

瓦里关温室气体本底研究的主要进展^{* 1}

周凌晞 周秀骥 张晓春 温玉璞 颜 鹏

中国气象科学研究院, 中国气象局大气成分观测与服务中心, 中国气象局大气化学重点开放实验室, 北京, 100081

摘 要

由于温室气体浓度显著增长及其在气候与环境变化中的作用, 国际上众多的科学计划和观测体系都把它们的时空分布、源汇及趋势列为重要内容, 获得的各种资料在评价人类活动对气候和环境的影响及有关对策研究中起着关键作用。文章阐述了在中国内陆本底地区开展温室气体长期、定点观测的意义和必要性, 系统地讨论了 10 多年来中国瓦里关本底站温室气体本底研究的主要进展。利用瓦里关经严格国际比对和质量控制的大气 CO₂、CH₄ 长期观测资料, 结合同期的地面风资料进行统计分析, 建立了瓦里关大气 CO₂ 和 CH₄ 本底资料筛选方法; 利用本底观测资料, 研究了瓦里关大气 CO₂ 及其 δ¹³C、CH₄ 和 CO 本底变化及源汇特征所体现的亚洲内陆地域特点和全球代表性, 并进一步与同期、同纬度海洋边界层参比值(MBL)以及北半球其他 6 个大气本底站同期观测数据对比分析, 发现了瓦里关大气 CH₄ 和 CO 独特的季节变化并探讨了成因; 根据空气团后向轨迹簇所途经的下垫面源汇同观测的大气 CO₂ 和 CH₄ 浓度变化之间的关系, 探讨了瓦里关大气 CO₂ 和 CH₄ 的输送来源; 利用 Hysplit-4 扩散与输送模式, 计算了冬、夏典型月份人为源和自然生态系统源汇对瓦里关大气 CO₂ 浓度变化的贡献。并在现有基础上, 提出了有待进一步解决的科学问题。

关键词: 温室气体, 资料筛选, 本底特征, 源汇分析, Hysplit-4 数值模拟。

1 引 言

大气本底是不受局地条件和人为活动直接影响、经充分混合的大气组成特征, 一般指较大范围内大气成分及其物理、化学特性的平均状况和长期演变, 根据所代表的时空尺度范围, 可划分为“全球本底(Baseline)”和“区域本底(Background)”; 大气本底观测即对大气成分及其特性进行长期、准确、系统的观测, 从而提供不同时空尺度的背景参照值; 大气本底研究着眼于大气成分对全球及区域气候、环境、生态等的长期影响, 以及同水圈、岩石圈、生物圈之间的相互作用, 并对大气本底状况、变化机制、变化趋势及其影响进行科学评估^[1-5]。而大气污染监测和大气环保研究一般以局地人为活动密集区为重点, 着眼于污染大气成分的直接危害与影响, 其观测

资料的时空代表性较小。世界气象组织(WMO)于 1989 年开始组建全球大气观测系统(GAW), 经过十几年发展, 已形成当前全球最大、功能最全的大气本底观测网, 由 65 个国家的 200 多个本底站(其中全球基准站 24 个)组成, 根据 GAW 和大气本底研究科学目标、站址环境、观测要素和观测质量等方面的要求, 建议开展的观测项目主要包括: 温室气体、臭氧层、太阳辐射、降水化学、气溶胶、反应性气体、持久性有机污染物和重金属、同位素、气象要素等; GAW 还先后建立了 5 个世界资料中心、4 个质量保证-科学活动中心、若干个世界标定中心等, 以推动观测质量保证和资料、技术共享; 通过野外观测、实验室测量、资料分析、理论研究和数值模拟, 取得了很多重要成果^[4-5]。本文综述了 10 多年来中国瓦里关本底站温室气体本底研究的主要进展。

* 初稿时间: 2006 年 3 月 29 日; 修改稿时间: 2006 年 9 月 26 日。

资助课题: 人事部留学回国人员科技活动择优资助重点项目(国人部发[2004]99 号)、中国气象局气候变化专项(CCSF2005-3-DH04、CCSF2006-4、CCSF2007-1)、科技部 2005DKA31700-04、2005JG100090、2006CB403701 课题。

作者简介: 周凌晞, 主要从事温室气体、碳循环、全球变化研究。E-mail: zhoulx@cams.cma.gov.cn

2 中国的大气本底观测网及观测要素

自 20 世纪 80 年代初开始,中国气象局在联合国下属机构支持下,按照当时 GAW 区域本底站选址要求和建议的观测要素^[1],先后在北京上甸子(40.39°N,117.07°E,海拔 293.9 m,1982 年)、浙江临安(30.3°N,119.73°E,海拔 138 m,1983 年)和黑龙江龙凤山(44.73°N,127.6°E,海拔 310 m,1991 年)建设了具有较好代表性的区域大气本底站,开展降水化学、总悬浮颗粒物、大气浑浊度和气象要素等的长期观测。按照 GAW 全球基准站选址要求和建议的观测要素^[1-2],中国政府和联合国全球环境基金(GEF)共同投资,1994 年在青海省境内建立瓦里关全球大气基准站(36°17'N,100°54'E,海拔 3816 m),开展了包括温室气体、臭氧层、太阳辐射、降水化学、气溶胶、反应性气体、气象要素等的长期观测^[6]。2001 年起,参照原有的和更新后的 GAW 观测指南^[3-4]及 2001—2007 年 GAW 发展战略^[5],上甸子、临水和龙凤山陆续增设了气溶胶、温室气体、反应性气体、太阳辐射等观测项目。中国上述 4 个本底站已纳入 GAW 体系,并入选为中国科学技术部大气成分本底国家野外站。但 GAW 观测站目前在全球的地理分布并不均匀,欧洲、北美等发达国家集中的地区站点较多,亚洲、非洲、南美等地区站点相对稀少,亚洲内陆地区尤为稀缺。目前,中国气象局 3 个新建区域本底站(分别位于云南、新疆、湖北境内)的科学论证实验和建设正在进行中。

3 瓦里关本底站温室气体及相关微量成分的长期定点观测

由于温室气体浓度显著增长及其在气候与环境变化中的作用,国际上众多的科学计划和观测体系都把它们时空分布、源汇及趋势列为重要内容,获得的各种资料在评价人类活动对气候和环境的影响及有关对策研究中起着关键作用。1991 年起,中国气象科学研究院(CAMS)同美国国家海洋与大气管理局-气候监测与诊断实验室(NOAA CMDL,2005 年 10 月更名为地球系统研究实验室即 NOAA ESRL)合作,在瓦里关陆续开展了空气样品的 Flask 瓶采样分析(观测要素包括 CO₂、CH₄、N₂O、SF₆、CO、H₂、¹³CO₂、CO¹⁸O、¹³CH₄ 等);1994 年以来,以对气候变化和生态、环境有重要意义的碳循

环温室气体及相关微量成分为重点,在瓦里关相继开展了大气 CO₂、CH₄、CO 的在线连续观测^[7-9]。瓦里关大气 CO₂ 和 CH₄ 观测资料反映的亚洲内陆大气本底状况、各种时间尺度变化的初步结果^[10-26]已受到国内外同行的日益关注,观测数据进入了 CO₂、CH₄ 全球同化数据库(全球近百个站点实测资料经平滑、插值、外延等处理而成)^[27-30],并应用于大陆源汇通量估算和全球源汇分布数值模式等研究中^[31-32]。

4 瓦里关温室气体本底研究的主要进展

4.1 瓦里关大气 CO₂ 和 CH₄ 本底资料的筛选方法

大气本底观测着重于各类本底资料的获取与分析,因不同站点所处的地理位置、地形地貌和环境状况等有很大差别,对特定项目进行长期、系统、准确观测的同时,首先应确定观测资料的时空代表性,分离出未受局地及区域因素影响的“本底”数据,在此基础上给出大气本底特征,并分析本底变化的成因及影响才有明确意义^[14-15]。瓦里关位于相对洁净的内陆本底地区,全年大多数时间不受局地和区域因素直接影响,但局地环流和各种尺度的天气过程仍可能引起近地层大气成分短期变化,使观测资料不可避免地包含有某些局地或区域特征。

周凌晞等^[14-15]研究表明,受不同季节源汇变化和输送过程的影响,地面风对瓦里关大气 CO₂ 浓度的影响在各季节明显不同,NE-E 水平风的影响最大;不同季节各组水平风速的频次分布颇为相似,水平风速变化对 CO₂ 浓度的影响各季节略有差别,3—10 m/s 对 CO₂ 浓度的影响最小;受测站地形影响,80 m 垂直风与对应时刻水平风变化及其对 CO₂ 浓度的影响有密切关系,垂直风速大于 ±1 m/s 影响较大。瓦里关大气 CO₂ 浓度在不同季节的分布范围有较大差异,日变化类型也各不相同,夏季 CO₂ 小时浓度日振幅约 2×10^{-6} (摩尔比浓度,下同),日变化反映了 CO₂ 在大气和植物间的交换,其他季节 CO₂ 小时浓度的日振幅都小于 0.5×10^{-6} ,日变化的小幅波动与气流变化相关联,主要是呼吸作用和人为排放共同影响的结果。将地面风统计资料作为大气 CO₂ 小时浓度的过滤因子之一,提出了瓦里关大气 CO₂ 本底数据筛选方法,本底数据留存率约为原始资料量的 70%。图 1 是瓦里关不同季节各风

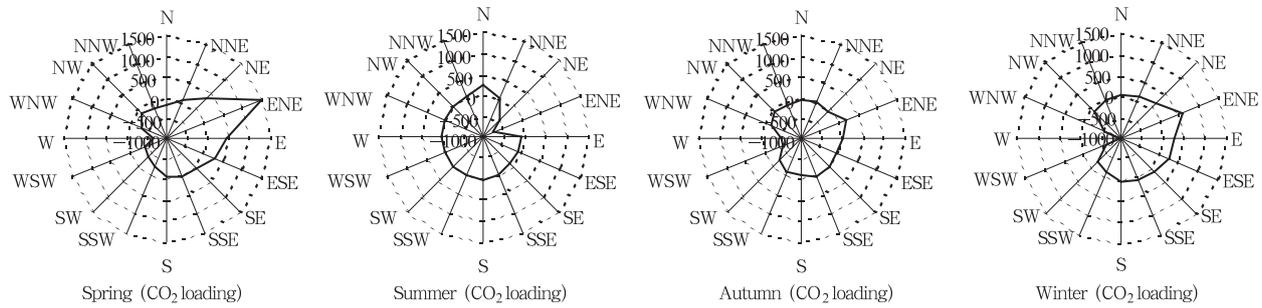


图1 瓦里关不同季节各风向对 CO_2 小时平均浓度水平的贡献^[15]

Fig. 1 Atmospheric CO_2 hourly mixing ratios weighted by frequency of wind occurrence in spring, summer, autumn and winter at Mt. Waliguan^[15]

向对 CO_2 小时平均浓度水平的贡献。

受不同季节源汇变化和输送过程影响,地面风对瓦里关大气 CH_4 浓度的影响在各季节也有明显不同。NE-ENE-E 为最主要的非本底扇区,各季节还应分别考虑其他扇区的作用,其中静风及水平风速大于 10 m/s 、垂直风速大于 $\pm 1 \text{ m/s}$ 对观测结果有较大影响。瓦里关大气 CH_4 浓度存在数日到数周的短期不规则变化,各季节的日变差较大,夏、秋

季不同时段中值浓度日振幅约 7×10^{-9} (冬、春季可达 14×10^{-9} 左右,多项式拟合曲线给出了多年各季节平均日波动趋势,但没有明显规律。将地面风统计资料作为大气 CH_4 小时浓度数据的过滤因子之一,提出了瓦里关大气 CH_4 本底数据筛选方法,本底数据留存率约为原始资料量的 50% ^[19,21]。图 2 是瓦里关不同季节各风向对大气 CH_4 小时平均浓度水平的贡献。

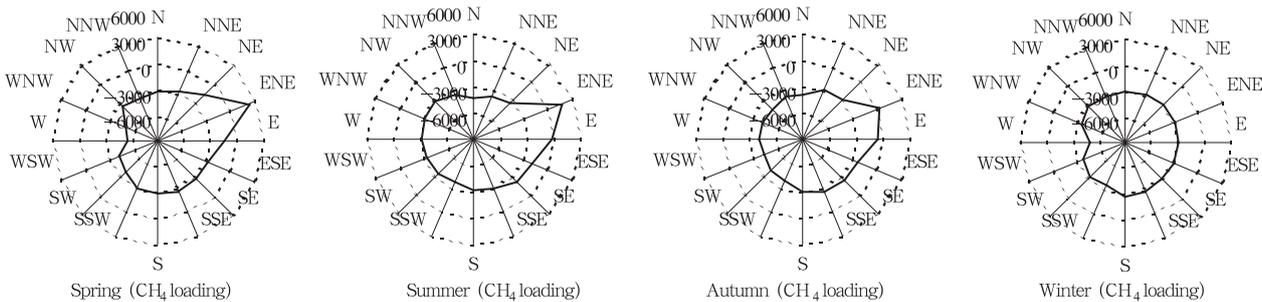


图2 瓦里关不同季节各风向对 CH_4 小时平均浓度水平的贡献^[19]

Fig. 2 Atmospheric CH_4 hourly mixing ratios weighted by frequency of wind occurrence in spring, summer, autumn and winter at Mt. Waliguan^[19]

4.2 瓦里关大气 CO_2 本底变化

图 3 是瓦里关大气 CO_2 及其 $\delta^{13}\text{C}$ 本底变化时间序列,空心点和实心点分别代表 CO_2 及其 $\delta^{13}\text{C}$ 的月平均值。可以看出,瓦里关大气 CO_2 及其 $\delta^{13}\text{C}$ 都有周期性季节波动和长期变化趋势,两者间有明显的对应关系, CO_2 年均浓度几乎呈线性增长,1991—2004 年期间变化范围 347.6×10^{-6} — 383.3×10^{-6} ,年均增长率约 1.8×10^{-6} ,而其 $\delta^{13}\text{C}$ 呈线性降低趋势,变化范围 -7.551% — -8.451% ,年均递减率约 -0.028% 。大气 CO_2 浓度不断增长,而其 $\delta^{13}\text{C}$ 却逐年降低,主要

原因是陆地生物圈 C_3 植物光合作用对轻碳同位素 ^{12}C 优先选择性吸收,而化石燃料来自远古植物,使得通过化石燃料燃烧、森林砍伐、植被分解等过程释放到大气中的 CO_2 含有较多的轻碳同位素^[17,23]。

图 4 是 1991—2004 年瓦里关大气 CO_2 及其 $\delta^{13}\text{C}$ 多年平均季节变化,实心点是瓦里关观测值,细实线是同期、同纬度海洋边界层参比值 (MBL)。将内陆站点观测资料与同期、同纬度 MBL 对比分析,有助于区分当地人为源、陆地生物圈源汇以及站点海拔高度等因素对大气成分浓度观测资料的可能影

响^[19,23]。由图可以看出,瓦里关大气 CO₂ 浓度的季变化较明显,8 月降至最低,4 月达最高,多年平均季振幅 10.5×10^{-6} (MBL 为 9.8×10^{-6}) ;而 $\delta^{13}\text{C}$ 在 4 月降至最低,8 月升至最高,多年平均季振幅 0.499% (MBL 为 0.570%) 。同 GAW 的其他全球基准站有关结果^[23,27,30] 相比,瓦里关 (36.3°N) 大气 CO₂ 季变化的位相与 Barrow (71.3°N) 接近,但因海陆下垫面源汇调节作用的差异,比 Mauna Loa

(19.5°N) 和同期、同纬度 MBL 提前 1 个月左右;瓦里关大气 CO₂ 的季振幅介于 Barrow (约 18×10^{-6}) 和 Mauna Loa (约 8×10^{-6}) 之间,逐年季振幅呈略微升高趋势,与北半球中高纬度地区季节变化的位相和季振幅及增长趋势基本相符。瓦里关大气 CO₂ 季变化、年际间季振幅与其 $\delta^{13}\text{C}$ 之间显著的反相关关系,反映了北半球陆地生物圈年周期变化对大气圈的强烈影响,主要体现了北半球中高纬度陆地生

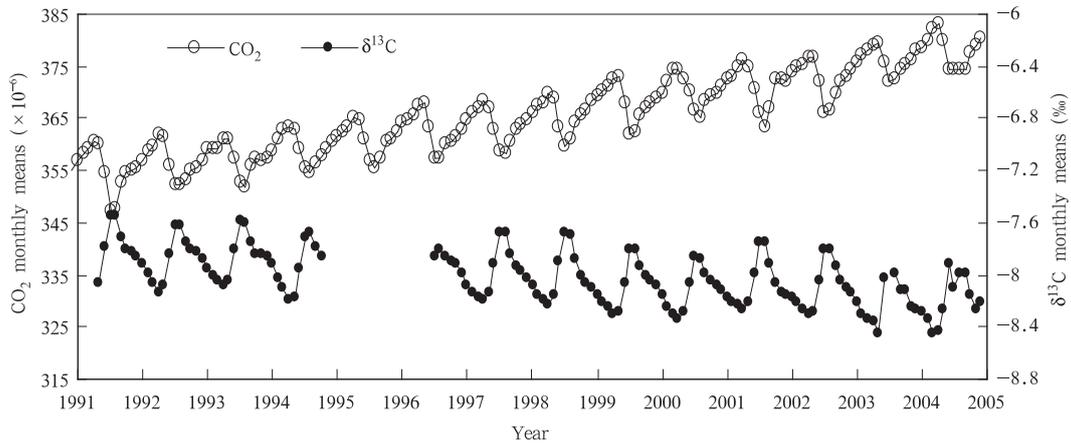


图 3 瓦里关大气 CO₂ 及其 $\delta^{13}\text{C}$ 本底变化时间序列

Fig. 3 Atmospheric CO₂ and $\delta^{13}\text{C}$ time series for 1991—2004 at Mt. Waliguan

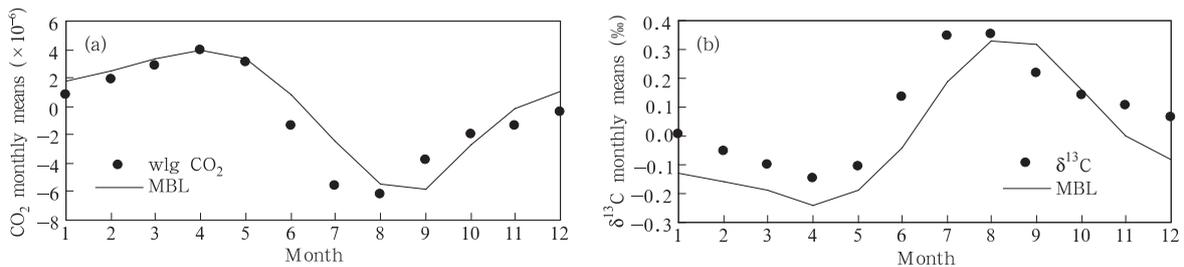


图 4 瓦里关大气 CO₂ 及其 $\delta^{13}\text{C}$ 多年平均季节变化

Fig. 4 Atmospheric CO₂ and $\delta^{13}\text{C}$ mean annual cycle over 1991—2004 at Mt. Waliguan

态系统的周期性季节变化和源汇特征,而海洋的作用相对较弱^[17,23]。

表 1 是 1992—2004 年,瓦里关等 7 个位于北半球的 GAW 本底站大气 CO₂ 年平均浓度。可以看出,瓦里关大气 CO₂ 年平均浓度及增长趋势同多数站点的同期观测数据较为接近,大体反映了北半球中高纬度地区平均状况。而韩国的 TAP 站由于靠近陆地源区,海拔高度仅 20 m,其各年的大气 CO₂ 浓度明显高于其他几个本底观测站。

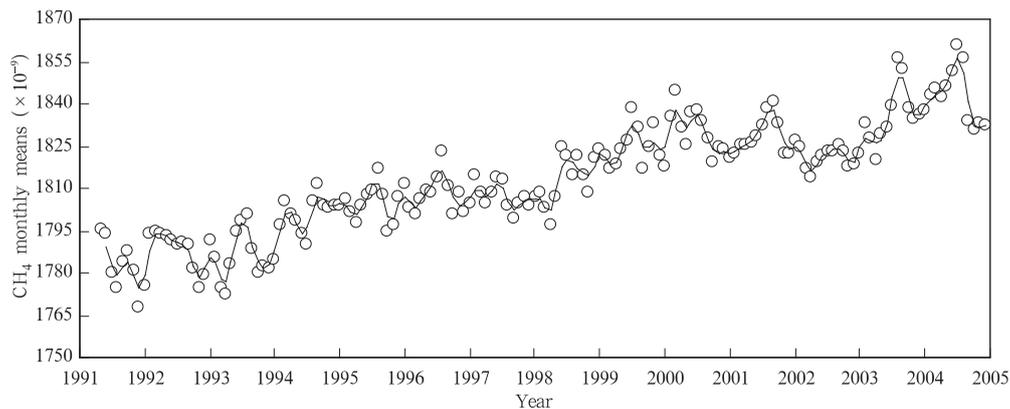
4.3 瓦里关大气 CH₄ 本底变化

图 5 是瓦里关大气 CH₄ 本底变化时间序列,空心点代表 CH₄ 月平均值。观测资料分析表明,瓦里关大气 CH₄ 浓度具有准周期性季节波动和几乎呈线性增长的长期趋势,1991—2004 年的浓度范围 1767.7×10^{-9} — 1860.9×10^{-9} ; CH₄ 年均增长值 4.4×10^{-9} ,但不同年份有很大差异,从 1992 年和 1996 年的最低值约 -1×10^{-9} 到 1993 年和 1998 年的最高值约 14×10^{-9} 。大量的观测及研究^[28,30,33-34] 表明,

表1 瓦里关和其他6个GAW北半球本底站大气CO₂年平均浓度($\times 10^{-6}$)Table 1 Atmospheric CO₂ annual means ($\times 10^{-6}$) at Waliguan and other six NH sites over 1992–2004

| 年 | BRW | MHD | UUM | NWR | TAP | WLG | MLO |
|------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 1992 | 357.7 | 356.2 | 356.6 | 357.0 | 360.6 | 356.7 | 356.6 |
| 1993 | 358.3 | 356.8 | 357.4 | 357.5 | 360.7 | 357.4 | 357.0 |
| 1994 | 359.8 | 358.4 | 359.3 | 359.4 | 361.2 | 359.2 | 358.5 |
| 1995 | 361.9 | 360.9 | 361.0 | 361.2 | 364.0 | 360.6 | 360.7 |
| 1996 | 364.2 | 363.1 | 362.6 | 363.1 | 366.4 | 362.2 | 362.4 |
| 1997 | 365.3 | 364.2 | 374.8 | 363.9 | 367.0 | 363.8 | 363.5 |
| 1998 | 367.3 | 366.4 | 367.5 | 366.6 | 370.6 | 365.7 | 366.6 |
| 1999 | 370.0 | 368.6 | 369.2 | 368.3 | 371.7 | 368.2 | 368.3 |
| 2000 | 370.8 | 370.0 | 371.2 | 370.3 | 373.4 | 370.3 | 369.6 |
| 2001 | 372.4 | 371.8 | 372.3 | 372.4 | 375.7 | 371.3 | 371.2 |
| 2002 | 374.3 | 373.6 | 374.3 | 374.2 | 377.8 | 372.7 | 373.0 |
| 2003 | 377.5 | 376.3 | 377.8 | 376.4 | 379.7 | 376.2 | 375.8 |
| 2004 | 378.2 | 378.3 | 378.9 | 378.0 | 384.2 | 378.2 | 377.6 |

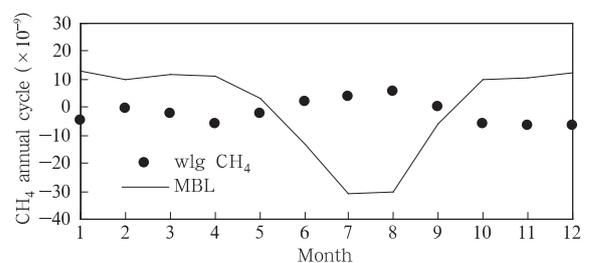
注: Selected GAW global & regional stations in the northern hemisphere (NH); BRW (71.32°N, 156.60°W, 11 m asl), Barrow Global station (USA); MHD (53.33°N, 9.90°W, 25 m asl), Mace Head Global station (Ireland); UUM (44.45°N, 111.10°E, 914 m asl), Ulaan Unl Regional station (Mongolia); NWR (40.05°N, 105.58°W, 3475 m asl), Niwot Ridge Regional station (USA); TAP (36.73°N, 126.13°E, 20 m asl), Tae-ahn Peninsula Regional station (Korea); WLG (36.29°N, 100.90°E, 3816 m asl), Waliguan Global station (China); MLO (19.53°N, 155.58°W, 3397 m asl), Mauna Loa, Hawaii, Global station (USA)

图5 瓦里关大气CH₄本底变化时间序列Fig. 5 Atmospheric CH₄ time series for 1991–2004 at Mt. Waliguan

人类活动导致大气CH₄浓度持续增长,2004年全球年均值达 1783.0×10^{-9} ,然而,近几十年来其逐年增长值却有异常波动,年际间变动极大。瓦里关大气CH₄的增长趋势与 60° – 30° N平均状况基本相符,但各年增长值波动与全球平均状况并不完全一致^[19-20]。

图6是1991–2004年瓦里关大气CH₄多年平均季节变化(实心点是瓦里关的观测值,细实线是同期、同纬度MBL)。可以看出,瓦里关大气CH₄季节变化较明显、各年份有一定差异,多年平均季变化有2个极大值(6–8月和2月)和2个极小值(10–12和4月),平均季振幅约 11×10^{-9} ;与MBL平均

季变化相比,瓦里关CH₄季变化显得异常,两者的极差瓦里关在夏季可高出 30×10^{-9} 、冬季则低约 20×10^{-9} ^[19-20]。根据全球各纬度带多年观测资料

图6 瓦里关大气CH₄多年平均季变化Fig. 6 Atmospheric CH₄ mean annual cycle over 1991–2004 at Mt. Waliguan

计算的 90° — 60° N 大气 CH_4 平均季振幅约 43×10^{-9} 、 60° — 30° N 约 31×10^{-9} 、 30° N—EQ 约 34×10^{-9} ^[28,30],但瓦里关大气 CH_4 的多年平均季振幅仅 11×10^{-9} ,而且大多数年份夏季略高,与北半球中高纬度地区大气 CH_4 季变化的特征、季振幅的地理分布并不一致。

表 2 是 1992—2004 年瓦里关和其他 6 个位于

北半球 GAW 本底站大气 CH_4 年平均浓度。可以看出,瓦里关大气 CH_4 年平均浓度及增长趋势同多数站点同期观测数据具有可比性,大体反映了北半球中高纬度地区平均状况。韩国的 TAP 站由于靠近陆地源区,海拔高度仅 20 m,其各年的大气 CH_4 浓度明显高于其他几个本底观测站;北极的 BRW 站周边有大片沼泽地,可能是 BRW 站大气

表 2 瓦里关和其他 6 个 GAW 北半球本底站大气 CH_4 年平均浓度($\times 10^{-9}$)

Table 2 Atmospheric CH_4 annual means ($\times 10^{-9}$) at Waliguan and other six NH sites over 1992—2004

| 年 | BRW | MHD | UUM | NWR | TAP | WLG | MLO |
|------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 1992 | 1828.7 | 1804.7 | 1815.0 | 1778.0 | 1859.0 | 1787.3 | 1745.4 |
| 1993 | 1829.4 | 1808.8 | 1819.5 | 1782.1 | 1875.8 | 1786.1 | 1748.5 |
| 1994 | 1843.8 | 1815.3 | 1824.5 | 1786.8 | 1859.9 | 1799.8 | 1758.3 |
| 1995 | 1845.6 | 1814.6 | 1825.8 | 1798.8 | 1844.3 | 1804.4 | 1762.0 |
| 1996 | 1845.8 | 1829.8 | 1835.0 | 1797.8 | 1849.5 | 1808.2 | 1762.7 |
| 1997 | 1847.0 | 1825.9 | 1830.8 | 1802.0 | 1854.0 | 1807.2 | 1772.4 |
| 1998 | 1859.4 | 1834.4 | 1845.0 | 1809.0 | 1876.2 | 1812.4 | 1777.4 |
| 1999 | 1863.7 | 1842.9 | 1848.5 | 1815.3 | 1882.8 | 1824.8 | 1785.3 |
| 2000 | 1861.3 | 1842.7 | 1853.4 | 1812.2 | 1879.2 | 1830.0 | 1784.9 |
| 2001 | 1860.2 | 1844.8 | 1854.8 | 1814.9 | 1879.2 | 1828.1 | 1786.5 |
| 2002 | 1862.2 | 1844.9 | 1851.2 | 1824.1 | 1889.4 | 1821.1 | 1783.6 |
| 2003 | 1877.3 | 1850.5 | 1859.5 | 1826.3 | 1895.4 | 1835.2 | 1791.9 |
| 2004 | 1866.3 | 1844.7 | 1859.4 | 1823.6 | 1883.0 | 1842.7 | 1790.5 |

CH_4 浓度水平较高的主要原因之一。

4.4 瓦里关大气 CO 本底变化

清洁对流层大气中,CO 是 OH 自由基最主要的汇,尽管 CO 本身并不是温室效应的直接贡献者,但它与 OH 自由基的反应控制着其他温室气体如 CO_2 、 CH_4 、 O_3 等浓度的时空分布与变化,进而对区域环境乃至全球气候产生重大影响^[35-36]。图 7 是瓦里关大气 CO 本底变化时间序列,空心点代表 CO 月平均值。可以看出,1991—2004 年瓦里关大气 CO

具有准周期性的季节波动,月平均浓度范围 94.8×10^{-9} — 194.9×10^{-9} ,与北半球平均状况基本相符(同时期北半球月平均浓度范围 90×10^{-9} — 180×10^{-9} ,南半球仅 50×10^{-9} — 80×10^{-9} ,人为源最强区域 30° — 60° N 为 110×10^{-9} — 210×10^{-9});年均增长值约 1.2×10^{-9} ,其中 1994、2001 年增长值最高,分别为 16.2×10^{-9} 和 12.0×10^{-9} ,而 1993、2002 年负增长最甚,分别为 -16.4×10^{-9} 和 -14.4×10^{-9} ,其他年份不尽相同,而同期全球平均年增

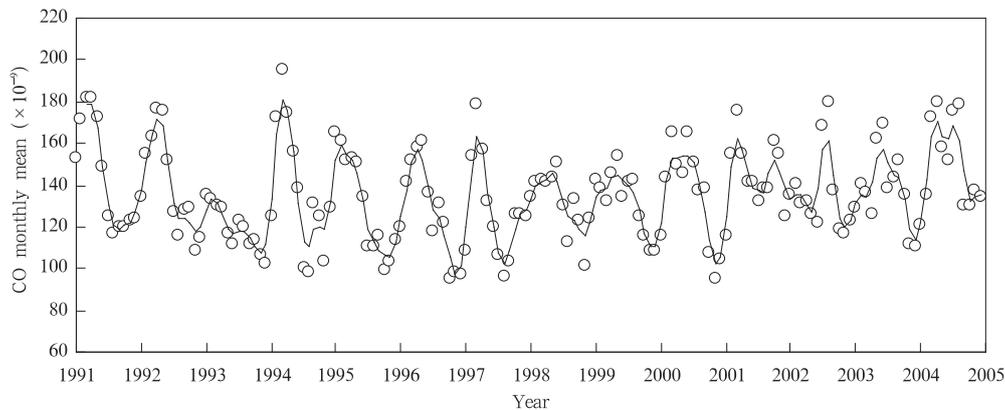


图 7 瓦里关大气 CO 本底变化时间序列

Fig. 7 Atmospheric CO time series for 1992—2004 at Mt. Waliguan

长约 -0.8×10^{-9} (1997—1998 年全球年均增长最高, 接近 18×10^{-9} , 1999 年负增长最大, 约 -16×10^{-9}), 瓦里关大气 CO 长期趋势及逐年增长值波动与北半球平均状况有一定差异^[16,22,30,33]。

从 1991—2004 年瓦里关大气 CO 多年平均季变化(图 8)可以看出, 瓦里关大气 CO 有准周期性季节波动, 多年平均季变化呈非对称性, 冬末春初(2、3 月)最高, 缓慢下降至秋末(10、11 月)达最低值, 随后较快速上升, 次年春季回复最高值, 多年平均季振幅约 45×10^{-9} 。与同期、同纬度 MBL 平均季变化以及北半球平均状况^[30,33]相比, 瓦里关 CO 的季变化显得异常, 因 MBL 大气 CO 浓度冬末春初(2、3 月)达最高, 盛夏(7、8 月)降至最低, 平均季振幅约 70×10^{-9} ; 北半球 $90^{\circ}-60^{\circ}\text{N}$ 、 $60^{\circ}-30^{\circ}\text{N}$ 和 $30^{\circ}-\text{EQ}$ 平均季变化的位相与 MBL 大体一致, 平均季振幅分别约 85×10^{-9} 、 75×10^{-9} 和 65×10^{-9} , 南半球则位相相反、平均季振幅约 $20 \times 10^{-9}-25 \times 10^{-9}$ 。与 MBL 相比^[22], 瓦里关在夏季(7、8 月)CO 浓度

最多能高出 40×10^{-9} 、冬季(12、1、2 月)可低约 20×10^{-9} , CO 最低值滞后到秋末、平均季振幅仅 45×10^{-9} , 季变化与所处纬度带平均特征不太一致。

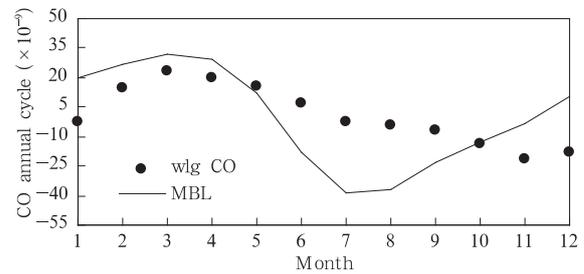


图 8 瓦里关大气 CO 多年平均季变化
Fig. 8 Atmospheric CO mean annual cycle over 1992—2004 at Mt. Waliguan

表 3 是 1992—2004 年瓦里关等 7 个 GAW 北半球本底站大气 CO 年平均浓度。通过对比分析得知, 北极站点 BRW(全球站)、海洋边界层站点 MHD(全球站)以及内陆高海拔站点 NWR(区域站)观测值与内陆高海拔站点 WLG(全球站)具有可比性; 而

表 3 瓦里关和其他 6 个 WMO-GAW 北半球本底站大气 CO 年平均浓度($\times 10^{-9}$)

Table 3 Atmospheric CO annual means ($\times 10^{-9}$) at Waliguan and other six sites (NH) over 1992—2004

| Year | BRW | MHD | UUM | NWR | TAP | WLG | MLO |
|------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 1992 | 142.3 | 135.9 | 152.2 | 129.5 | 255.0 | 139.9 | 96.7 |
| 1993 | 132.9 | 132.5 | 157.4 | 120.4 | 231.3 | 119.5 | 90.3 |
| 1994 | 144.5 | 139.5 | 163.8 | 124.4 | 223.9 | 137.3 | 96.6 |
| 1995 | 134.6 | 127.1 | 144.1 | 121.2 | 204.2 | 130.8 | 93.9 |
| 1996 | 136.1 | 135.4 | 151.4 | 122.8 | 231.5 | 127.5 | 86.8 |
| 1997 | 129.4 | 121.7 | 144.3 | 119.1 | 237.0 | 127.7 | 103.2 |
| 1998 | 159.4 | 152.1 | 170.1 | 136.6 | 260.9 | 131.5 | 109.9 |
| 1999 | 135.6 | 130.6 | 146.3 | 119.2 | 231.3 | 132.4 | 95.3 |
| 2000 | 125.5 | 118.6 | 148.3 | 110.4 | 223.9 | 134.8 | 88.3 |
| 2001 | 125.4 | 124.3 | 148.9 | 118.2 | 206.8 | 144.6 | 91.3 |
| 2002 | 137.0 | 137.8 | 165.5 | 129.3 | 224.7 | 136.0 | 94.8 |
| 2003 | 147.9 | 140.0 | 165.0 | 129.2 | 232.8 | 138.0 | 99.9 |
| 2004 | 129.7 | 126.7 | 150.1 | 115.4 | 225.1 | 150.4 | 95.9 |

位于大陆 CO 源区附近的海洋边界层站点 TAP(区域站)和内陆站点 UUM(区域站), 其 CO 观测值远高于瓦里关; 海洋边界层高海拔站点 MLO(全球站)CO 观测值则远低于所有其他站点^[22]。

4.5 瓦里关大气 CO₂、CH₄、CO 源汇探讨

一系列研究表明^[37-39], 大气中 CO₂、CH₄、CO 和黑碳气溶胶(BC)很大程度上来源于含碳物质如化石燃料和生物质的燃烧。基于观测资料在瓦里关开展的研究^[14-16,21,40-41]发现, 瓦里关 CO₂、CH₄、CO 和 BC 几乎同时出现的短期抬升(冬季尤为吻合),

明显与各季节来自测点东北方向约 100 km 处青海省省会西宁市、约 500 km 处黄河峡谷工业及人口集中地带的污染气团有关。过去十几年间, 瓦里关大气 CO₂ 年均本底浓度呈线性增长(1.8×10^{-6})、CH₄ 年均本底浓度几乎也呈线性增长(4.4×10^{-9}), 尤为显著的是, CO 本底浓度的微弱增长趋势有异于呈微弱下降趋势的北半球及全球平均状况^[16,22]、与 CO 同样主要来源于含碳物质不完全燃烧的 BC, 其年均本底浓度水平增加了约 1 倍^[42]。瓦里关地处寒温带干旱高原山区, 生物质燃烧的直

接影响很小,中国西部开发过程中能源结构和人口分布的变化,可能对瓦里关大气 CO_2 和 CH_4 的持续增长、CO 的微弱增长趋势以及 BC 的持续增长有较显著的贡献。

根据文献[35, 43-45], CH_4 和 CO 是对流层 OH 自由基最大的消耗者,3 者相互制约,通常夏季 OH 自由基浓度最高,加之 CH_4 和 CO 在大气中的输送和累积,北半球本底 CH_4 和 CO 浓度有较明显的季节波动, CH_4 通常在夏季出现最低值、秋冬季达最大,CO 一般在夏季降至最小、春季达到最大。然而,1991—2004 年瓦里关 CH_4 多呈现秋末最低和夏季最高值、CO 多为秋末最低值和初春最高值。因瓦里关夏季大气光化学过程较弱^[46]、秋冬晴好天气相对较多,夏季 CH_4 高值可能源于周边地区尤其是观测点东北方向(青海省省会西宁市以及黄河河谷工业地带)的输送,秋末低值可能归因于观测点主导风向由东北转为西南荒漠地区,以上因素可能也是导致瓦里关 CO 低值滞后到秋末的主要原因^[20, 22, 40]。但确切的结论尚需更充足的观测资料和进一步的数值模式研究。

Lagrangian 三维后向轨迹假定采样点气团能回溯到源地,考虑气象场的分辨率和模式误差,一般反推 3—5 d,在一定条件下,能给出空气团中大气成分源区的合理信息^[39, 47]。将选定时段所有轨迹分类合并,则能获得气团输送的统计平均特征,从而对气团到达点大气成分浓度的变化做出更为客观的解释^[48-49]。周凌等^[15, 40]结合瓦里关大气 CO_2 和 CH_4 及同期的地面风现场连续观测资料,借助后向轨迹及其簇分析方法,得出瓦里关各季节典型月份多年聚类的气流类型,计算出对应于各簇的大气 CO_2 和 CH_4 实测浓度统计平均值,初步推测了不同季节 CO_2 和 CH_4 的潜在源区。结果表明,瓦里关大气 CO_2 和 CH_4 簇浓度与该簇到达瓦里关之前经历的下垫面源汇有密切关系;个例分析进一步显示,大气 CO_2 和 CH_4 浓度水平在几天时间尺度的短期抬升主要来源于瓦里关东部和东北部地区污染气团的长距离输送。

4.6 瓦里关大气 CO_2 浓度短期变化的数值模拟

Hysplit-4 扩散与输送模式^[50]作为气团轨迹源区分析的补充及深入,能够更全面地考虑较复杂的物理过程,定量计算不同源汇过程通过大气输送对观测点大气成分浓度变化的贡献。周凌晔^[40]利用

CO_2 人为源(化石燃料排放)和自然生态系统源汇格点资料、卫星遥感植被指数以及 NCEP 气象场资料,考虑物种的输送、扩散、沉降等物理过程,用 Hysplit-4 模式分别模拟了 1999 年 1 月和 7 月(瓦里关冬、夏典型月份,地面主导风向和长距离输送的来向截然不同)中国区域大气 CO_2 浓度场。气象场选择北半球, CO_2 源汇区域 $17.5^\circ\text{—}57.5^\circ\text{N}$ 、 $50.5^\circ\text{—}134.5^\circ\text{E}$ (忽略了模拟区域之外源汇的影响),基本覆盖了冬、夏几天时间里可能影响瓦里关的地区,模拟的大气 CO_2 短期变化与实测结果具有可比性。进一步分析了不同区域人为源和自然生态系统源汇对瓦里关大气 CO_2 短期变化的贡献。结果表明,瓦里关大气 CO_2 短期变化主要体现了不同区域人为源输送与扩散,其中,周边国家的累积贡献在冬季较显著而夏季可略,国内人为影响较大地区主要是青海、甘肃和四川盆地;自然生态系统源汇的影响极为复杂、冬季的累积贡献超过夏季。由于使用了大尺度气象场和源汇格点资料,模拟区域内除瓦里关之外缺乏其他地区的实测资料,模式参数化方案和源汇的细化尚需通过将模拟结果与更多站点实测资料的不断对比来调整和改进。

5 结 语

本文综述了 10 多年来在中国瓦里关本底站开展温室气体及相关微量成分长期观测与研究的主要进展和结果。通过与北半球中高纬度地区平均状况以及北半球其他 6 个 GAW 本底站大气 CO_2 、 CH_4 和 CO 同期观测数据的对比分析,进一步探讨了瓦里关大气 CO_2 、 CH_4 和 CO 的本底变化、源汇特征及其成因。2001 年起,瓦里关大气 CO_2 和 CH_4 观测资料已进入全球同化数据库,应用于大陆地区源汇通量估算和全球源汇分布等数值模式中,所反映的亚洲内陆大气本底状况和各种时间尺度的变化受到了国内外同行日益关注。研究提出的瓦里关大气 CO_2 和 CH_4 本底数据筛选方法,可以为中国各个区域本底站大气本底条件的区分和地域代表性的进一步研究提供方法和经验。研究发现瓦里关大气 CH_4 和 CO 多年平均季节变化与北半球中高纬度地区平均状况并不一致,其确切成因尚需通过强化观测及相关物种的补充观测来进一步诠释。瓦里关大气 CO_2 和 CH_4 源区分析结果可靠性的提高,对中国大气 CO_2 时空分布进行模拟,或由 CO_2 本底浓度

时空分布的变率反推其源汇的时空分布与变化,则需要国内其他典型地区乃至周边国家/地区相关资料的配合,包括观测资料精度、准确度、时空分辨率和同化程度的进一步提高,还需要更为详实、细致的源汇清单、以及模式科学结构和技术方法的不断改进。

致谢:感谢美国 NOAA ESRL 提供经质量分析的北半球站点大气 CO₂、CH₄ 和 CO 观测数据。感谢瓦里关本底台业务人员在野外现场的辛勤工作。感谢中国气象局以及国内相关机构的长期支持。感谢 WMO 等国际组织、加拿大气象局等国际合作伙伴们的大力协助。

参考文献

- [1] WMO. International operations handbook for Measurement of Background Atmospheric Pollution. WMO TD491, Geneva, Switzerland. 1978
- [2] WMO. The Global Atmosphere Watch Guide. GAW No. 86, WMO TD553, Geneva, Switzerland. 1993
- [3] WMO. The Strategic Plan of the Global Atmosphere Watch. GAW No. 113, WMO TD802, Geneva, Switzerland. 1995
- [4] WMO. Global Atmosphere Watch Measurements Guide. GAW No. 143, WMO TD1073, Geneva, Switzerland. 2001
- [5] WMO. Strategy for the Implementation of the Global Atmosphere Watch Programme (2001—2007), a contribution to the implementation of the WMO long-term plan. GAW No. 142, WMO TD1077, Geneva, Switzerland. 2001
- [6] 周秀骥. 中国大气本底基准观象台进展总结报告(1994-2004). 北京:气象出版社,2005:98pp
- [7] 温玉璞,邵志清,徐晓斌等. 用非色散红外气体分析仪进行大气 CO₂ 本底浓度的测量. 应用气象学报, 1993, 4(4): 476-480
- [8] 周凌晞,汤洁,张晓春等. 气相色谱法观测本底大气中的甲烷和二氧化碳. 环境科学学报, 1998, 18(4):356-361
- [9] 周凌晞,汤洁,Ernst M K 等. 中国西部本底大气中 CO 的连续测量. 环境科学, 2001, 22(3):1-5
- [10] 温玉璞,邵志清,徐晓斌等. 青海瓦里关大气 CO₂ 本底浓度变化规律的观测研究. 中国环境科学, 1993, 13(6): 420-424
- [11] Wen Y, Shao Z, Xu X, et al. Observation and investigation of variabilities of baseline CO₂ concentration over Waliguan Mountain in Qinghai Province of China. Acta Meteor Sinica, 1994, 8(3): 255-262
- [12] 温玉璞,汤洁,邵志清等. 瓦里关山大气二氧化碳浓度变化及地表排放影响的研究. 应用气象学报, 1997, 8:129-136
- [13] 周凌晞,汤洁,温玉璞等. 瓦里关山大气甲烷本底浓度变化特征分析. 应用气象学报, 1998, 9(4): 385-391
- [14] 周凌晞,汤洁,温玉璞等. 地面风对瓦里关山大气 CO₂ 本底浓度的影响分析. 环境科学学报, 2002, 22(2): 135-139
- [15] Zhou L X, Tang J, Wen Y P, et al. The impact of local winds and long-range transport on the continuous carbon dioxide record at Mount Waliguan, China. Tellus, 2003, 55B(2):145-158
- [16] Zhou L X, Mukai H, Wen Y P, et al. Monitoring of atmospheric carbon monoxide at Mount Waliguan, China. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2003, 67(18)S1:A583
- [17] 周凌晞,李金龙,温玉璞等. 瓦里关山大气 CO₂ 及其 δ¹³C 本底变化. 环境科学学报, 2003, 23(3): 295-300
- [18] Zhou Lingxi, Wen Yupu, Zhang Xiaochun. Contribution of the CMA to the WMO GAW Programme and Associated Activities: The Current and Future Application at China GAW Stations. 11th WMO/IAEA Meeting of Experts on Carbon dioxide Concentration and Related Tracer Measurement Techniques. GAW No. 148, TD1138: 129-131, 2003
- [19] Zhou L X, Worthy D E J, Lang P M, et al. Ten years of atmospheric methane observations at a high elevation site in Western China. Atmos Environ, 2004, 38: 7041-7054
- [20] 周凌晞,李金龙,汤洁等. 瓦里关山大气 CH₄ 本底变化. 环境科学学报, 2004, 24(1):91-95
- [21] 周凌晞,温玉璞,李金龙等. 地面风对瓦里关山大气 CH₄ 本底浓度的影响分析. 应用气象学报, 2004, 15(3):257-265
- [22] 周凌晞,温玉璞,李金龙等. 瓦里关山大气 CO 本底变化. 环境科学学报, 2004, 24(4):637-642
- [23] Zhou L X, Conway T J, White J W C, et al. Long-term record of atmospheric CO₂ and stable isotopic ratios at Waliguan Observatory: Background features and possible drivers, 1991-2002. Global Biogeochemical Cycles, 2005, 19(3): GB3021, doi:10.1029/2004GB002430
- [24] Zhou Lingxi, Wen Yupu, Zhang Xiaochun. CO₂, CH₄, CO Monitoring & Research Programmes at the China GAW Baseline Observatory. 12th WMO/IAEA Meeting of Experts on Carbon dioxide Concentration and Related Tracer Measurement Techniques. GAW No. 161, TD1275: 231-237, 2005
- [25] 程红兵,王木林,温玉璞等. 我国瓦里关山、兴隆温室气体 CO₂、CH₄ 和 N₂O 的背景浓度. 应用气象学报, 2003, 14: 402-409
- [26] 王庚辰,温玉璞,孔琴心等. 中国大陆上空 CO₂ 本底浓度及其变化. 科学通报, 2002, 47(10): 780-783
- [27] Globalview-CO₂. Cooperative Atmospheric Data Integration Project-Carbon Dioxide. NOAA CMDL Data Product and Report, Boulder, Colorado, USA. 2005
- [28] Globalview-CH₄, Cooperative Atmospheric Data Integration Project-Methane. NOAA CMDL Data Product and Report, Boulder, Colorado, USA. 2005
- [29] Masarie KA, Tans P P. Extension and integration of atmospheric carbon dioxide data into a globally consistent measurement record. J Geophys Res, 1995, 100(D6):11593-11610

- [30] WDCGG. World data center for greenhouse gases (WDCGG) Data Summary. WMO WDCGG, No. 29, Tokyo, Japan. 2005
- [31] Gloor M, Fan S M, Pacala S, et al. Optimal sampling of the atmosphere for purpose of inverse modeling: A model study. *Global Biogeochem Cycles*, 2000, 14(1):407-428
- [32] Miller J B, Tans P P. Calculating isotopic information from atmospheric measurements at various scales. *Tellus*, 2003, 55B: 207-214
- [33] CMDL. Climate Monitoring and Diagnostic Laboratory, 2000-2001. NOAA CMDL Summary Report, 2004, 27:32-57, Boulder, Colorado, USA.
- [34] Dlugokencky E J, Masarie K A, Lang P M, et al. Continuing decline in the growth rate of the atmospheric methane burden. *Nature*, 1998, 393: 447-450
- [35] Thompson A M, Cicerone R J. Possible perturbations to atmospheric CO₂, CH₄, and OH. *J Geophys Res*, 1986, 91 (D10): 10853-10864
- [36] Daniel J S, Solomon S. On the climate forcing of carbon monoxide. *J Geophys Res*, 1998, 103(D11): 13249-13260
- [37] Conway, T J, Steele L P, Novelli P C. Correlations among atmospheric CO₂, CH₄ and CO in the Arctic, March 1989. *Atmos Environ*, 1993, 27A: 2881-2894
- [38] Langenfelds R L. Interannual growth rate variations of atmospheric CO₂, δ¹³C, H₂, CH₄, and CO between 1992 and 1999 linked to biomass burning. *Global Biogeochem Cycles*, 2002, 16(3): doi:10.1029/2001GB001466
- [39] Worthy D E J, Trivett N B A, Hopper J F, et al. Analysis of long-range transport events at Alert, Northwest Territories, during the polar sunrise experiment. *J Geophys Res*, 1994, 99(D12): 25329-25344
- [40] 周凌晞. 中国大陆地区主要温室气体本底特征研究[学位论文]. 北京:北京大学环境科学中心, 2001:139pp
- [41] 汤洁, 温玉璞, 周凌晞等. 中国西部大气清洁地区黑碳气溶胶的观测研究. *应用气象学报*, 1999, 10(2): 160-170
- [42] 秦世广. 中国大陆地区黑碳气溶胶的观测研究[学位论文]. 北京:中国气象科学研究院, 2001:89pp
- [43] Crutzen P J. On the role of CH₄ in atmospheric chemistry: Sources, sinks and possible reductions in anthropogenic sources. *Ambio*, 1995, 24(1): 52-55
- [44] Holloway T, Levy II H, Kasibhatla P. Global distribution of carbon monoxide. *J Geophys Res*, 2000, 105(D10): 12123-12147
- [45] Novelli P C, Masarie K A, Lang P M. Distributions and recent changes of CO in the lower troposphere. *J Geophys Res*, 1998, 103(D15): 19015-19033
- [46] Ma J, Tang J, Zhou X J, et al. Estimates of the chemical budget for ozone at Waliguan Observatory. *J Atmos Chem*, 2002, 41: 21-48
- [47] Cape J N, Methven J, Hudson L E. The use of trajectory cluster analysis to interpret trace gas measurements at Mace Head, Ireland. *Atmos Environ*, 2000, 34: 351-363
- [48] Brankov E, Rao S T, Porter P S. A trajectory-clustering-correlation methodology for examining the long-range transport of air pollutants. *Atmos Environ*, 1998, 32: 1525-1534
- [49] Harris J M. 10 years trajectories and cluster analysis. *J Geophys Res*, 1997, 102(D7): 8781-8791
- [50] Draxler R R. Description of the HYSPLIT-4 modeling system. NOAA Technical Memo, ERL ARL224, 1997

PROGRESS IN THE STUDY OF BACKGROUND GREENHOUSE GASES AT WALIGUAN OBSERVATORY

Zhou Lingxi Zhou Xiuji Zhang Xiaochun Wen Yupu Yan Peng

*Key Laboratory for Atmospheric Chemistry, Centre for Atmosphere Watch and Services,
Chinese Academy of Meteorological Sciences, CMA, Beijing 100081*

Abstract

As greenhouse gas concentrations rise well above their natural levels, resulting in catastrophic impact on the climate and environment, their temporal and spatial distributions as well as source and sink characteristics have been incorporated into most international science plans and integrated observational systems. Measurements of background greenhouse gases are made globally and it is the experimental basis to evaluate their anthropogenic impact and to study the relative mitigating decisions. There remain, however, large uncertainties in the derived source/sink values, partly due to a shortage of observational data. This paper summarizes a decadal progress in the study of background greenhouse gases at Waliguan Observatory (WLG) in western China, and brings forward an indispensable requirement to carry out long-term systematic observations that represent typical background regions of China.

By using the quality controlled in-situ measurements, background data selection procedures for the atmospheric CO_2 and CH_4 at WLG are developed based on local horizontal and vertical winds. On the basis of observation, background variations and source/sink characteristics of atmospheric CO_2 , CH_4 and CO at WLG are investigated that demonstrate both the Asian inland and global representatives. In addition, the atmospheric CO_2 , CH_4 and CO data at WLG are compared to the data from 6 selected Northern Hemispheric (NH) sites in the NOAA ESRL air sampling network as well as to the Marine Boundary Layer (MBL) reference value from 1992 to 2004 to better address their common and specific features. Unique seasonal cycles of the atmospheric CH_4 and CO at WLG are revealed and possible drivers discussed. The atmospheric CO_2 and CH_4 source/sink identification at WLG are performed by the isobaric back trajectory clusters. By means of the Hysplit-4 transport/diffusion model, the CO_2 variation at WLG in January and July 1999 are simulated and compared with observations. Based on a series of uncertainties at present, this paper at last puts forward a number of scientific issues remaining to be resolved.

Key words: Greenhouse gases, Data selection, Background characteristics, Source and sink identification, Hysplit-4 model simulation.