



有机氮: 有机气溶胶气候效应的揭秘之钥

李钰敏¹, 廖可铮², 傅宗政^{3,4*}, 郁建珍^{2,5*}

¹ Institute for Atmospheric and Climate Science, ETH Zurich, 8092 Zurich, Switzerland

² 香港科技大学环境及可持续发展学部, 香港 999077

³ 南方科技大学广东省大湾区滨海大气环境与气候背景野外科学观测研究站, 深圳 518055

⁴ 南方科技大学环境科学与工程学院, 深圳市城市环境健康风险精准测量与预警技术重点实验室, 深圳 518055

⁵ 香港科技大学化学系, 香港 999077

* 联系人, E-mail: fuzm@sustech.edu.cn; chijianyu@ust.hk

Organic nitrogen: a key to unlocking the climate impacts of organic aerosols

Yumin Li¹, Kezheng Liao², Tzung-May Fu^{3,4*} & Jianzhen Yu^{2,5*}

¹ Institute for Atmospheric and Climate Science, ETH Zurich, 8092 Zurich, Switzerland

² Division of Environment and Sustainability, Hong Kong University of Science and Technology, Hong Kong 999077, China

³ Guangdong Provincial Field Observation and Research Station for Coastal Atmosphere and Climate of The Greater Bay Area, Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China

⁴ Shenzhen Key Laboratory of Precision Measurement and Early Warning Technology for Urban Environmental Health Risks, School of Environmental Science and Engineering, Southern University of Science and Technology, Shenzhen 518055, China

⁵ Department of Chemistry, Hong Kong University of Science and Technology, Hong Kong 999077, China

* Corresponding authors, E-mail: fuzm@sustech.edu.cn; chijianyu@ust.hk

doi: [10.1360/CSB-2025-5511](https://doi.org/10.1360/CSB-2025-5511)

大气气溶胶可通过直接散射与吸收太阳辐射显著影响地球气候, 或通过与云的相互作用间接影响气候^[1]. 大气气溶胶的组分复杂, 其中黑碳(black carbon, BC)是最主要的吸光性组分^[1]. 此外, 有机气溶胶(organic aerosol, OA)亦可显著吸收近紫外线至可见光波段的太阳辐射, 对地球气候产生正的辐射强迫, 造成气候变暖^[2,3]. 前人评估大气有机气溶胶的吸收性辐射强迫为 $0.01\sim 0.6\text{ W m}^{-2}$, 相当于黑碳与有机气溶胶总吸收性辐射强迫的10%~40%^[2,4~7]. 然而, 由于学界对有机气溶胶吸光组分及其光学特性演变过程的认识有限, 上述估算具有很大的不确定性. 长期以来, 大气化学和气候模式通过量化有机气溶胶中的碳质量表征有机气溶胶丰度及评估其气候效应, 并将有机气溶胶中具有光吸收特性的部分称为“棕色碳”(brown carbon, BrC)^[4,5,7]. 然而, 实验室与外场观测均表明, 有机气溶胶吸光效率的强度与演化, 主要与其中的有机氮组分(organic nitrogen, ON)密切相关, 与其碳质量关系不大^[3,8].

针对上述有机气溶胶气候效应量化的难点, 我们提出了一个全新化学框架: “棕色氮”(brown nitrogen, BrN), 即有机气溶胶中具有吸光性的氮组分^[9]. 通过模拟大气棕色氮的一次排放、二次生成、大气老化及其导致的吸光效率演变, 我们可以更好地量化和归因有机气溶胶的吸光性辐射强迫. 模拟显示, 全球大气有机气溶胶吸光效应约60%~70%源于其含氮组分^[9]. 棕色氮的全球平均吸收性直接辐射强迫为 0.034 W m^{-2} , 约为全球碳质气溶胶吸收性直接辐射强迫的18%; 在生物质燃烧活跃地区, 棕色碳吸收性直接辐射强迫可达黑碳的120%. 来自生物质燃烧是棕色氮全球吸收性辐射强迫的最大来源^[9].

1 大气有机气溶胶氮组分及其中吸光组分的来源

大气有机气溶胶中的氮组分种类复杂, 包括多种不同还原态氮和氧化态氮组分, 但是目前尚不能完全定量和分析表

引用格式: 李钰敏, 廖可铮, 傅宗政, 等. 有机氮: 有机气溶胶气候效应的揭秘之钥. 科学通报, 2025, 70: 5932–5935

Li Y, Liao K, Fu T-M, et al. Organic nitrogen: a key to unlocking the climate impacts of organic aerosols (in Chinese). Chin Sci Bull, 2025, 70: 5932–5935, doi: [10.1360/CSB-2025-5511](https://doi.org/10.1360/CSB-2025-5511)

征。已知的有机氮气溶胶一次排放源包括人为活动、生物质燃烧、海洋排放、沙尘及初级生物源颗粒物等。已知的二次生成过程主要包括三大路径：(1) 挥发性有机气体与氮氧化物的光化学反应，生成半挥发性有机硝酸酯；(2) 芳香族有机气体在氮氧化物参与下光化学氧化形成硝基芳烃；及(3) 二羰基化合物在云滴或湿气溶胶中与铵或胺反应，生成含亚胺或胺官能团的还原性杂环化合物等^[10]。

上述大气有机氮组分中，目前已知具有吸光性的组分(即棕色氮)包括硝基芳烃、含氮多环芳烃(N-PAHs)、含氮杂环化合物(咪唑衍生物)及亚胺类物质等^[11-14]。其中一次排放的棕色氮组分包括硝基芳烃与含氮多环芳烃等，主要源于生物质燃烧(包括野火和家庭木材燃烧)。生物质燃烧过程中木质素和纤维素的裂解，生成含氮酚类和含氮有机酸，或迅速与氮氧化物反应形成硝基酚类^[3]。此外，芳香族化合物(如苯)氧化生成的硝基芳烃，以及二羰基化合物液相反反应生成的含氮杂环化合物，是主要的二次棕色氮组分。

不同棕色氮组分因其发色团结构的差异，呈现不同的质量吸收效率(mass absorption efficiency, MAE)，且MAE在不同波长差异较大。目前质量吸收系数的观测既包括对总的BrC样品的测量^[8,11,15,16]，也包括对特定分如硝基芳烃的测量^[13,14,17,18]。总体而言，棕色氮的MAE随波长增加而降低，但特定物种的MAE会偏离此一趋势。例如二次生成的硝基芳烃类，包括硝基酚、硝基儿茶酚、硝基萘酚等，MAE随波长变化特征各异：硝基酚的MAE在320 nm附近达到峰值，硝基儿茶酚的MAE峰值位于350 nm附近，而硝基萘酚则在350和400 nm附近分别有MAE高值。现有测量显示，不同来源棕色氮的单位氮质量MAE排序为：硝基芳烃>人为源排放棕色氮>亚胺类>生物质燃烧排放棕色氮。其中，生物质燃烧排放的棕色氮MAE随波长增加的衰减最弱，即其吸光性在长波范围内相对稳定。不过，目前棕色氮组分的吸光性仍具有较大不确定性。部分原因是基于整体气溶胶样品的MAE测量需经溶液(一般是水或者甲醇)萃取处理，忽视了不可溶吸光组分的影响。野火排的不溶性吸光组分可吸收可见光和近红外光谱范围内的阳光，这使得其变暖潜力更加复杂^[19]。此外，现有MAE数据均以碳质量为基础(单位： $\text{m}^2 \text{ gC}^{-1}$)，需转换为氮质量单位($\text{m}^2 \text{ gN}^{-1}$)，转换过程需假设有机气溶胶的含氮组分；由于整体气溶胶样品中含氮组分定量较为困难，进一步增加了不确定性。

2 棕色氮的化学演化调控有机气溶胶吸光性，构成全新的气候-化学相互作用路径

大气有机气溶胶吸光能力的动态变化，主要受到有机氮组分在大气老化过程中的光学性质演化所调控(图1)。不同的棕色氮组分在大气氧化与光解作用下，因其分子结构改变，可能表现出吸收性增强(称为“光暗化”)或衰减(“光漂白”)，甚至演变为不吸光的有机氮气溶胶——我们称为“白色氮”

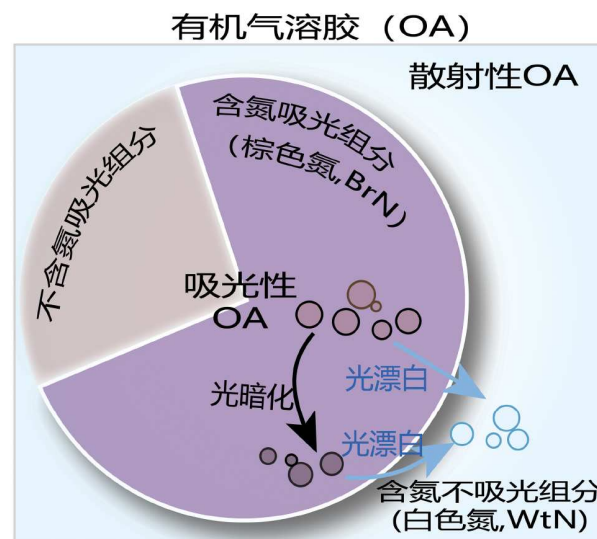


图1 棕色氮是大气有机气溶胶中的主要吸光组分，其光化学演化调控有机气溶胶的吸光性^[9]

Figure 1 Brown carbon is a major light-absorbing component in atmospheric organic aerosols, and its photochemical evolution regulates the light absorption of organic aerosols^[9]

(white nitrogen, WtN)^[3,17]。实验表明，在有机氮分子氧化过程中，有机氮小分子聚合延长 π 共轭、添加含新的含氧官能团、或已存在官能团邻间对位置变化，均会导致吸光性的增强。相对地，进一步氧化过程导致C-C键断裂，环状结构遭到破坏，则会使有机氮分子降低或失去吸收性^[17]。我们的全球模拟表明，经大气氧化后，棕色氮的吸光性保留比例介于7%~83%之间，全球平均约为23%。该比例呈现显著的空间异质性：近排放源区保留率较高(>50%)，而经过远距离传输的区域保留率可低至7%，体现了棕色氮在长程输送过程中持续老化对吸光性的重要影响^[9]。

再者，不同来源的棕色氮受到大气老化的影响存在显著差异^[9]。观测显示，一次排放棕色氮组分富含多环芳烃、焦油等不易氧化的高分子物质，即便在深度老化后仍有2%~20%的组分保持其吸光性^[3]。此外，人为源排放的棕色氮保留比例普遍高于生物质燃烧排放，主要原因是人为排放热点多集中于冬季，在大气中氧化速率较慢；而生物质燃烧则常发生于夏季，氧化过程较快。二次生成的亚胺类有机氮和硝基芳烃均具有环状结的发色团。其中，亚胺类棕色氮在暴露于大气羟基自由基时，其分子环结构更易迅速断裂，导致其吸收能力在老化过程中损失70%~90%^[17]。相比之下，二次生成的硝基芳烃具有相对稳定的环状结构，因此在老化后保留的吸光性略高于二次生成的亚胺类棕色氮^[17]。

此外，棕色氮是一种良好的光敏剂(photosensitizer)，其特殊的化学结构能通过光化学过程提升大气的氧化潜力(图2)。

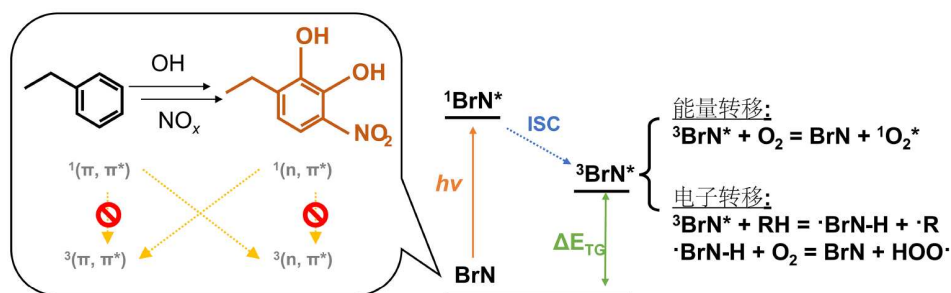


图 2 棕色氮组分的三线态化学反应可驱动有机组分氧化^[20]

Figure 2 The triplet-state reactions of brown carbon components can drive the oxidation of organic components^[20]

棕色氮化合物往往有较大共轭结构(π轨道), 而氮原子的存在提供了孤对电子轨道(n轨道)。与不含n轨道的大共轭体系分子(如多环芳烃)相比, 自旋-轨道耦合使得含有n轨道的共轭体系能更有效地产生三线态激发态。实验已经表明, 在模拟太阳光下, 光敏剂能诱导生成活性氧化物(如单线态氧分子和氢氧自由基), 还能直接氧化其他有机物, 当然也包括其自身^[20]。在这些光敏反应中, 棕色氮和总体有机物的光学性质都在动态地变化中。因此棕色氮组分不仅是有机气溶胶的主要吸光组分, 也是其吸光性和氧化性演化的驱动者。

3 着眼“棕色氮”框架解析有机气溶胶气候效应

棕色氮吸光产生的辐射效应, 可能与地球气候存在复杂反馈, 构成还未被探索的气候-化学相互作用路径。大量研究显示在全球变暖背景下, 生物质燃烧活动将加剧。生物质燃烧作为棕色氮最主要来源, 其排放增加将正反馈增强吸光性辐射强迫。同时, 气温升高可能增加植物源挥发性有机化合物(biogenic volatile organic compounds)的排放, 其二羰基产

物是亚胺类的关键前体物, 可能促进二次亚胺类棕色氮的生成。另一方面, 减少使用化石燃料将降低人为源棕色氮和氮氧化物气体的排放强度。气候变化还可能调控棕色氮在大气老化过程中向白色氮的转化速率, 从而影响其吸光能力的时空分布, 但此一变化的方向还未知。综上, 衡量有机气溶胶及棕色氮辐射强迫的未来趋势, 需综合考量“排放-转化-气候反馈”的动态耦合机制, 是一个亟待探索的重要科学问题。

我们提出的有机氮/棕色氮框架, 为定量评估和归因有机气溶胶的气候效应及其趋势, 提供了很好的抓手。当前学界对有机氮来源、组分和丰度的时空分布、大气演化、物理和化学性质及其变化, 仍存在很多未明之处; 这些不确定性可能显著影响有机气溶胶气候效应的量化和归因。未来研究需聚焦拓展有机氮的多维度观测(包括同时衡量浓度、组分和吸光性)、解析有机氮的关键发色组分, 以及解析关键演化机制(包括吸光的增强减弱、吸湿性变化等)。这些科学探索将帮助我们构建更完整的有机氮/棕色氮模式, 量化有机气溶胶在气候变化和气候政策背景下的辐射强迫, 为应对全球气候变化提供指导方针。

致谢 感谢国家自然科学基金(42325504)和香港研究资助局优配研究金(16215524)资助。

推荐阅读文献

- Forster P, Storelvmo T, Armour K, et al. The Earth's energy budget, climate feedbacks, and climate sensitivity. In: Climate Change 2021: The Physical Science Basis Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge and New York: Cambridge University Press, 2021. 923–1054
- Zhang Y, Forrister H, Liu J, et al. Top-of-atmosphere radiative forcing affected by brown carbon in the upper troposphere. *Nat Geosci*, 2017, 10: 486–489
- Hems R F, Schnitzler E G, Liu-Kang C, et al. Aging of atmospheric brown carbon aerosol. *ACS Earth Space Chem*, 2021, 5: 722–748
- Zhang A, Wang Y, Zhang Y, et al. Modeling the global radiative effect of brown carbon: a potentially larger heating source in the tropical free troposphere than black carbon. *Atmos Chem Phys*, 2020, 20: 1901–1920
- Wang X, Heald C L, Liu J, et al. Exploring the observational constraints on the simulation of brown carbon. *Atmos Chem Phys*, 2018, 18: 635–653
- Heald C L, Ridley D A, Kroll J H, et al. Contrasting the direct radiative effect and direct radiative forcing of aerosols. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14: 5513–5527

- 7 Saleh R. From measurements to models: toward accurate representation of brown carbon in climate calculations. *Curr Pollution Rep*, 2020, 6: 90–104
- 8 Laskin A, Laskin J, Nizkorodov S A. Chemistry of atmospheric brown carbon. *Chem Rev*, 2015, 115: 4335–4382
- 9 Li Y, Fu T M, Yu J Z, et al. Nitrogen dominates global atmospheric organic aerosol absorption. *Science*, 2025, 387: 989–995
- 10 Li Y, Fu T M, Yu J Z, et al. Dissecting the contributions of organic nitrogen aerosols to global atmospheric nitrogen deposition and implications for ecosystems. *Natl Sci Rev*, 2023, 10: nwad244
- 11 Lin P, Bluvshstein N, Rudich Y, et al. Molecular chemistry of atmospheric brown carbon inferred from a nationwide biomass burning event. *Environ Sci Technol*, 2017, 51: 11561–11570
- 12 Liu J, Lin P, Laskin A, et al. Optical properties and aging of light-absorbing secondary organic aerosol. *Atmos Chem Phys*, 2016, 16: 12815–12827
- 13 Xie M, Chen X, Hays M D, et al. Light absorption of secondary organic aerosol: composition and contribution of nitroaromatic compounds. *Environ Sci Technol*, 2017, 51: 11607–11616
- 14 De Haan D O, Tapavicza E, Riva M, et al. Nitrogen-containing, light-absorbing oligomers produced in aerosol particles exposed to methylglyoxal, photolysis, and cloud cycling. *Environ Sci Technol*, 2018, 52: 4061–4071
- 15 Rodriguez A A, de Loera A, Powelson M H, et al. Formaldehyde and acetaldehyde increase aqueous-phase production of imidazoles in methylglyoxal/amine mixtures: quantifying a secondary organic aerosol formation mechanism. *Environ Sci Technol Lett*, 2017, 4: 234–239
- 16 Zhang Q, Ning Z, Shen Z, et al. Variations of aerosol size distribution, chemical composition and optical properties from roadside to ambient environment: a case study in Hong Kong, China. *Atmos Environ*, 2017, 166: 234–243
- 17 Zhao R, Lee A K Y, Huang L, et al. Photochemical processing of aqueous atmospheric brown carbon. *Atmos Chem Phys*, 2015, 15: 6087–6100
- 18 De Haan D O, Hawkins L N, Welsh H G, et al. Brown carbon production in ammonium-or amine-containing aerosol particles by reactive uptake of methylglyoxal and photolytic cloud cycling. *Environ Sci Technol*, 2017, 51: 7458–7466
- 19 Wang X, Chakrabarty R K, Schwarz J P, et al. Dark brown carbon from biomass burning contributes to significant global-scale positive forcing. *One Earth*, 2025, 8: 101205
- 20 Petersen-Sonn E A, Brigante M, Deguillaume L, et al. Tropospheric multiphase chemistry: excited triplet states compete with oh radicals and singlet molecular oxygen. *ACS Earth Space Chem*, 2025, 9: 533–544