



## · 前言 · 大气颗粒物表面的非均相反应

全球空气污染及气候变化的研究中,大气化学一直发挥着核心作用.大气化学研究的三个支柱方法包括实验室研究、外场观测和数值模拟.在过去半个多世纪,大量、系统的大气化学反应动力学实验室研究从分子水平揭示了多种尺度的大气环境问题形成机制,如平流层臭氧的生成与耗损过程、对流层臭氧和 OH 自由基等大气氧化剂的生成与循环、有机物在大气中的降解、酸雨的形成、城市空气污染成因、温室气体的全球增暖潜势、大气颗粒物的生成等.实验室研究测量的动力学参数和反应机制为阐明外场观测试验现象、区域和全球尺度的数值模拟提供了关键的数据,在推动臭氧层保护、空气污染控制、酸雨的治理及气候变化减缓方面发挥了重要的作用.

近十年来,大气颗粒物特别是细颗粒物对人体健康、生态系统、气候变化的影响日益突出,针对颗粒物的来源、物理和化学特性、健康和气候影响的研究受到国际学术界高度重视,成为当前大气环境科学研究最前沿的领域.大气中颗粒物表面的非均相反应不仅涉及细颗粒物本身的物理化学特性,而且与大气中痕量气体的浓度、所处的环境等因素密切相关.颗粒物与  $O_3$ 、 $HO_2$ 、 $NO_3$  等光氧化剂之间的相互作用使得大气化学过程变得极为复杂,大气光氧化剂与  $SO_2$ 、 $NO_x$  以及萜烯、芳烃等有机化合物的反应导致大气中颗粒物浓度增加.颗粒物中的有机物可能是人体有毒有害物质,并影响颗粒物的吸湿性和辐射特性,因而大气中挥发性有机物向颗粒有机物的转化引起广泛重视.颗粒二次有机物(SOA)的生成与前体物、大气氧化性及颗粒物表面的吸附、催化能力或酸碱性等有关,而颗粒物表面进行的光氧化剂耗损反应和过渡态金属的光催化氧化等非均相反应也影响到大气氧化性.这些反应同时使得颗粒物的化学成分更为复杂,对人体健康和气候变化的影响可能更大.

针对大气颗粒物的健康效应、大气灰霾现象、城市和区域的大气复合污染、颗粒物的生成机制、气溶胶颗粒物直接和间接辐射强迫的研究均需要大气非

均相反应的实验室研究提供关键的动力学参数和反应机理的认识.而早期有关的动力学机理研究实验结果重复性差,进展不大.这是因为颗粒物表面的非均相反应包括气体在颗粒物表面固相或液相的反应,而人们对颗粒物表面分子形态的了解非常有限.随着采用新的实验方法和手段,这一领域的研究在过去十年已取得很大进步.针对大气中颗粒物表面的非均相反应的反应机理和动力学行为的研究,目前需要关注的问题包括:(1)颗粒物表面分子形态,非均相反应中颗粒物表面的变化以及这些变化对反应性和机理的影响;(2)颗粒物界面反应与体相反应机理的差异及导致这些差异的物理化学原理;(3)颗粒物表面有机成分的生成机制;(4)自由基与其他活性中间物多相反应的速率参数;(5)固体颗粒物界面的光化学及过渡态金属离子的光催化反应机理;(6)颗粒物吸湿性及水在颗粒物表面非均相反应的作用;(7)颗粒物的酸性及离子强度对反应的影响.在开展这些问题的研究时,需要借助分析化学、表面及界面化学以及反应动力学最新的理论和实验手段.

北京大学环境科学与工程学院大气非均相反应动力学研究小组长期开展大气颗粒物表面多相反应研究,建立起颗粒物表面非均相反应综合研究方法,研究了多种大气非均相反应过程.本专题由8篇文章组成,主要是利用漫反射红外傅里叶变换光谱(DRIFTS)研究了常压或低压体系下无机(如  $SO_2$ 、 $NO_2$ )或有机污染物(如甲醛、甲磺酸)在矿物和海盐颗粒物表面的非均相反应行为,测定了反应级数和反应摄取系数,研究了湿度、紫外光照等因素对反应的影响,探讨了反应机理.专题文章包括: $SO_2$ 和甲醛在  $TiO_2$  颗粒物表面的非均相反应、 $NO_2$ 在海盐颗粒物表面的非均相反应、甲磺酸气体在碳酸钙和高岭土颗粒物表面的非均相反应、 $SO_2$ 在  $ZnO$  颗粒物表面的非均相反应、染料敏化  $TiO_2$  可见光光催化降解罗丹明 B.本专题还报道了利用激光共聚焦显微拉曼光谱仪开展大气单颗粒表面非均相反应的最新技术.此外,通过对多种大气非均相反应过程的总结分析,本专题的综述

文章识别出大气中三元反应的协同机制,探讨了非均相反应过程在大气复合污染及灰霾形成中的作用,提出了大气复合污染与灰霾形成的概念模型。

本专题的出版,要感谢本团队师生们的共同工作;感谢国家自然科学基金、国家重点基础研究发展规划项目、环境模拟与污染控制国家重点联合实验室专项经费的资助;感谢本领域同仁对专题各稿件的审理和提出的宝贵意见;感谢《中国科学:化学》编辑部的大力支持和辛苦工作。应该说这些文章仅介绍了本团队的部分研究结果,而国内和国际上有数个研究小组在颗粒物表面非均相反应的研究也颇有建树。鉴于大气颗粒物表面非均相反应的重要性,希望通过本专

题对这一领域研究进展的集中介绍,有助于进一步推动大气颗粒物表面非均相反应的实验室研究。

北京大学环境科学与工程学院,长江特聘教授  
北京大学环境与健康研究中心,主任  
全球大气化学国际计划(IGAC)科学指导  
委员会共同主席  
2010年11月12日于北京



**朱彤**,男,1962年9月生。北京大学环境科学与工程学院,教育部长江特聘教授,博士生导师。1983年和1986年获北京大学放射化学学士和环境化学硕士学位;1991年获德国Wuppertal大学物理化学博士学位;1991~1992年为加拿大York大学大气化学中心博士后;1993,1994年获加拿大政府实验室访问奖学金;1993~1999年为加拿大农业部土壤与生物资源研究中心博士后、合同研究员;1999年任北京大学环境科学中心教授,并获国家杰出青年基金;2000年被教育部聘为“长江学者奖励计划”环境科学特聘教授;2006年获国务院政府特殊津贴。2002年当选大气化学与全球污染国际委员会委员;2006年当选全球大气化学(IGAC)国际计划科学指导委员会委员;现任北京大学环境与健康研究中心主任、北京大学环境科学与工程学院学术委员会主任、全球大气化学(IGAC)国际计划科学指导委员会共同主席。研究领域为大气化学和大气环境污染。主要研究方向为大气化学反应动力学、大气环境与健康、青藏高原大气化学、地-气物质交换。