014、HJ 974-2018 和 HJ 1315-2023 中的方法检测其中的 Pb、Zn、Cr、Cu、Ni 和 Fe。

道路沉积颗粒物和各重金属来源颗粒重金属元素指纹特征如图 10-2 所示。在道路沉积颗粒物中（在图 10-2 中以黑色方框表示），Cr、Cu、Pb、Ni 和 Zn 的浓度分别为 19.05~152.01 mg/kg、25.66~310.75 mg/kg、15.61~220.35 mg/kg、10.65~100.28 mg/kg、138.14~1047.05

mg/kg。在各种重金属来源颗粒样品中，根据重金属浓度的不同，可分为两组与道路沉积颗粒物进行比较。道路骨料颗粒、道路沥青颗粒、道路周边土壤和轮胎磨损颗粒可被认为是低浓度重金属来源颗粒组（在图 10-2 中以蓝色方框表示），其所有重金属的平均浓度值相对较低（除了轮胎磨损颗粒样品中 Zn 的浓度较高外）。而刹车蹄磨损颗粒、刹车片磨损颗粒、汽油车尾气排放颗粒和柴油车尾气排放颗粒可视为高浓度重金属来源颗粒组（在图 10-2 中以红色方框表示），其重金属平均浓度值较道路沉积颗粒物更高。

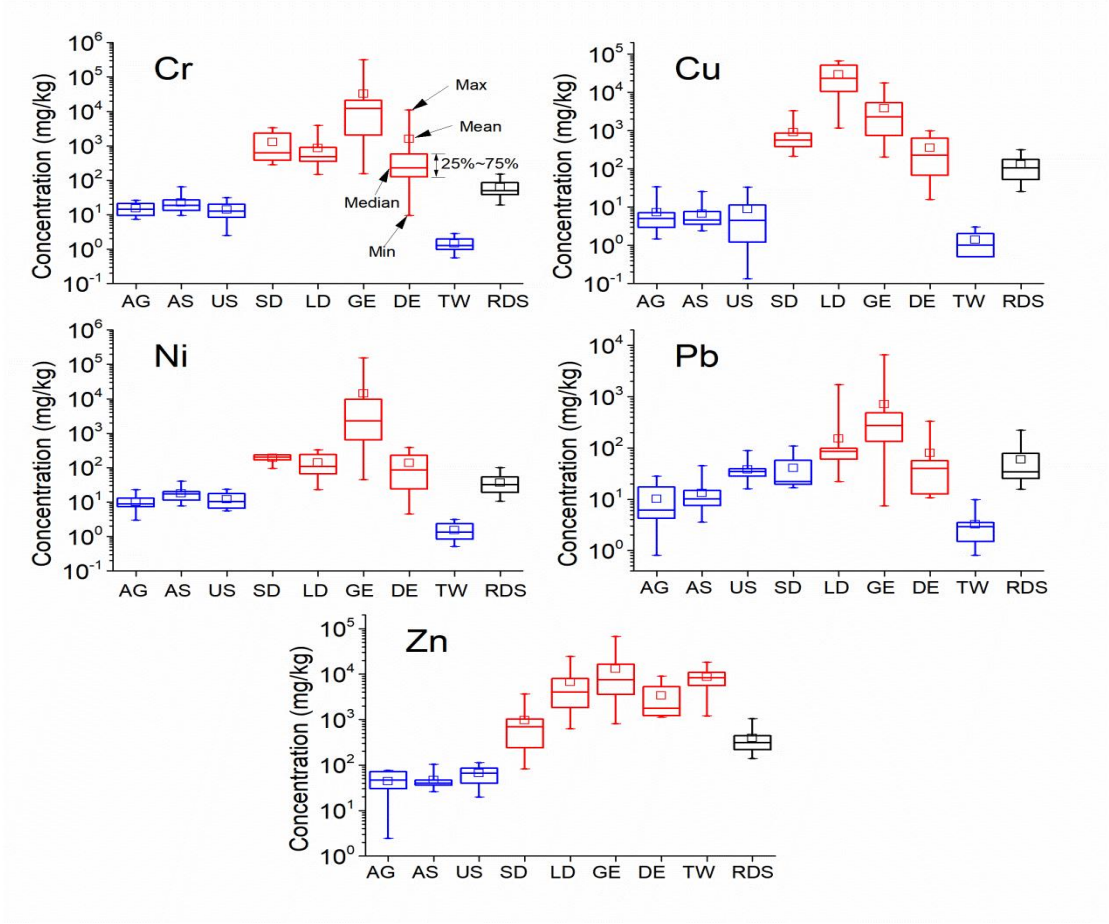


图 10-2 道路沉积颗粒物和各种重金属来源颗粒中的重金属元素指纹特征
(LD: 刹车片磨损颗粒; SD: 刹车蹄磨损颗粒; GE: 汽油车尾气排放颗粒; DE: 柴油车尾气排放颗粒; TW: 轮胎磨损颗粒; AS: 道路沥青颗粒; AG: 道路骨料颗粒; US: 道路周边土壤; 道路沉积颗粒物: 道路沉积颗粒物)

把通过元素指纹使用 SCMD 法进行溯源。各污染源重金属来源颗粒质量贡献如图 10-3 所示。轮胎磨损颗粒为道路沉积颗粒物贡献了 $32.99\pm 25.84\%$ 的质量，其次是道路周边土壤（ $25.45\pm 23.14\%$ ），道路沥青颗粒（ $18.31\pm 22.48\%$ ），道路骨料颗粒（ $13.87\pm 19.66\%$ ），柴油车排放颗粒（ $5.37\pm 8.53\%$ ），刹车蹄磨损颗粒（ $2.62\pm 4.72\%$ ）和汽油车排放颗粒 GE（ $0.96\pm 3.13\%$ ），而刹车片磨损颗粒的贡献率最低，仅为 $0.43\pm 0.77\%$ 。值得注意的是，低浓度源（轮胎磨损颗粒、道路周边土壤、道路沥青颗粒和道路骨料颗粒）为道路沉积颗粒物贡献了相对较高的固体质量（ $13.87\%-32.99\%$ ），而高浓度源（柴油车排放颗粒、刹车蹄磨损颗粒、汽油车排放颗粒和刹车片磨损颗粒）所贡献的百分比非常低（ $0.43\%-5.37\%$ ）。所有高浓度污染源对道路沉积颗粒物的贡献均不到固体质量的 10%。这意味着，在道路沉积颗粒物中，由大量重金属组成的来源颗粒占较低的百分比，而道路沉积颗粒物中的大多数固体质量（大于 90%）来自较低浓度重金属来源颗粒。

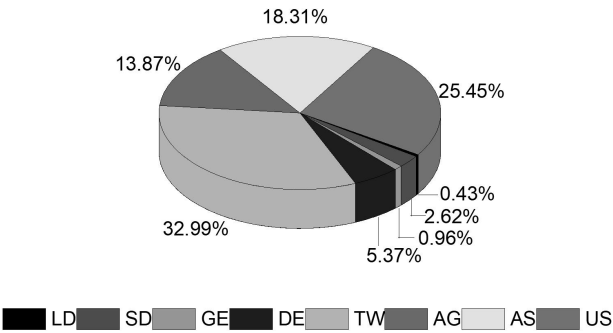


图 10-3 各个重金属来源颗粒对道路沉积颗粒物的质量贡献（LD：刹车片磨损颗粒； SD：刹车蹄磨损颗粒； GE：汽油车尾气排放颗粒； DE：柴油车尾气排放颗粒； TW：轮胎磨损颗粒； AS：道路沥青颗粒； AG：道路骨料颗粒； US：道路周边土壤）

各重金属来源颗粒对道路沉积颗粒物重金属质量贡献如图 10-4

所示。道路周边土壤是道路沉积颗粒物中 Pb 的最重要来源（ $41.18\pm 32.17\%$ ），而轮胎磨损颗粒是 Zn 的主要来源（ $28.29\pm 24.76\%$ ）。汽油车尾气排放对 Cr（ $29.26\pm 28.45\%$ ）和 Ni（ $20.02\pm 22.68\%$ ）的贡献最大，而刹车片磨损颗粒贡献最多的 Cu（ $58.57\pm 30.25\%$ ）。此外，较高浓度重金属的来源颗粒（如刹车片磨损颗粒、刹车蹄磨损颗粒、汽油车排放颗粒和柴油车排放颗粒）贡献了超过 50% 的重金属，特别是对于 Cu，Zn，Cr 和 Ni。尽管这些重金属来源颗粒对道路沉积颗粒物质量的贡献不到 10%。这意味着管控这些较高浓度重金属的来源颗粒排放可以降低城市雨水径流中的重金属污染，从而在一定程度上缓解受纳水体中由重金属引起的生态环境健康问题。

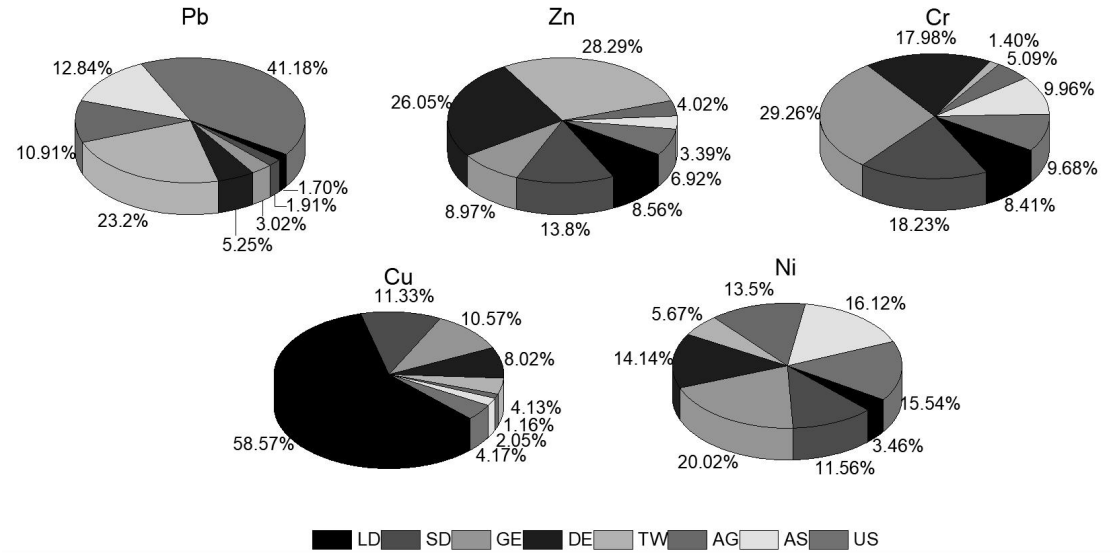


图 10-4 各重金属来源颗粒对道路沉积颗粒物重金属的质量贡献（LD：刹车片磨损颗粒； SD：刹车蹄磨损颗粒； GE：汽油车尾气排放颗粒； DE：柴油车尾气排放颗粒； TW：轮胎磨损颗粒； AS：道路沥青颗粒； AG：道路骨料颗粒； US：道路周边土壤）

10.2 案例 2

本应用案例区域位于在广州市海珠区，选择了 44 个地点进行道路沉积颗粒物样品的采集（见图 10-5），分别于 2022 年 11 月 16 日、

18 日、20 日和 12 月 3 日进行采样。11 月 18 日、20 日气候为多云，11 月 16 日、12 月 3 日气候为阴。采样期间温度为 20℃~29℃，其中 12 月 3 日温度为 11℃~19℃，相对湿度均在 70%左右。样品采用湿式吸尘收集方法进行收集（图 10-6），该方法能够保证在采集道路沉积颗粒物时充分采集到颗粒态和溶解态的累积污染物^[46, 47]。



图 10-5 广州市采样点分布

本应用案例对广州市海珠区道路沉积颗粒物样品进行了系统的重金属元素分析，使用 ICP-OES 和 ICP-MS 共测定 19 种金属元素的浓度水平，包括 Pb、Zn、Cr、Cu、Ni、Fe、Mn、Ba、Na、K、Mg、Ca、Al、Cd、Sb、Co、Sn、Mo 和 Sr 元素，累积负荷及标准偏差结果见图 10-6。所采集的道路沉积颗粒物样品的 Pb、Zn、Cr、Cu、Ni、Mn、Cd 和 Co 八种重金属浓度特征如图 10-6 所示。从图中可以看出，Cu 元素的变化范围最大（4.20~809.29 mg/kg），Zn（44.89~694.15 mg/kg）、Cr（26.08~584.44 mg/kg）和 Mn（111.35~608.33 mg/kg）元素也有着较大的变化范围，Mn 元素的平均负荷最大（319.51 mg/kg）。道路沉积颗粒物中 Pb、Zn、Cr、Cu、Ni、Mn、Cd、Co 浓度分别为广州市土壤地球化学背景值的 1.20、2.96、1.17、1.18、1.16、1.43、8.89、0.71 倍。道路沉积颗粒物中 Cd 的污染非常显著，Zn、Pb 次之，

其他重金属（Cr、Cu、Ni、Mn）的污染程度较轻。Cd 虽然数值上看负荷不高，但超过广州市土壤地球化学背景值 8.89 倍，作为具有强生物毒性的重金属，其污染程度显著高于其他元素，且易通过食物链富集放大，对生态环境和人体健康（如肾脏损害、骨代谢异常等）构成严重威胁，需优先实施源头控制和生态修复。虽然 Zn 的毒性较低，但其浓度也高于背景值较多，可能对土壤和水体生态系统产生一定影响。Pb 的浓度虽然略低，但其毒性强，额外需关注其对人体健康，尤其是儿童的潜在风险。Cr、Cu、Ni、Mn 的浓度接近背景值，短期内对环境和健康的风险较低，但长期累积可能对生态系统产生潜在影响。

表 10-1 道路沉积颗粒物样品中的金属元素累积负荷与标准偏差

元素	累积负荷 (mg/kg)	标准偏差 (mg/kg)
Pb	34.02	19.48
Zn	316.96	164.06
Cr	147.81	105.64
Cu	107.69	149.25
Ni	21.21	14.69
Fe	25471.64	11400.88
Mn	319.51	131.33
Ba	201.71	150.99
Na	575.01	129.79
K	1552.72	1075.29
Mg	3576.25	1756.92
Ca	42736.78	14884.12
Al	6577.52	3712.54
Cd	0.50	0.60
Sb	1.22	1.76
Co	4.97	1.97
Sn	3.31	2.82
Mo	1.94	1.71
Sr	64.33	23.92

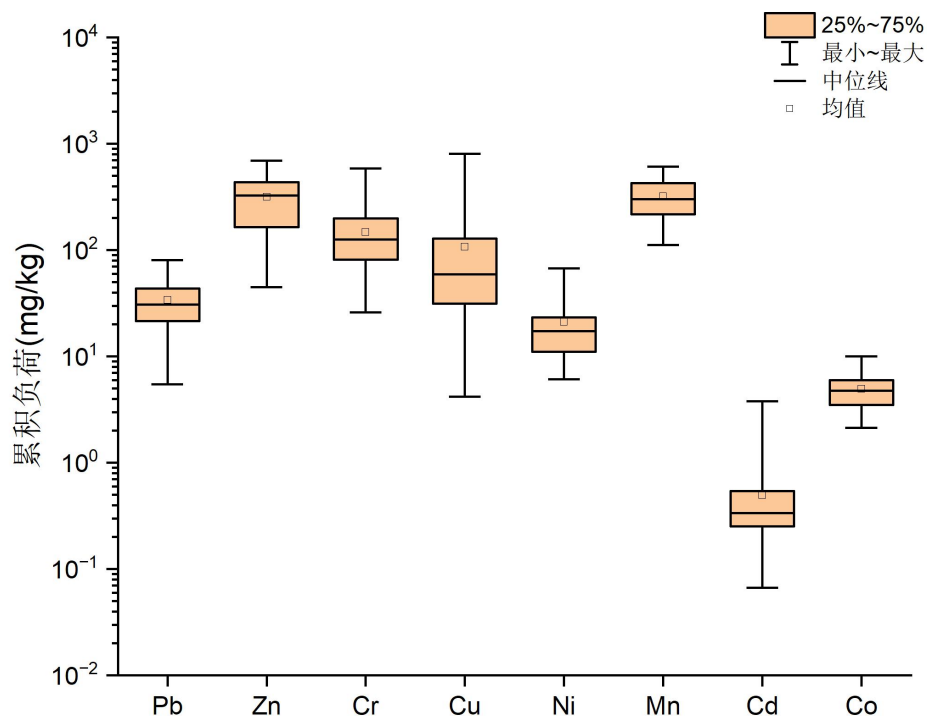


图 10-6 道路沉积颗粒物中 8 种重金属浓度

除了道路沉积颗粒物样品外，由于 SCMD 模型是源已知模型，还需要纳入污染源的信息，因此本应用案例还采集了道路周边土壤、车辆尾气、刹车磨损、轮胎磨损颗粒四种污染样品。其中道路周边土壤样品是在采集道路沉积颗粒物样品点位附近采集绿化带土壤，用挖土铲铲至绿化带表层以下 20 cm 收集土壤样品，装入聚乙烯自封袋后拿回实验室进行预处理与测定。其余污染源样品（刹车磨损、车辆尾气、轮胎磨损颗粒）则是在采样点附近停车场与汽修厂采集得到，部分重金属浓度数据参考之前的研究。因为不同城市的土壤特性存在一定的差异，但汽车尾气、轮胎磨损和刹车磨损产生的重金属浓度在不同城市间具有较高的相似性。所有污染源样品均使用 ICP-OES 和 ICP-MS 测定 19 种（Pb、Zn、Cr、Cu、Ni、Fe、Mn、Ba、Na、K、Mg、Ca、Al、Cd、Sb、Co、Sn、Mo 和 Sr）金属元素浓度。测定结果见图 10-7。

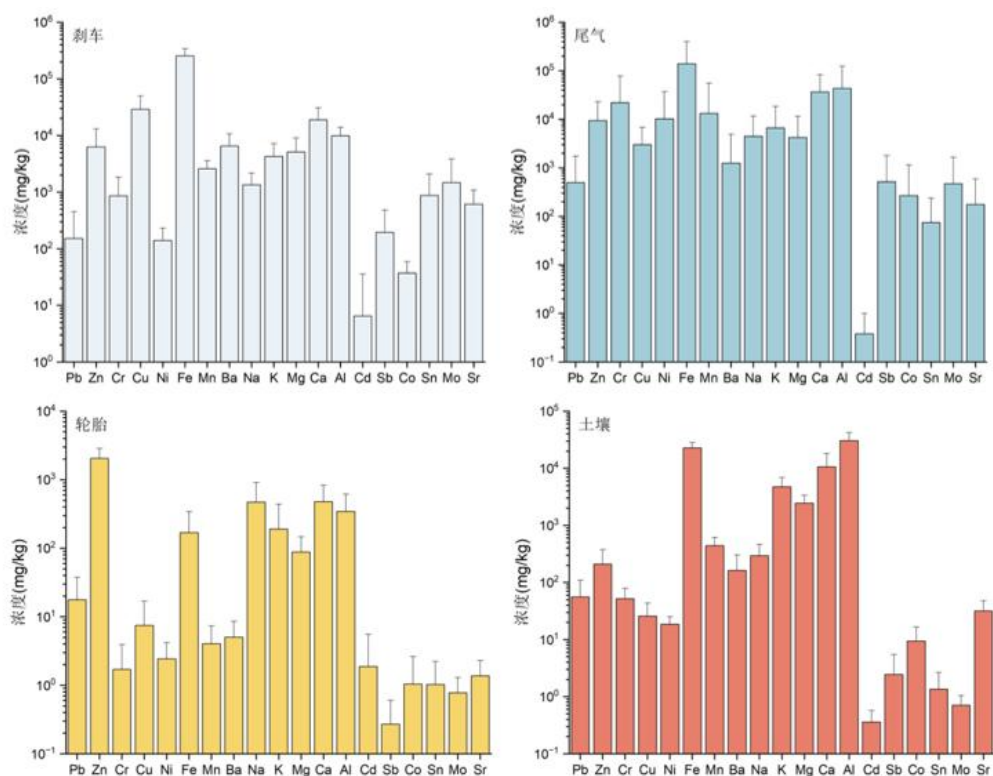


图 10-7 污染源样品浓度

将处理完成的数据纳入 SCMD 模型中进行源解析，通过 SCMD 模型定量源解析道路沉积颗粒物中四类污染源的质量贡献率及其对重金属负荷的分配比例。广州市道路沉积颗粒物的源解析质量贡献的结果如图 10-8 所示。

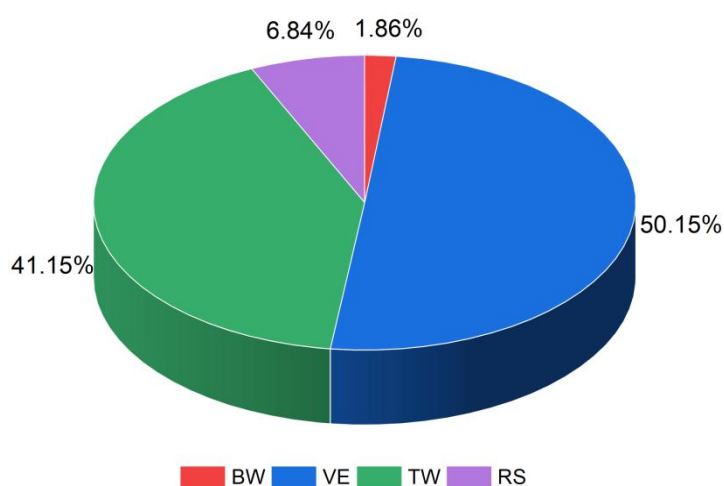


图 10-8 SCMD 模型对颗粒固体源的解析结果 (BW: 刹车磨损颗粒, VE: 尾气排放颗粒, TW: 轮胎磨损颗粒, RS: 路边土壤颗粒)

从图 10-8 中可以看出，车辆尾气（VE）对颗粒物的质量贡献率最高（50.15%），其次为轮胎磨损（TW，41.15%）、道路周边土壤（RS，6.84%）和刹车磨损（BW，1.86%）。汽车尾气中含有大量由燃料燃烧产生的微小颗粒物，这些颗粒物通过大气沉降机制（如干沉降和湿沉降）进入道路表面，尤其是在城市环境中受建筑物和交通活动的影响，颗粒物更容易在道路附近聚集。轮胎与路面之间的摩擦产生的颗粒物直接释放到道路表面，且这些颗粒在环境中较为稳定，不易降解，成为道路沉积颗粒物的重要组成部分。

进一步分析各污染源对 Pb、Zn、Cr、Cu、Ni、Mn 六种重金属的负荷分配（图 10-9）发现，不同交通排放源的贡献呈现显著特异性。从污染源维度看，车辆尾气（VE）对六种重金属的综合贡献率均值达 67.3%，尤其对 Cr（96.28%）和 Ni（95.41%）的贡献率超过 95%，其主导性贡献可能与燃油添加剂中的抗爆剂成分（如 Cr 用于柴油清净剂、Ni 基合金在发动机部件中的广泛使用）直接相关^[33]。轮胎磨损（TW）对 Zn 的贡献率为 37.01%，对 Pb 为 10.98%，这一特征与轮胎制造过程中 ZnO 作为硫化促进剂、历史 Pb 是稳定剂的添加工艺高度吻合^[35,36]，但对其他四种重金属贡献较低（<2.5%），表明其污染释放具有显著元素选择性。刹车磨损（BW）对 Cu 的贡献率较高（34.48%），这可能源于铜基刹车片的摩擦损耗机理^[32]。值得注意的是，道路周边土壤（RS）仅对 Pb（6.16%）和 Mn（5.13%）有微弱贡献，原因可能是研究区域背景土壤受历史污染累积的影响较小。

从元素维度分析，Cr 和 Ni 的污染负荷几乎完全由车辆尾气主导（VE 贡献率>95%），这与广州市柴油车保有量占比高的交通结构特征形成互证；而 Zn 的多元来源特征（VE 58.41%、TW 37.01%）反映出轮胎磨损与尾气排放的协同污染效应。这些结果表明，广州市道路

沉积颗粒物重金属污染具有鲜明的“交通源指纹”，车辆尾气和轮胎磨损的复合贡献占比达 65.16-96.3%，这与城市交通活动的高强度、车辆排放的化学复杂性以及亚热带湿润气候加速机械部件磨损的物理过程密切相关。这些结果表明，车辆尾气和轮胎磨损是广州市道路沉积颗粒物颗粒和重金属污染的主要来源，这与城市交通活动的高强度和车辆排放的复杂性密切相关。

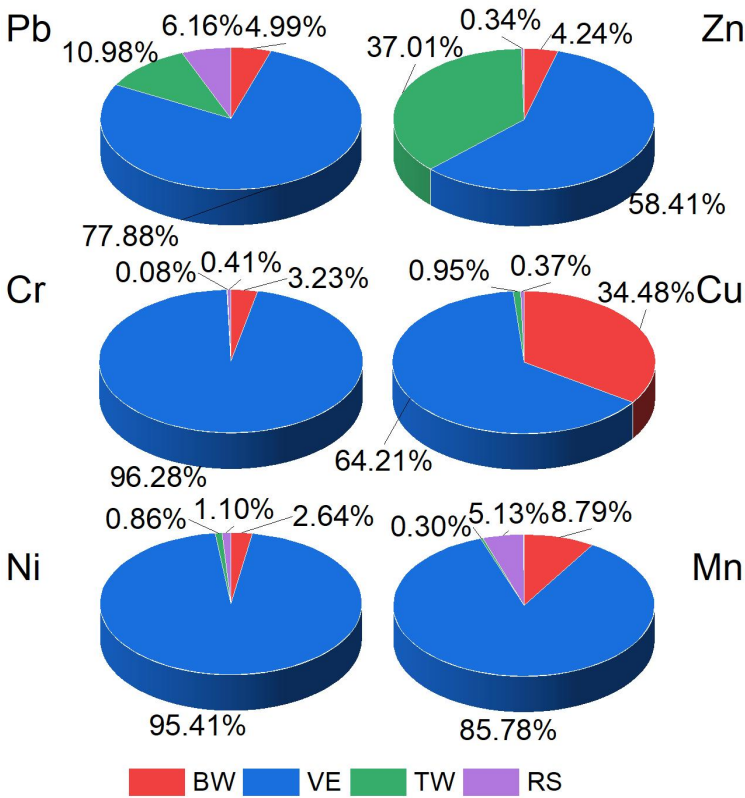


图 10-9 道路沉积颗粒物中重金属负荷贡献（BW：刹车磨损颗粒，VE：尾气排放颗粒，TW：轮胎磨损颗粒，RS：路边土壤颗粒）

附表

《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》征求意见采纳情况表

共征求 X 家单位意见，其中 X 家单位反馈意见 X 条，其他单位无意见，其中采纳 X 条，未采纳 X 条。

《道路沉积颗粒物 重金属来源解析技术规范 随机方法和元素指纹法》专家意见采纳情况

参考文献

- [1] DIETRICH M, O'SHEA M J, GIERÉ R, et al. Road sediment, an underutilized material in environmental science research: A review of perspectives on United States studies with international context [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2022, 432: 128604.
- [2] PAN H Y, LU X W, LEI K. A comprehensive analysis of heavy metals in urban road dust of Xi'an, China: Contamination, source apportionment and spatial distribution [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 609: 1361-1369.
- [3] BI C J, ZHOU Y, CHEN Z L, et al. Heavy metals and lead isotopes in soils, road dust and leafy vegetables and health risks via vegetable consumption in the industrial areas of Shanghai, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 619: 1349-1357.
- [4] SAFIUR RAHMAN M, KHAN M D H, JOLLY Y N, et al. Assessing risk to human health for heavy metal contamination through street dust in the Southeast Asian Megacity: Dhaka, Bangladesh [J]. *Science of The Total Environment*, 2019, 660: 1610-1622.
- [5] BALALI-MOOD M, NASERI K, TAHERGORABI Z, et al. Toxic Mechanisms of Five Heavy Metals: Mercury, Lead, Chromium, Cadmium, and Arsenic [J]. *Front Pharmacol*, 2021, 12: 643972.
- [6] ALENGBAWY A, ABDELKHALEK S T, QURESHI S R, et al. Heavy metals and pesticides toxicity in agricultural soil and plants: Ecological risks and human health implications [J]. *Toxics*, 2021, 9(3): 42.
- [7] COETZEE J J, BANSAL N, CHIRWA E M N. Chromium in environment, its toxic effect from chromite-mining and ferrochrome industries, and its possible bioremediation [J]. *Exposure and Health*, 2018, 12(1): 51-62.
- [8] LI J Y, DENG L M, YOU S H, et al. A comprehensive study of potentially toxic element contamination and source quantitative assessment by positive matrix factorization model: risk from the fine road dust of Chehe mining area, China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2023, 30(1): 1189-1200.
- [9] 邓文博, 刘文娟. 基于多属性决策方法的太原市冬季街道尘土中潜在有害元素关键来源解析 [J]. *环境科学*, 2023, 44(01): 38-47.
- [10] GAO S H, WANG X J, LI H, et al. Heavy metals in road-deposited sediment and runoff in urban and intercity expressways [J]. *Transportation Safety and Environment*, 2022, 4(1): ttab030.
- [11] MEN C, LIU R M, WANG Q R, et al. The impact of seasonal varied human activity on characteristics and sources of heavy metals in metropolitan road dusts [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 637: 844-854.
- [12] HUANG C S, ZHANG L J, MENG J L, et al. Characteristics, source apportionment and health risk assessment of heavy metals in urban road dust of the Pearl River Delta, South China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2022, 236: 113490.
- [13] TERAN K, ZIBRET G, FANETTI M. Impact of urbanization and steel mill emissions on elemental composition of street dust and corresponding particle characterization [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 384: 120963.
- [14] MEN C, LIU R, WANG Q, et al. Uncertainty analysis in source apportionment of heavy metals in road dust based on positive matrix factorization model and geographic information system [J]. *Science of The Total Environment*, 2019, 652: 27-39.
- [15] ZHU X, YU W, LI F, et al. Spatio-temporal distribution and source identification of heavy metals in particle size fractions of road dust from a typical industrial district

- [J]. *Science of The Total Environment*, 2021, 780:146357.
- [16] WANG J, HUANG J J, MULLIGAN C. Seasonal source identification and source-specific health risk assessment of pollutants in road dust [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2022, 29(7): 10063-10076.
- [17] FAISAL M, WU Z, WANG H, et al. Assessment and source apportionment of water-soluble heavy metals in road dust of Zhengzhou, China [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2022, 29(45): 68857-68869.
- [18] BURNETT A I, WISEMAN C L S, STYLER S A. Photochemical Production of Singlet Oxygen by Toronto Road Dust [J]. *Environmental Science & Technology*, 2025, 59(36): 19377-19386.
- [19] BRINKMAN G, VANCE G, HANNIGAN M P, et al. Use of synthetic data to evaluate positive matrix factorization as a source apportionment tool for PM exposure data [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(6): 1892-1901.
- [20] HONG N, GUAN Y, YANG B, et al. Quantitative source tracking of heavy metals contained in urban road deposited sediments [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2020, 393: 122362.
- [21] FIGUEIRA A, VAZ B. Survey on Synthetic Data Generation, Evaluation Methods and GANs [J]. *Mathematics-Basel*, 2022, 10(15).
- [22] HENRY R C, CHRISTENSEN E R. Selecting an appropriate multivariate source apportionment model result [J]. *Environmental Science & Technology*, 2010, 44(7): 2474-2481.
- [23] SHI G-L, ZENG F, LI X, et al. Estimated contributions and uncertainties of PCA/MLR-CMB results: Source apportionment for synthetic and ambient datasets [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(17): 2811-2819.
- [24] SHI G L, LI X, FENG Y C, et al. Combined source apportionment, using positive matrix factorization-chemical mass balance and principal component analysis/multiple linear regression-chemical mass balance models [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(18): 2929-2937.
- [25] TIAN Y Z, LIU G R, ZHANG C Y, et al. Effects of collinearity, unknown source and removed factors on the NCPCRCMB receptor model solution [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 81: 76-83.
- [26] ZHAO H T, LI X Y, WANG X M. Heavy Metal Contents of Road-Deposited Sediment along the Urban-Rural Gradient around Beijing and its Potential Contribution to Runoff Pollution [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(17): 7120-7127.
- [27] SHI H, WEI L, WANG C, et al. Relative error linear combination forecasting model based on uncertainty theory [J]. *Symmetry*, 2023, 15(7): 1379.
- [28] HONG N, ZHU P, LIU A. Modelling heavy metals build-up on urban road surfaces for effective stormwater reuse strategy implementation [J]. *Environmental Pollution*, 2017, 231(Pt 1): 821-828.
- [29] RIBEIRO M, DA SILVA R G, MARIANI V C, et al. Short-term forecasting COVID-19 cumulative confirmed cases: Perspectives for Brazil [J]. *Chaos Solitons Fractals*, 2020, 135: 109853.
- [30] BELIS C A, PERNIGOTTI D, KARAGULIAN F, et al. A new methodology to assess the performance and uncertainty of source apportionment models in intercomparison exercises [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, 119: 35-44.
- [31] KARAGULIAN F, BELIS C A. Enhancing source apportionment with receptor models to foster the air quality directive implementation [J]. *International Journal of Environmental Pollution*, 2012, 50(1-4): 190-199.
- [32] GIETL J K, LAWRENCE R, THORPE A J, et al. Identification of brake wear

- particles and derivation of a quantitative tracer for brake dust at a major road [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, 44(2): 141-146.
- [33] PULLES T, DENIER VAN DER GON H, APPELMAN W, et al. Emission factors for heavy metals from diesel and petrol used in European vehicles [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 61: 641-651.
- [34] ZHAO L, HU G, YAN Y, et al. Source apportionment of heavy metals in urban road dust in a continental city of eastern China: Using Pb and Sr isotopes combined with multivariate statistical analysis [J]. *Atmospheric Environment*, 2019, 201: 201-211.
- [35] COUNCELL T B, DUCKENFIELD K U, LANDA E R, et al. Tire-wear particles as a source of zinc to the environment [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, 38(15): 4206-4214.
- [36] ZHANG J, HUA P, KREBS P. The chemical fractionation and potential source identification of Cu, Zn and Cd on urban watershed [J]. *Water Science and Technology*, 2015, 72(8): 1428-1436.
- [37] JIANG H H, CAI L M, WEN H H, et al. An integrated approach to quantifying ecological and human health risks from different sources of soil heavy metals [J]. *Science of the Total Environment*, 2020, 701: 134466.
- [38] LIAO H-T, HSIEH P-Y, HOPKE P K, et al. Development and evaluation of an integrated method using distance- and probability-based profile matching approaches in receptor modeling [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2022, 13(6): 101423.
- [39] CAI A, ZHANG H, WANG L, et al. Source apportionment and health risk assessment of heavy metals in PM_{2.5} in Handan: A typical heavily polluted city in North China [J]. *Atmosphere*, 2021, 12(10): 240537037.
- [40] 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 [J]. *Science of The Total Environment*, 2016, 542(Pt A): 162-171.
- [41] HAN S-W, JOO H-S, SONG H-J, et al. Source apportionment of PM_{2.5} in daejeon metropolitan region during January and May to June 2021 in Korea using a hybrid receptor model [J]. *Atmosphere*, 2022, 13(11): 477.
- [42] HONG N, YANG B, TSANG D C W, et al. Comparison of pollutant source tracking approaches: Heavy metals deposited on urban road surfaces as a case study [J]. *Environmental Pollution*, 2020, 266(Pt 3): 115253.
- [43] TSENG Y L, WU C H, YUAN C S, et al. Inter-comparison of chemical characteristics and source apportionment of PM(2.5) at two harbors in the Philippines and Taiwan [J]. *Science of The Total Environment*, 2021, 793: 148574.
- [44] HOPKE P K. Review of receptor modeling methods for source apportionment [J]. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 2016, 66(3): 237-259.
- [45] DUAN Q, SOROOSHIAN S, GUPTA V. Effective and efficient global optimization for conceptual rainfall-runoff models [J]. *Water Resources Research*, 1992, 28(4): 1015-1031.
- [46] JAYARATHNE A, EGODAWATTA P, AYOKO G A, et al. Intrinsic and extrinsic factors which influence metal adsorption to road dust [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 618: 236-242.
- [47] MAHBUB P, GOONETILLEKE A, AYOKO G A. Prediction model of the buildup of volatile organic compounds on urban roads [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45(10): 4453-4459.