

基于逸度模型的成都市NO₂多介质环境中的分布研究

李昱昕, 曾胜兰

成都信息工程大学大气科学学院, 四川 成都

收稿日期: 2025年6月23日; 录用日期: 2025年8月27日; 发布日期: 2025年9月4日

摘要

为了研究成都市NO₂在多介质环境中的分布规律, 本文运用Mackay的III级逸度模型, 以质量守恒定律为基础, 依据研究区域的多介质环境(大气、水体、土壤、沉积物)特点, 选择逸度作为平衡判据, 建立本地化逸度模型, 研究成都市NO₂在多介质中的环境行为, 并通过改变环境温度和降水量研究气象条件的变化对NO₂在各环境相中迁移的影响。结果表明: (1) 在大气、水体、土壤、沉积物这四个环境相中, 水体相是NO₂主要的汇, 约占总储量的99%, 并且NO₂在研究区域内最主要的耗散途径是在水体中损失。NO₂在成都市各环境主相之间的迁移主要是以土壤-水体为主, 其次为大气-土壤, 两者分别占整体迁移通量的48%和49%; (2) 气象条件(环境温度、降水量)对所在研究区域成都市NO₂多介质环境中的迁移变化存在一定影响。水体-大气, 土壤-大气、沉积物-水体以及水体-沉积物相间NO₂的迁移速率随着温度的升高而增大, 自1月开始, 环境温度逐渐升高, 至7月达到最大值26.6℃, NO₂的相间迁移速率也增长到2023年间的最高峰; 降水量与水体-大气, 土壤-大气、沉积物-水体以及水体-沉积物相间NO₂的迁移速率呈反向变化的关系, 当降水量于7月达到最大值265.95 mm时, 四个相间NO₂的迁移速率对应为最小值。

关键词

NO₂, 成都市, 逸度模型, 分布规律

Research on the Distribution of NO₂ in the Multi-Media Environment of Chengdu Based on the Fugacity Model

Yuxin Li, Shenglan Zeng

School of Atmospheric Sciences, Chengdu University of Information Technology, Chengdu Sichuan

Received: Jun. 23rd, 2025; accepted: Aug. 27th, 2025; published: Sep. 4th, 2025

文章引用: 李昱昕, 曾胜兰. 基于逸度模型的成都市 NO₂ 多介质环境中的分布研究[J]. 气候变化研究快报, 2025, 14(5): 936-950. DOI: 10.12677/ccrl.2025.145093

Abstract

To investigate the distribution patterns of NO_2 in multimedia environments in Chengdu, this paper employs Mackay's Level III fugacity model. Based on the law of mass conservation and the characteristics of the multimedia environment (atmosphere, water, soil, and sediment) in the study area, fugacity is selected as the equilibrium criterion to establish a localized fugacity model. This model is used to study the environmental behavior of NO_2 in multimedia environments in Chengdu. Additionally, the impact of meteorological condition changes on the migration of NO_2 in various environmental phases is examined by altering environmental temperature and precipitation levels. The results indicate: (1) Among the four environmental phases (atmosphere, water, soil, and sediment), the aqueous phase serves as the primary sink for NO_2 , accounting for approximately 99% of the total inventory. The dominant dissipation pathway of NO_2 in the study area is loss in the aqueous phase. The primary migration routes of NO_2 among the major environmental phases in Chengdu are soil-water (48%) and atmosphere-soil (49%). (2) Meteorological conditions exert a discernible influence on the migration of NO_2 in Chengdu's multimedia environment. The migration rates of NO_2 across the water-atmosphere, soil-atmosphere, sediment-water, and water-sediment interfaces increase with rising temperature. Since January, the environmental temperature has gradually risen, reaching a maximum of 26.6°C in July. The inter-phase migration rate of NO_2 has also increased to its peak level during the year 2023. The relationship between precipitation and the migration rates of NO_2 between water - atmosphere, soil - atmosphere, sediment - water, and water - sediment shows an inverse variation. When precipitation peaks at 265.95 mm in July, the migration rates of NO_2 across the four interfaces reach their minimum values.

Keywords

NO_2 , Chengdu City, Degree Model, Distribution Law

Copyright © 2025 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

1.1. 背景意义

成都市作为中国西南地区最重要的经济带之一,近几十年来的工业发展迅速,尤其是在能源、化工、制造等领域,这些领域也是氮化合物的重要排放源。成都市大气污染具有复杂的时空分布特征,近年来,虽然空气污染治理已取得一定成效,但仍面临严峻挑战。

逸度模型利用逸度这一物理量,能够较为准确地描述污染物在不同环境介质中的分布与迁移过程。通过量化污染物的迁移转化,再结合多介质环境,使得逸度模型可以模拟污染物在各介质环境中的归趋。

鉴于以上与氮有关的环境影响,研究氮化合物在多介质中的环境行为,弄清氮化合物对自然环境影响的根源意义深重,本文以 NO_2 为例。

1.2. 研究现状

1.2.1. 氮在多介质环境中的分布情况研究进展

氮,符号 N,作为一种非金属化学元素,在自然界中分布广泛,不仅仅是构成生命体的重要组成成分,同时也是工农业生产、科学研究中不可缺少的无机元素之一,对于氮在不同介质中的环境行为的研究

究一直以来都备受关注,国内外学者们从不同角度,运用不同的方法研究氮在多介质环境中的分布特征。

大气中的氮主要以氮气的形式存在,占大气体积的 78%左右,此外,还有少量的氮氧化物,主要来源于燃烧过程和微生物代谢。Wim De Vries 等[1]研究发现氮在土壤中主要以无机氮和有机氮的形式存在,其具体的存在形态与土壤的 pH 值、有机质含量等因素密切相关。同时,李龙等[2]的研究表明了土壤全氮含量在不同地区和土壤类型中差异较大,其空间分布受到多种因素的影响,呈现出一定的规律性。最近的研究[3]表示:水环境中氮的时空变化受到自然因素和人为因素的综合影响。自然因素如降雨等季节性变化会引起水体氮的时空变化,而人为因素包括土地利用方式、工业废水和生活污水排放等。

1.2.2. 多介质逸度模型的研究进展

逸度(Fugacity)这一概念最早由吉尔伯特·牛顿·路易斯提出,是为描述物质从某一相中逃逸到相邻相的趋势,其量纲为帕斯卡[4]。张子慕等[5]研究发现:1979年,Donald Mackay 教授在多介质环境模型框架基础上,应用质量平衡原理,将传统浓度模型中的浓度用逸度替换,首次提出了一种基于逸度方法的多介质环境模型。这一模型的提出,使得复杂的模型结构与计算变得简便,并能更准确地对污染物环境行为进行描述。传统的逸度模型多为稳态模型,主要关注污染物在各环境介质中的平衡浓度分布。近年来,越来越多的研究开始采用动态模拟方法,能准确描述污染物在环境介质中的迁移转化过程。不断发展的逸度模型不仅应用于环境中污染物模拟与预测,在环境管理与污染控制决策等方面也被广泛应用。

2. 资料和方法

2.1. 研究区概况

成都市位于四川盆地西部(北纬 30°05'~31°26',东经 102°54'~104°53'),地处长江上游岷江流域,市域内地形多样,西部为山脉,东部为平原。成都是我国西南发达的经济区及人口稠密区,然而在经济快速增长的同时,与区域环境保护之间的矛盾也在不断深化,因此,研究污染物质 NO₂ 在多介质环境中分布迁移规律的意义重大。

本文通过逸度模型分析研究成都地区 NO₂ 的环境行为特点,表征其在多介质环境中的分布规律。

2.2. 研究方法

本文以成都市区作为研究区域,运用 Mackay 的 III 级逸度模型,以质量守恒定律为基础,依据研究区域的多介质环境(大气、水体、土壤、沉积物)特点,选择逸度作为平衡判据,并定义 Z 值和 D 值,建立本地化逸度模型,研究成都市 NO₂ 在多介质环境中的分布规律,再通过改变温度和降水量研究 NO₂ 的迁移变化。

研究方法流程图如图 1。

2.2.1. 逸度模型参数识别

逸度模型中最基本的参数包括:环境属性参数、污染物的理化性质参数以及污染物环境迁移参数,成都地区的环境属性参数(2023)如表 1 所示。

Table 1. Environmental attribute parameters of Chengdu area (2023)
表 1. 成都地区的环境属性参数(2023)

环境参数	数据值	环境参数	数据值
大气面积/m ²	1.43×10^{10}	土壤中固相体积分数(颗粒物)	0.5
水体面积/m ²	3.12×10^8	沉积物中固相体积分数	0.7
土壤面积/m ²	9.65×10^9	大气中水相体积分数	1.09×10^{-3}
沉积物面积/m ²	3.26×10^8	水体中水相体积分数	1

续表

植物面积/m ²	7.51×10^9	土壤中水相体积分数	0.3
大气厚度/m	1×10^4	沉积物中水相体积分数	0.3
水体深度/m	10	大气密度/(kg/m ³)	1.231
土壤深度/m	0.1	水体密度/(kg/m ³)	1×10^3
沉积物深度/m	0.2	土壤相密度/(kg/m ³)	1.86×10^2
大气体积/m ³	1.43×10^{14}	沉积物密度/(kg/m ³)	1.87×10^2
水体体积/m ³	3.12×10^9	大气中固体的密度/(kg/m ³)	1.5×10^3
土壤体积/m ³	9.65×10^8	水体中固体的密度/(kg/m ³)	2.4×10^3
沉积物体积/m ³	6.5×10^7	土壤中固体的密度/(kg/m ³)	2.4×10^3
大气中气相体积分数	1	沉积物中固体的密度/(kg/m ³)	2.4×10^3
水体中气相体积分数	1×10^{-4}	大气中有机碳含量	2
土壤中气相体积分数	0.2	水体中有机碳含量	0.02
沉积物中气相体积分数	0.1	土壤中有机碳含量	0.02
大气中固相体积分数	4.17×10^{-8}	沉积物中有机碳含量	0.04
水体中固相体积分数	4×10^{-7}	植物中酯类体积分数	0.02

注：表中参数均来源于文献[6]-[12]。

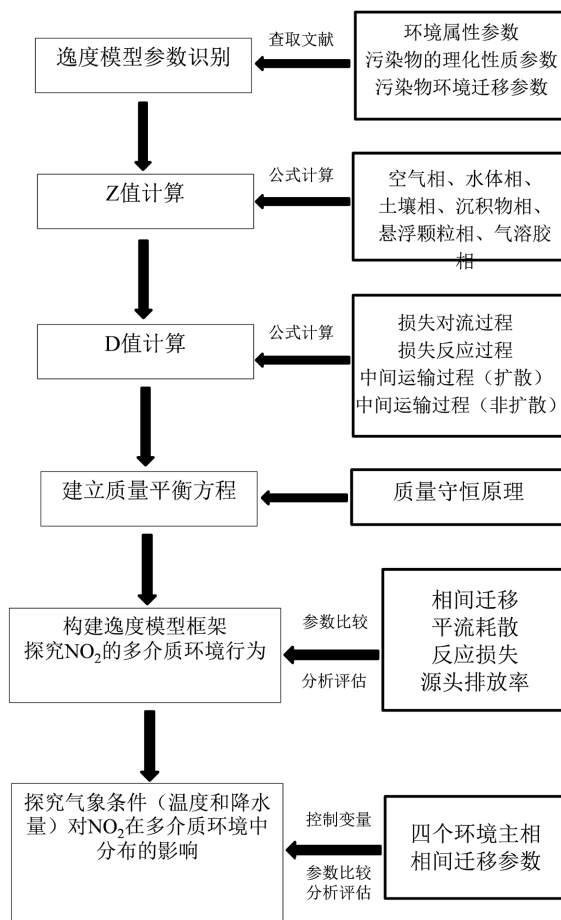


Figure 1. Schematic diagram of the research method

图 1. 研究方法示意图

本文通过查阅相关文献以及资料, 搜集到 NO₂ 的理化性质如表 2。

Table 2. Physical and chemical properties of NO₂
表 2. NO₂ 的理化性质参数

化学物质	NO ₂ (二氧化氮)
摩尔质量(g/mol)	46
亨利常数((Pa·m ³)/mol)	8.21
熔点(°C)	-11.2
沸点(°C)	21.1

另外, 调研收集了 NO₂ 的环境迁移参数见表 3。

Table 3. Environmental migration parameters of NO₂
表 3. NO₂ 的环境迁移参数

环境迁移参数	数据值	环境迁移参数	数据值
气/水界面气侧质量传输系数/(m/h)	3	沉积物埋藏速率/(m/h)	3.4×10^{-8}
气/水界面水侧质量传输系数/(m/h)	0.03	气/不透水层气侧质量传输系数/(m/h)	56.34
降水速率/(m/h)	9.7×10^{-5}	凋落物凋落速率常数/(h ⁻¹)	2.31×10^{-4}
清除率	200,000	叶子蜡侵蚀质量传输系/(m/h)	8.05×10^{-8}
干沉降速率/(m/h)	10.8	不透水层冲刷速率常数	0.25
气/土界面气侧质量传输系数/(m/h)	1	不透水层 - 水质量传输系数/(m/h)	3.50×10^{-8}
分子在土壤中扩散路径长/(m/h)	0.05	气/松针界面扩散质量传输系数/(m/h)	9
空气中分子扩散系数/(m ² /h)	0.04	叶表皮浸透速率	2.34×10^{-6}
水中分子扩散系数/(m ² /h)	4.00×10^{-6}	叶侧质量传输系数/(m/h)	取值不同
沉积物空隙水中分子有效扩散系数/(m ² /h)	2.49×10^{-6}	叶截流分数	0.1
来自土壤的水径流速率/(m/h)	3.9×10^{-5}	颗粒干沉降至叶表面速率/(m/h)	15
来自土壤中固体的流失速率/(m/h)	2.30×10^{-8}	不透水层渗透速率/(m/s)	2.34×10^{-6}
水/沉积物界面水侧质量传输系数/(m/h)	0.01	不透水层侧质量传输系数/(m/h)	取值不同
分子在沉积物中扩散路径长度/m	0.005	向更高处的迁移速率/(m/h)	0.01 (90 m/a)
沉积物沉降速率/(m/h)	4.6×10^{-8}	气溶胶的体积分数	30×10^{-12}
沉积物再悬浮速率/(m/h)	1.1×10^{-8}	水从底泥向地下水过滤速率/(m ³ /(m ² ·h))	3.9×10^{-5}

注: 表中参数均来源于文献[6] [13]-[17]。

2.2.2. 逸度容量 Z 值的计算

逸度容量(Z 值)是逸度模型中的核心参数, 表示单位逸度下某介质对污染物的容纳能力, 单位为 mol/(Pa·m³)。多介质环境中, 常把环境主相的逸度容量值定义为所选取主相中各环境子相的逸度容量与其在所选取主相中所占有的体积百分数之和, 即: $Z = \sum Z_n \cdot v_n$ 。而环境主相可分为空气相、水体相、土壤相、沉积物相、悬浮颗粒物相、气溶胶相这六个子相, 环境主相的总逸度容量为这六个子相的逸度容量之和, 即: $Z_{total} = Z_{Air} \cdot v + Z_{Water} \cdot v + Z_{Soil} \cdot v + Z_{Sediment} \cdot v + Z_{SusParticles} \cdot v + Z_{Aerosol} \cdot v$ 。氮元素在多介质环境中的逸度容量 Z 值计算公式如表 4:

Table 4. Calculation table of fugacity capacity Z value in multi-medium environment**表 4.** 多介质环境中的逸度容量 Z 值计算表

环境子相	逸度容量 Z 值计算公式($\text{mol}/(\text{Pa}\cdot\text{m}^3)$)
空气相	$Z_{\text{Air}} = K_{\text{AW}}/H$
水体相	$Z_{\text{Water}} = 1/H$
土壤相	$Z_{\text{Soil}} = K_{\text{SW}}/H$
沉积物相	$Z_{\text{Sediment}} = K_{\text{SedW}}/H$
悬浮颗粒相	$Z_{\text{SuspendedParticles}} = K_{\text{SPW}}/H$
气溶胶相	$Z_{\text{Aerosol}} = K_{\text{AeA}} \cdot Z_{\text{Air}}$

其中: H 为亨利常数, 单位为 $(\text{Pa}\cdot\text{m}^3)/\text{mol}$, K_{AW} 即空气 - 水分配系数, 描述某种化学物质在空气和水相之间达到平衡时的分配比例。 $K_{\text{SW}}(K_{\text{SedW}})$ 为土壤(或沉积物) - 水分配系数, 定量描述某种化学物质在土壤(或沉积物)和水相之间达到平衡时的分配比例。 K_{SPW} 即悬浮颗粒 - 水分配系数, 描述污染物在水体悬浮颗粒和水相之间的平衡分配关系。 K_{AeA} 为气溶胶 - 空气分配系数, 描述污染物在气溶胶颗粒物和气相之间的平衡分配关系。

2.2.3. 传输参数 D 值的计算

化学物在介质间的传输系数和迁移系数(D 值), 单位 $\text{mol}/(\text{Pa}\cdot\text{h})$, 传输系数表征污染物在两种介质界面间的跨相转移速率, 迁移系数则定量描述了污染物在多介质环境中的综合迁移能力。具体计算公式如下:

(1) 损失对流过程

$$D_{\text{Air}} = Z_{\text{Air}} \cdot \text{AirFlowR} \quad (2-1)$$

$$D_{\text{Soil}} = Z_{\text{Soil}} \cdot \text{SoilFlowR} \quad (2-2)$$

$$D_{\text{Water}} = Z_{\text{Water}} \cdot \text{WaterFlowR} \quad (2-3)$$

$$D_{\text{Sediment}} = Z_{\text{Sediment}} \cdot \text{SedimentFlowR} \quad (2-4)$$

$$D_{\text{SuspParticles}} = Z_{\text{SuspParticles}} \cdot \text{SuspFlowR} \quad (2-5)$$

$$D_{\text{Aerosol}} = Z_{\text{Aerosol}} \cdot \text{AerosolFlowR} \quad (2-6)$$

(2) 损失反应过程

$$D_{\text{Air_Reac}} = Z_{\text{Air}} \cdot v \cdot k_{\text{Air}} \quad (2-7)$$

$$D_{\text{Water_Reac}} = Z_{\text{Water}} \cdot v \cdot k_{\text{Water}} \quad (2-8)$$

$$D_{\text{Soil_Reac}} = Z_{\text{Soil}} \cdot v \cdot k_{\text{Soil}} \quad (2-9)$$

$$D_{\text{Sediment_Reac}} = Z_{\text{Sediment}} \cdot v \cdot k_{\text{Sediment}} \quad (2-10)$$

$$D_{\text{SuspParticles_Reac}} = Z_{\text{SuspParticles}} \cdot v \cdot k_{\text{Soil}} \quad (2-11)$$

$$D_{\text{Aerosol_Reac}} = Z_{\text{Aerosol}} \cdot v \cdot k_{\text{Aerosol}} \quad (2-12)$$

(3) 中间运输过程(非扩散)

$$D_{\text{Rain_AW}} = Z_{\text{Water}} \cdot S_{\text{Water}} \cdot TV_{\text{Rain}} \quad (2-13)$$

$$D_{\text{Rain_AS}} = Z_{\text{Water}} \cdot S_{\text{Soil}} \cdot TV_{\text{Rain}} \quad (2-14)$$

$$D_{Aerosol_AW} = Z_{Aerosol} \cdot S_{Water} \cdot TV_{Aero} \quad (2-15)$$

$$D_{Aerosol_AS} = Z_{Aerosol} \cdot S_{Soil} \cdot TV_{Aero} \quad (2-16)$$

$$D_{Runoff_SoW} = Z_{Water} \cdot S_{Soil} \cdot TV_{Soil_Water} \quad (2-17)$$

$$D_{Runoff_SoS} = Z_{Soil} \cdot S_{Soil} \cdot TV_{Soil_Solid} \quad (2-18)$$

$$D_{Sediment_Deposition} = Z_{Sediment} \cdot S_{Sed} \cdot TV_{Sed_De} \quad (2-19)$$

$$D_{Sediment_Resuspension} = Z_{Sediment} \cdot S_{Sed} \cdot TV_{Sed_Re} \quad (2-20)$$

(4) 中间运输过程(扩散)

$$D_{MTC_AW} = Z_{Air} \cdot S_{Water} \cdot MTC_AW \quad (2-21)$$

$$D_{MTC_WA} = Z_{Water} \cdot S_{Water} \cdot MTC_WA \quad (2-22)$$

$$D_{MTC_SA_A} = Z_{Air} \cdot S_{Soil} \cdot MTC_SoA \quad (2-23)$$

$$D_{MTC_SA_W} = Z_{Water} \cdot S_{Soil} \cdot MTC_WSed \quad (2-24)$$

$$D_{MTC_SA_B} = Z_{Air} \cdot S_{Soil} \cdot MTC_SoABL \quad (2-25)$$

$$D_{MTC_SedW_Total} = Z_{Water} \cdot S_{Sediment} \cdot MTC_WSed \quad (2-26)$$

2.2.4. 建立质量平衡方程

化学物质质量平衡方程: 生成 + 输入 = 消耗 + 输出 + 积累 = 所有损失的总和。

定义: E_i 是排放速率(mol/h); G_A 是平流流入速率(m^3/h); C_{Bi} 是平流流入浓度(mol/m); D_{ij} 是介质 i 和 j 之间的 D 值; D_{Ri} 是反应速率 D 值; D_{Ai} 是平流速率 D 值; D_{Ti} 是介质 i 中所有损失 D 值的总和。

(1) 空气(下标 1):

$$E_1 + D_{A1}C_{B1} + f_2D_{21} + f_4D_{41} = f_1(D_{12} + D_{14} + D_{R1} + D_{A1}) = f_1D_{T1} \quad (2-27)$$

(2) 水体(下标 2):

$$E_2 + D_{A2}C_{B2} + f_1D_{12} + f_3D_{32} + f_4D_{42} = f_2(D_{21} + D_{24} + D_{R2} + D_{A2}) = f_2D_{T2} \quad (2-28)$$

(3) 土壤(下标 3):

$$E_3 + f_1D_{13} = f_3(D_{31} + D_{32} + D_{R3}) = f_3D_{T3} \quad (2-29)$$

(4) 沉积物(下标 4):

$$E_{34} + f_2D_{24} = f_{34}(D_{42} + D_{R4} + D_{A4}) = f_4D_{T4} \quad (2-30)$$

2.2.5. 逸度模型框架及氮化合物主要环境行为

不同形态的氮化合物在多介质环境中的迁移形式是多样的, 氮化合物在多介质环境中的迁移状况见图 2。

如图 3 所示, 字母角标 i 和 j 分别代表了不同的主相, 其中, f_i 代表环境相 i 的逸度(Pa), E_i 代表目标污染物向环境相 i 的源排放速率(mol/h), G_{Ai} 代表环境相 i 的平流速率(m^3/h), C_{Bi} 代表相邻区域内的污染物通过平流输送进入介质相 i 的平流速率(mol/ m^3), D_{ij} 代表污染物从环境相 i 进入环境相 j 的速率(mol/(Pa·h)), D_{Ai} 为污染物在环境相 i 中的平流速率(mol/(Pa·h)), D_{Ri} 代表污染物在环境相 i 中的降解速度(mol/(Pa·h))。

2.2.6. 气象条件对 NO₂ 在多介质环境中分布的影响

除开自身所具有的理化性质参数, NO₂ 在各个环境相的分布规律在一定程度上也受到气象条件的影响。选择水体-大气、土壤-大气、水体-沉积物和沉积物-水体这四例典型环境相之间的相间迁移参数作为考察目标参数。为了保证仅探究气象条件(环境温度、降水量)对 NO₂ 迁移分布的影响, 其余环境条件均不改变, 即采用控制变量法模拟 2023 年 1 月~2023 年 12 月 NO₂ 分布随环境温度与降水量变化的情况。

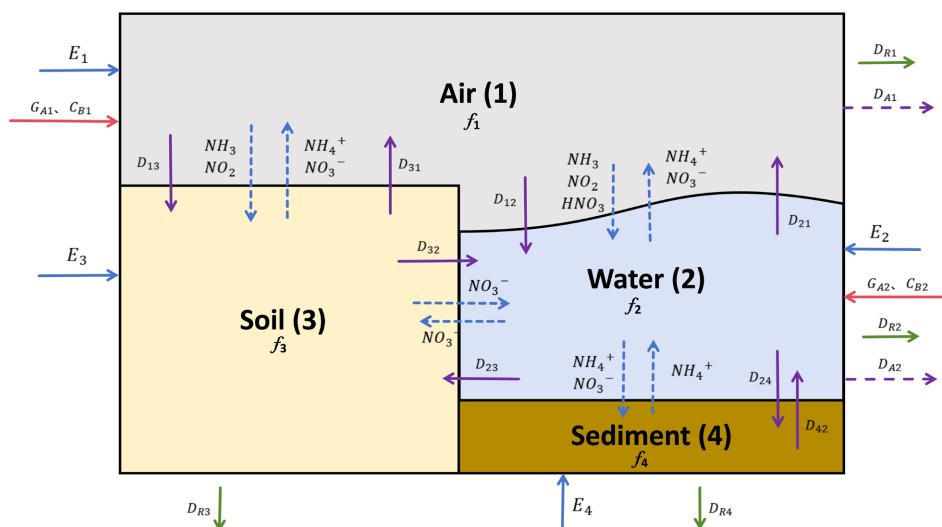


Figure 2. Framework diagram of multi-medium fugacity model

图 2. 多介质逸度模型框架图

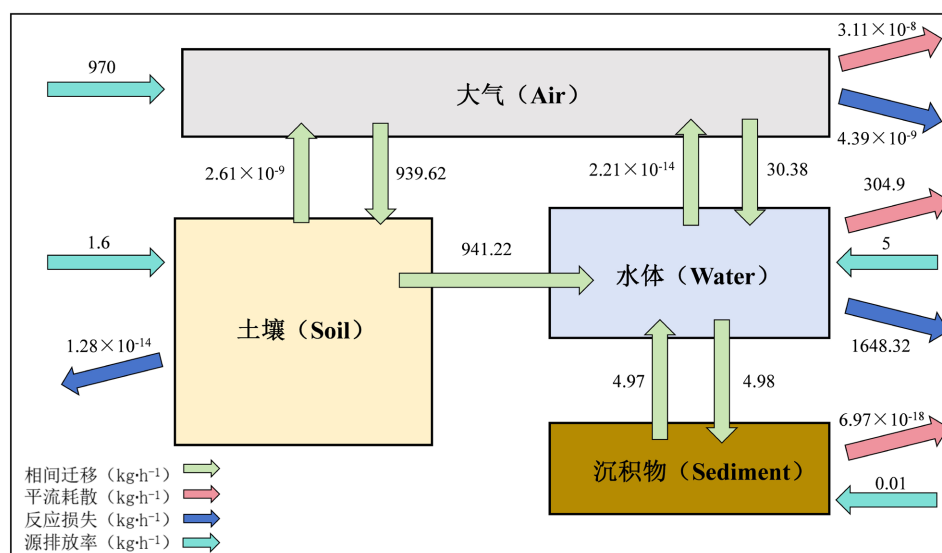


Figure 3. NO₂ Migration and transformation status in the multi-medium environment of Chengdu

图 3. NO₂ 在成都市多介质环境中的迁移、转化状况图

3. 研究结果

3.1. NO₂ 多介质环境中的分布迁移特征

本节内容展示 NO₂ 在模型所设定的标准条件(环境温度 25℃、降水量 1 mm、风速 3 m/s、相对湿度

0.6)下的分布迁移特征。

3.1.1. NO₂ 的逸度容量 *Z* 值与传输参数 *D* 值

NO₂ 的逸度容量 *Z* 值与传输参数 *D* 值如表 5。综合表中信息，能够明显看出：NO₂ 的 *Z* 值和 *D* 值均在水体相中呈现最大值，在大气相中则均表现为最小值。而土壤相和沉积物相的 *Z* 值和 *D* 值则介于两者之间。

Table 5. NO₂ Freedom capacity *Z* value (mol/(Pa·m³)) and transmission parameters *D* value (mol/(Pa·h))
表 5. NO₂ 逸度容量 *Z* 值(mol/(Pa·m³))与传输参数 *D* 值(mol/(Pa·h))

NO ₂	大气	水体	土壤	沉积物
<i>Z</i> 值	4.03×10^{-4}	2.61×10^{13}	5.22×10^3	1.04×10^3
<i>D</i> 值	2.52×10^{19}	1.68×10^{22}	8.50×10^{18}	9.82×10^{18}

3.1.2. NO₂ 的相间迁移通量值

通过应用 Matlab 程序，运用多介质逸度模型对 NO₂ 的相间迁移通量值进行计算，得到结果见表 6：

Table 6. NO₂ Advection dissipation rate and reaction loss rate (kg/h)
表 6. NO₂ 平流耗散速率及反应损失速率(kg/h)

NO ₂	大气	水体	土壤	沉积物
平流耗散	3.11×10^{-8}	304.9	0	6.97×10^{-18}
反应损失	4.39×10^{-9}	1648.32	1.28×10^{-14}	0

如表 6 所示：成都市内的 NO₂ 主要以水体中反应损失与平流耗散的形式流出所研究区域，占比 83% 和 15%；其次是大气的平流耗散与反应损失，占比约 1%；沉积物的平流耗散与土壤的反应损失也是 NO₂ 的输出途径。因成都地区拥有丰富的水资源，且受盆地地形影响，水体的流动速率较大气而言更快。

NO₂ 在成都市多介质环境中的迁移、转化状况见图 3。

NO₂ 进入研究区域的主要形式是通过大气排放，速率可达到 970 kg/h，占据整体的 99%，其次是水相排放和土壤相排放，占比 1%，而由沉积物相进入研究区域的方式最为缓慢。成都市区内车流密集，机动车尾气排放是造成 NO₂ 进入研究区域的主要因子；成都市区外工业园区众多，也是导致 NO₂ 进入研究区域的重要因素。同时，不难发现 NO₂ 在成都市各环境主相之间的迁移主要是土壤 - 水体，其次为大气 - 土壤，两者分别占整体迁移通量的 48%和 49%；再次之的是大气 - 水体、水体 - 沉积物。

3.1.3. NO₂ 多介质环境中的逸度与浓度

通过运行 Matlab 程序，结合前序过程所已经得到的 NO₂ 多介质环境中的各项指标，综合得到了成都地区 NO₂ 多介质环境中的逸度与浓度，结果如表 7 所示：

Table 7. NO₂ Fugacity (Pa) and Concentrations(mol/m³) of Chengdu
表 7. 成都市 NO₂ 逸度(Pa)与浓度(mol/m³)

NO ₂	大气	水体	土壤	沉积物
逸度	8.37×10^{-16}	1.27×10^{-18}	2.08×10^{-15}	1.28×10^{-18}
浓度	3.37×10^{-19}	3.31×10^{-5}	1.09×10^{-12}	1.00×10^{-20}

通过应用 Level III 逸度模型模拟预测了成都市 NO₂ 在多介质环境中的跨环境相迁移分布特征，可以

明显看到 NO₂ 在成都市的四个环境主相：大气、水体、土壤、沉积物中的浓度总量分别是 3.37×10^{-19} mol/m³、 3.31×10^{-5} mol/m³、 1.09×10^{-12} mol/m³、 1.00×10^{-20} mol/m³。其中，在稳态条件下，水体中 NO₂ 含量约占总量的 99%，是 NO₂ 的主要汇。

3.2. 气象条件对 NO₂ 在多介质环境中分布的影响

通过搜集中央气象台资料，获取 2023 年成都市逐月平均气温(°C)和降水量(mm)见表 8：

Table 8. Monthly average temperature (°C) and precipitation (mm) of Chengdu in 2023
表 8. 2023 年成都市逐月平均气温(°C)和降水量(mm)

月份	平均气温	降水量
1	5.85	3.63
2	9.5	13.27
3	13.48	46.38
4	18.45	70.66
5	21.1	100.21
6	24.11	69.6
7	26.6	265.95
8	25.62	222.5
9	22.96	136.1
10	17.25	61.63
11	13.21	28.83
12	7.56	0.43

3.2.1. 环境温度对 NO₂ 在多介质环境中分布的影响

将表 8 中 2023 年成都市逐月平均气温(°C)带入 Matlab 程序，保持其他环境条件一致，得到 NO₂ 在四个环境相中的平流耗散速率(kg/h)和反应损失速率(kg/h)如表 9：

Table 9. NO₂ Streamwise dissipation rate (kg/h)
表 9. NO₂ 的平流耗散速率(kg/h)

月份	温度(°C)	大气	水体	土壤	沉积物
/	25	3.11×10^{-8}	304.9	0	6.97×10^{-18}
1	5.85	7.17×10^{-9}	719.8	0	1.67×10^{-17}
2	9.5	9.47×10^{-9}	623.42	0	1.43×10^{-17}
3	13.48	1.28×10^{-8}	526.7	0	1.20×10^{-17}
4	18.45	1.88×10^{-8}	420.1	0	9.59×10^{-18}
5	21.1	2.30×10^{-8}	370.04	0	8.45×10^{-18}
6	24.11	2.9×10^{-8}	318.88	0	7.28×10^{-18}
7	26.6	3.51×10^{-8}	281	0	6.42×10^{-18}
8	25.62	3.26×10^{-8}	295.44	0	6.75×10^{-18}
9	22.96	2.66×10^{-8}	337.72	0	7.72×10^{-18}
10	17.25	1.71×10^{-8}	444.34	0	1.02×10^{-17}
11	13.21	1.29×10^{-8}	532.96	0	1.22×10^{-17}
12	7.56	8.17×10^{-9}	672.84	0	1.55×10^{-17}

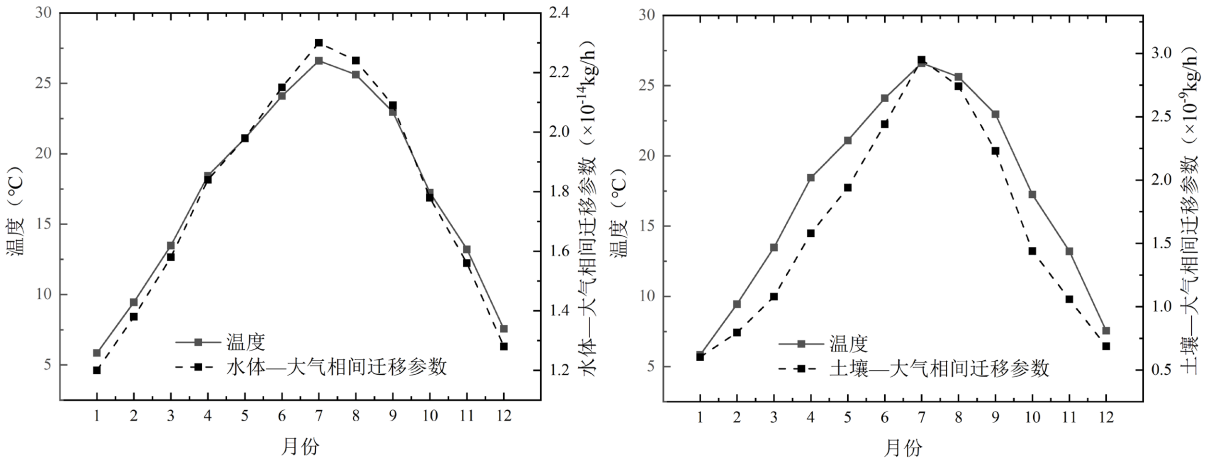
大气相中 NO₂ 的平流耗散速率随温度升高而增大, 随温度降低而减小。自 1 月到 7 月, 环境温度不断升高, 而随着温度升高, 其平流耗散速率也随之增大, 变化符合温度升高会促进分子运动的一般规律。NO₂ 的平流耗散速率在水体中随温度升高或降低呈现反向变化关系, 出现此结果的原因可能与 NO₂ 的物理性质有关, 比如温度变化引起 NO₂ 在水中溶解度的改变。而沉积物相中的平流耗散速率随着温度的改变存在缓慢变化, 在 5.85℃~26.6℃这一区间范围, NO₂ 的平流耗散速率整体降幅约 62%。

NO₂ 的反应损失速率见表 10:

Table 10. Reaction loss rate of NO₂ (kg/h)
表 10. NO₂ 的反应损失速率(kg/h)

月份	温度(℃)	大气	水体	土壤	沉积物
/	25	4.39×10^{-9}	1648.32	1.28×10^{-14}	0
1	5.85	3.21×10^{-10}	1233.42	9.74×10^{-15}	0
2	9.5	5.29×10^{-10}	1329.8	1.03×10^{-14}	0
3	13.48	9.12×10^{-10}	1426.52	1.11×10^{-14}	0
4	18.45	1.80×10^{-9}	1533.12	1.19×10^{-14}	0
5	21.1	2.58×10^{-9}	1583.16	1.23×10^{-14}	0
6	24.11	3.89×10^{-9}	1634.34	1.27×10^{-14}	0
7	26.6	5.47×10^{-9}	1672.22	1.30×10^{-14}	0
8	25.62	4.78×10^{-9}	1657.78	1.29×10^{-14}	0
9	22.96	3.33×10^{-9}	1615.5	1.25×10^{-14}	0
10	17.25	1.52×10^{-9}	1508.88	1.17×10^{-14}	0
11	13.21	8.78×10^{-10}	1420.26	1.10×10^{-14}	0
12	7.56	4.06×10^{-10}	1279.38	9.97×10^{-15}	0

与平流耗散过程类似, NO₂ 在大气、水体、土壤相中的反应损失速率随着温度的升高而增大, 与标准温度时的反应损失速率对比, 计算得出 25℃时大气相中的速率比 5.85℃时的速率高约 37%。而 1 月至 7 月, NO₂ 在水体中的反应损失速率从 1233.42 kg/h 增加到 1672.22 kg/h, 速率提升 35.6%, 达到 2023 年的峰值, 究其原因可能是 NO₂ 的水解反应。另外 2023 年下半年(7 月至 12 月), 温度每降低 3℃, NO₂ 在土壤相中的反应损失速率降低约 3%。



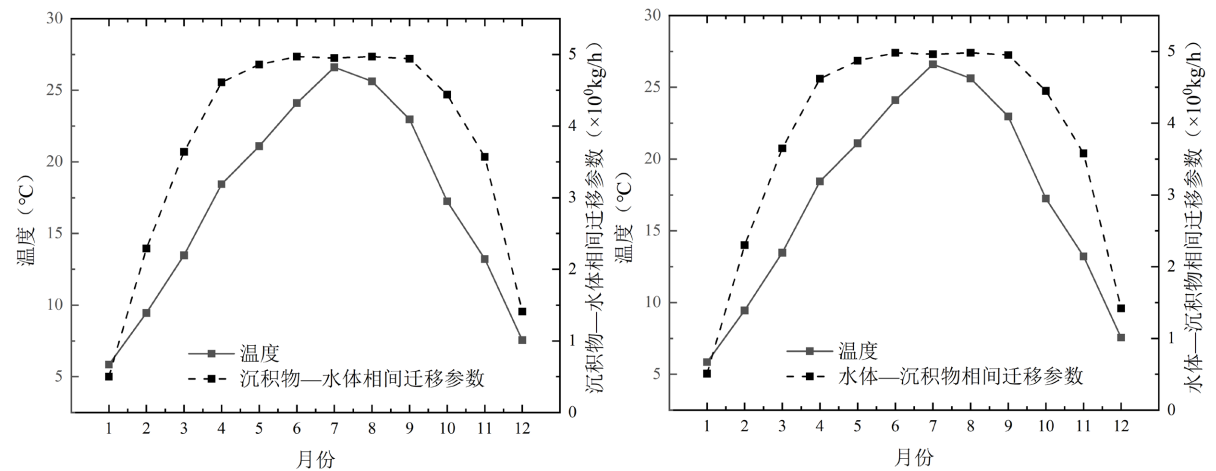


Figure 4. Trend graphs of interphase migration rate parameters of water-air, soil-air, sediment-water, and water-sediment with temperature variations

图 4. 水体 - 大气、土壤 - 大气、沉积物 - 水体、水体 - 沉积物相间迁移速参数随温度变化趋势图

NO_2 在水体 - 大气、土壤 - 大气、沉积物 - 水体、水体 - 沉积物相间迁移速参数随温度变化趋势见图 4。

结果显示, NO_2 的水体 - 大气、土壤 - 大气相间的迁移速率随着环境温度的升高/降低, 均显现出了上升/下降趋势, 且相间迁移速率最大值所出现的时间, 正好与平均温度最高的月份相对应。土壤 - 大气相间, 升温所带来的迁移速率增幅可达 12% 至 15%。虽然温度升高会导致 NO_2 的迁移速率增大, 但环境中源和汇的关系并没有发生改变。水体 - 沉积物、沉积物 - 水体相间的 NO_2 迁移速率也存在着与水体 - 大气、土壤 - 大气相间类似的规律, 但与之不同的是, 水体 - 沉积物与沉积物 - 水体相间的 NO_2 迁移速率不存在峰值。

3.2.2. 降水量对 NO_2 在多介质环境中分布的影响

将表 10 中 2023 年成都市逐月降水量(mm)带入 Matlab 程序, 保持其他环境条件一致, 得到 NO_2 在四个环境相中的平流耗散速率(kg/h)和反应损失速率(kg/h)如表 11:

Table 11. NO_2 Streamwise dissipation rate (kg/h)

表 11. NO_2 的平流耗散速率(kg/h)

月份	降水量(mm)	大气	水体	土壤	沉积物
/	1	3.11×10^{-8}	304.9	0	6.97×10^{-18}
1	3.63	8.55×10^{-9}	784.64	0	4.94×10^{-18}
2	13.27	2.34×10^{-9}	1387.82	0	2.4×10^{-18}
3	46.38	6.69×10^{-10}	1749.32	0	8.74×10^{-19}
4	70.66	4.39×10^{-10}	1814.4	0	5.99×10^{-19}
5	100.21	3.10×10^{-10}	1853.24	0	4.36×10^{-19}
6	69.6	4.46×10^{-10}	1812.44	0	6.08×10^{-19}
7	265.95	1.17×10^{-10}	1914.3	0	1.78×10^{-19}
8	222.5	1.4×10^{-10}	1906.88	0	2.09×10^{-19}
9	136.1	2.28×10^{-10}	1878.6	0	3.29×10^{-19}
10	61.63	5.04×10^{-10}	1975.7	0	6.78×10^{-19}
11	28.83	1.08×10^{-9}	1644.78	0	1.31×10^{-18}
12	0.43	7.22×10^{-8}	143.91	0	7.64×10^{-18}

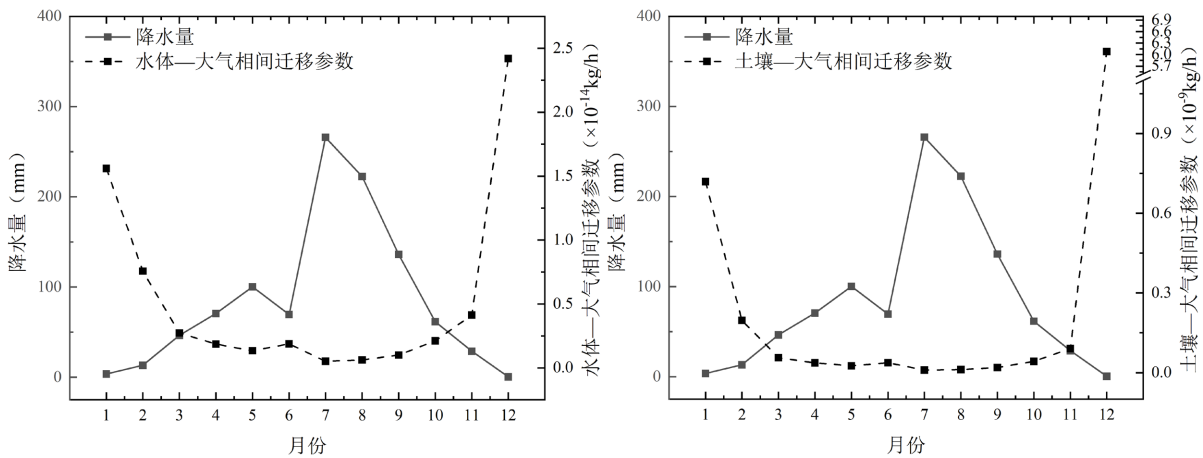
大气相中：随着降水量的增加，NO₂的平流耗散速率逐渐减小。自1月到5月，月度降水量不断升高，但NO₂的平流耗散速率却不断减小，降幅接近96%。水体相中：NO₂的平流耗散速率随降水量升高而呈现为增大的趋势。当降水量从3.63 mm升至100.21 mm时，NO₂的平流耗散速率增幅约57%。但当降水量增长至超过200 mm时，NO₂的平流耗散速率虽在缓慢增加却基本稳定。沉积物相中：NO₂的平流耗散速率随着降水量的增加而缓慢减小，且其平流耗散速率极低。

NO₂的反应损失速率见表12：

Table 12. Reaction loss rate of NO₂ (kg/h)
表 12. NO₂ 的反应损失速率(kg/h)

月份	降水量(mm)	大气	水体	土壤	沉积物
/	1	4.39×10^{-9}	1648.32	1.28×10^{-14}	0
1	3.63	1.21×10^{-9}	1168.58	9.07×10^{-15}	0
2	13.27	3.31×10^{-10}	565.4	4.4×10^{-15}	0
3	46.38	9.48×10^{-11}	203.9	1.6×10^{-15}	0
4	70.66	6.22×10^{-11}	138.82	1.1×10^{-15}	0
5	100.21	4.39×10^{-11}	99.98	7.99×10^{-16}	0
6	69.6	6.31×10^{-11}	140.78	1.16×10^{-15}	0
7	265.95	1.65×10^{-11}	38.91	3.27×10^{-16}	0
8	222.5	1.97×10^{-11}	46.33	3.84×10^{-16}	0
9	136.1	3.33×10^{-11}	74.62	6.03×10^{-16}	0
10	61.63	7.13×10^{-11}	157.52	1.24×10^{-15}	0
11	28.83	1.53×10^{-10}	308.44	2.41×10^{-15}	0
12	0.43	1.02×10^{-8}	1809.32	1.4×10^{-14}	0

与平流耗散过程类似，NO₂在大气相中的反应损失速率随降水量的增加而呈现出整体下降趋势。降水量从3.63 mm增至265.95 mm时，速率降幅高达99%，由此可知，当雨季来临时，大气相中的NO₂可通过发生化学反应达到被快速清除的结果。水体相中，当降水量逐渐增大时，NO₂的反应损失速率逐渐降低，但下降幅度较为平缓。1月至3月，月度降水量小于50 mm，NO₂反应损失速率下降明显，降幅65%；但在5月至9月，月度降水量大于100 mm时，其速率降幅趋于平缓。NO₂在土壤相中的反应损失速率始终低于10⁻¹⁴ kg/h，且随着降水量的增加而缓慢降低。即使是实验所设定的标准降水量1 mm，NO₂在土壤相中的反应损失速率也仅仅是大气相中速率的2.9 × 10⁻²⁴倍，其影响可忽略。



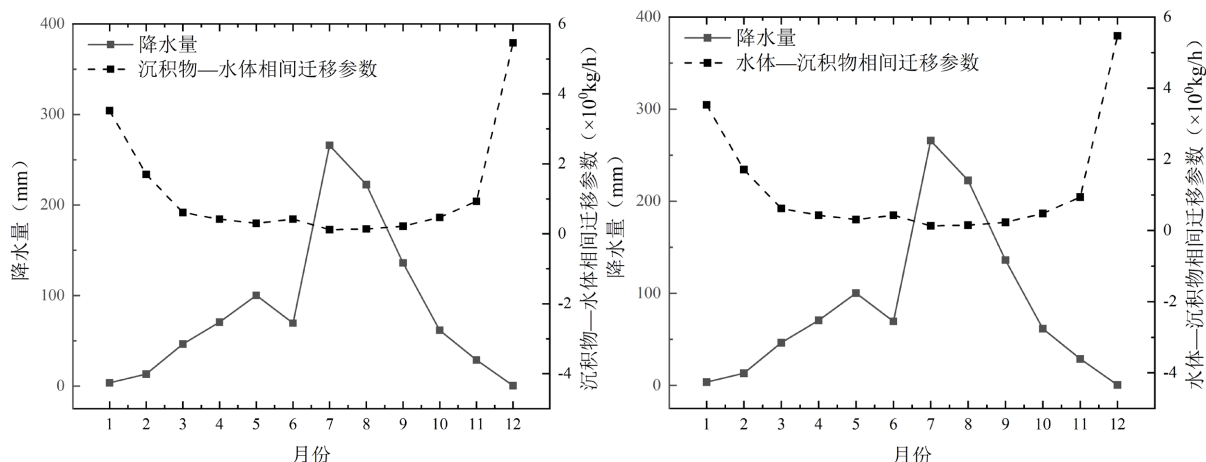


Figure 5. Trend graphs of interphase migration rate parameters of water-air, soil-air, sediment-water, and water-sediment with precipitation

图 5. 水体 - 大气、土壤 - 大气、沉积物 - 水体、水体 - 沉积物相间迁移速率参数随降水量变化趋势图

NO_2 在水体 - 大气、土壤 - 大气、沉积物 - 水体、水体 - 沉积物相间迁移速率参数随降水量变化见图 5。不难发现 NO_2 在水体 - 大气、土壤 - 大气相间的迁移速率与降水量的变化呈反向变化规律。这可能是因为降水量的增大加速了大气的湿沉降效率[18], 使得大气中的 NO_2 被沉降或冲刷至水体和土壤中。例如水体 - 大气相间, 2023 年月度降水量在 7 月达到峰值, 与之相对应的 NO_2 相间迁移速率出现最低值。同等情况下水体 - 沉积物、沉积物 - 水体相间的 NO_2 迁移速率与降水量的变化也存在着上述的规律。

4. 结论

本文通过运用 III 级逸度模型, 研究了成都市 NO_2 在多介质环境中的分布规律, 并通过控制变量法探究气象条件对研究区域内 NO_2 相间迁移速率的影响。得出如下结论:

(1) 在大气、水体、土壤、沉积物这四个环境相中, 水体相是 NO_2 主要的汇, 约占总储量的 99%, 并且 NO_2 在研究区域内最主要的耗散途径是在水体中损失。 NO_2 在成都市各环境主相之间的迁移主要是以土壤 - 水体为主, 其次为大气 - 土壤, 两者分别占整体迁移通量的 48% 和 49%。

(2) 气象条件对所在研究区域成都市 NO_2 多介质环境中的迁移变化存在一定影响。水体 - 大气, 土壤 - 大气、沉积物 - 水体以及水体 - 沉积物相间 NO_2 的迁移速率随着温度的升高而增大, 自 1 月开始, 环境温度逐渐升高, 至 7 月达到最大值 26.6°C , NO_2 的相间迁移速率也增长到 2023 年间的最高峰; 降水量与水体 - 大气, 土壤 - 大气、沉积物 - 水体以及水体 - 沉积物相间 NO_2 的迁移速率呈反向变化的关系, 当降水量于 7 月达到最大值 265.95 mm 时, 四个相间 NO_2 的迁移速率对应为最小值。

参考文献

- [1] Vries, D.W., Liu, X. and Yuan, L. (2022) Highlights of the Special Issue "Progress on Nitrogen Research from Soil to Plant and to the Environment". *Frontiers of Agricultural Science and Engineering*, 9, 313-315.
- [2] 李龙, 秦富仓, 姜丽娜, 等. 区县尺度土壤全氮的空间分布格局分析[J]. *生态学报*, 2020, 40(5): 1572-1579.
- [3] 任朝斌, 王龙, 张千千. 同位素技术示踪水环境生源要素氮的来源及循环过程研究进展[J]. *水生态学杂志*, 2024, 45(4): 1-8.
- [4] 青达罕, 许宜平, 王子健. 基于环境逸度模型的化学物质暴露与风险评估研究进展[J]. *生态毒理学报*, 2018, 13(6): 13-29.
- [5] 张子慕, 杨崇铭, 全红梅, 等. 基于逸度方法的多介质环境模型的应用与展望[J]. *延边大学农学学报*, 2023, 45(4): 100-106.

-
- [6] 邢新丽. 盆地-山区尺度持久性有机污染物土-气环境迁移研究[D]: [博士学位论文]. 北京: 中国地质大学, 2009.
- [7] Mackay, D. and Paterson, S. (1991) Evaluating the Multimedia Fate of Organic Chemicals: A Level III Fugacity Model. *Environmental Science & Technology*, **25**, 427-436. <https://doi.org/10.1021/es00015a008>
- [8] Mackay, D. (2001) Multimedia Environmental Models: The Fugacity Approach. 2nd Edition, Lewis Pub, 40-191.
- [9] Diamond, M.L., Priemer, D.A. and Law, N.L. (2001) Developing a Multimedia Model of Chemical Dynamics in an Urban Area. *Chemosphere*, **44**, 1655-1667. [https://doi.org/10.1016/s0045-6535\(00\)00509-9](https://doi.org/10.1016/s0045-6535(00)00509-9)
- [10] Cotham, W.E. and Bidleman, T.F. (1995) Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Polychlorinated Biphenyls in Air at an Urban and a Rural Site near Lake Michigan. *Environmental Science & Technology*, **29**, 2782-2789. <https://doi.org/10.1021/es00011a013>
- [11] Law, N. (1996) A Preliminary Multi-Media Model to Estimate Contaminant Fate in an Urban Watershed. University of Toronto.
- [12] Clark, B., Henry, G.L.H. and Mackay, D. (1995) Fugacity Analysis and Model of Organic Chemical Fate in a Sewage Treatment Plant. *Environmental Science & Technology*, **29**, 1488-1494. <https://doi.org/10.1021/es00006a009>
- [13] 高丽娜. 典型多环芳烃的 QSPR 和在大连市的污染状况研究[D]: [硕士学位论文]. 大连: 大连理工大学, 2003.
- [14] 李凤业, 高抒, 贾建军, 等. 黄、渤海泥质沉积区现代沉积速率[J]. 海洋与湖沼, 2002, 33(4): 364-369.
- [15] Wania, F. and Mackay, D. (1999) The Evolution of Mass Balance Models of Persistent Organic Pollutant Fate in the Environment. *Environmental Pollution*, **100**, 223-240. [https://doi.org/10.1016/s0269-7491\(99\)00093-7](https://doi.org/10.1016/s0269-7491(99)00093-7)
- [16] Kristensson, A., Johansson, C., Westerholm, R., Swietlicki, E., Gidhagen, L., Wideqvist, U., *et al.* (2004) Real-World Traffic Emission Factors of Gases and Particles Measured in a Road Tunnel in Stockholm, Sweden. *Atmospheric Environment*, **38**, 657-673. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2003.10.030>
- [17] Benner, B.A., Gordon, G.E. and Wise, S.A. (1989) Mobile Sources of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons: A Roadway Tunnel Study. *Environmental Science & Technology*, **23**, 1269-1278. <https://doi.org/10.1021/es00068a014>
- [18] Macdonald, R.W., Harner, T. and Fyfe, J. (2005) Recent Climate Change in the Arctic and Its Impact on Contaminant Pathways and Interpretation of Temporal Trend Data. *Science of The Total Environment*, **342**, 5-86. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2004.12.059>