

1992年大气甲烷增长速率异常 下降的模拟研究^{*}

张仁健 王明星

(中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029)

摘要 应用初步建立的全球二维大气化学模式, 模拟了甲烷、一氧化碳和 OH 自由基自工业革命以来的长期变化, 对 1992 年大气中甲烷增长速率突然下降这一异常现象的可能原因如平流层 O₃ 下降, 皮纳图博火山引起对流层温度下降、甲烷排放源减少等逐一进行了定量研究。研究还发现一氧化碳排放源的减少是另一重要影响因子, 并进行了验证。结果表明, 1992 年甲烷增长速率急剧下降的主要原因来自甲烷和一氧化碳排放源的减少。

关键词: 全球二维大气化学模式; 甲烷; 增长速率; 一氧化碳

1 引言

CH₄ 是重要的温室气体之一, CH₄ 在大气中的汇是与 OH 自由基的反应。而 OH 自由基很活泼, 其浓度受 CH₄、CO、NO_x、O₃、水汽等浓度的影响。工业革命以来 CH₄ 体积分数增长了一倍多^[1]。但在过去的几十年中, CH₄ 的增长速率不是定常的, 70 年代末、80 年代初 CH₄ 年增长速率较大, 但 80 年代后期有所减少, CH₄ 的增长速率从 1983 年到 1990 年持续下降^[2], 1992 年 CH₄ 增长速率较 1992 年前有大幅度降低^[3]。CH₄ 增长速率的异常变化已引起人们的极大关注, 但其原因各说不一, 困扰着我们对未来大气 CH₄ 体积分数变化趋势的估计。

本研究运用初步建立的全球二维大气化学模式^[4], 对 1992 年 CH₄ 增长速率异常下降的机制进行了数值模拟研究。

2 模式简介

2.1 模式结构

本模式为一包括了复杂化学反应机制的全球二维大气化学模式, 它包括了从南极到北极、从地面到 20 km 高空范围内的大气。模式的水平分辨率为 5°, 垂直分辨率为 1 km。模式考虑了 34 种大气成分和 104 个化学和光化学反应, 其中, 固定成分 5 种: N₂、O₂、H₂、CO₂、H₂O; 活泼成分 13 种: O(³P)、O(¹D)、H、OH、HO₂、N、NO₃、HCO、CH₂O、CH₃、CH₃O、CH₃O₂、CH₃OOH; 较长寿命成分 16 种:

1998-11-12 收到, 1999-02-03 收到修改稿

* 国家重点基础研究发展项目 G1998043403 和中国科学院大气物理研究所知识创新工程项目“大气污染的控制与规划研究”共同资助

CH_4 、 N_2O 、 CO 、 CH_3Cl 、 CFCl_3 、 CCL_4 、 CF_2Cl_2 、 CH_3CCL_3 、 O_3 、 NO_x ($\text{NO}+\text{NO}_2$)、 H_2O_2 、 HNO_2 、 HNO_3 、 HNO_4 、 N_2O_5 。其中较长寿命成分的上下边界条件取为浓度梯度或通量，而不是固定浓度。连续方程采用二维交替方向隐式格式方法^[5,6]，时间步长为 8 h。其中反应系数主要参考文献[6~9]，光解截面取自文献[10,11]。扩散系数 K_{yy} 和 K_{zz} 取自文献[12]。温度场和水汽场取自欧洲中心多年月平均资料 (ECMWF)。模式的流场为根据加热率计算的剩余环流^[13]。

2.2 排放源

模式对 CH_4 、 CO 和 NO_x 的排放源进行了处理，主要将其分为季节性源和非季节性源。稻田、沼泽的 CH_4 排放源有季节变化，为季节性排放源，其他排放源如反刍动物、采煤、天然气利用、城市垃圾、白蚁、海洋等不考虑季节变化，为非季节性源。这样，将 CH_4 排放源参数化为纬度和时间（季节和年际）的函数。 CO 和 NO_x 的排放源，除了生物质燃烧排放为季节性排放源外，其他为非季节性源， CO 和 NO_x 的排放源被参数化为纬度和时间（季节）的函数^[8]。

CH_4 、 CO 和 NO_x 排放源自 1840 年起按下列公式变化：

$$S(\text{CH}_4) = 280 + 39.225[e^{0.0132324 \times (\text{year} - 1840)} - 1],$$

$$S(\text{CO}) = 320 + 76.8[e^{0.01312 \times (\text{year} - 1840)} - 1],$$

$$S(\text{NO}_x) = 20 + 3.2[e^{0.01312 \times (\text{year} - 1840)} - 1].$$

用以上公式，主要考虑稻田、家畜、生物质燃烧、城市垃圾和煤矿开采与天然气利用等人类排放源随时间增长，又考虑到在 1950 年前以较慢的速度增长，在 1950 年后以较快的速度增长；而反刍动物（野生）、自然湿地、白蚁和海洋等自然排放源则保持不变。按此计算， CH_4 、 CO 和 NO_x 在工业革命前的年排放源分别为 280 Tg、320 Tg 和 20 Tg N，1991 年分别为 530.1 Tg、800 Tg 和 40 Tg N，与 IPCC (1994) 报告提供的数据基本一致^[14]。

3 模式计算和结果

3.1 CH_4 体积分数长期变化的模拟

工业革命前相当长一段时间里， CH_4 体积分数在 $(600 \sim 800) \times 10^{-9}$ 之间，相对变化比较小， CH_4 体积分数可看作处于平衡态。采用工业革命前 CH_4 、 CO 和 NO_x 的排放源方案，即 CH_4 、 CO 化碳和氮氧化物 (NO_x) 的年排放量分别为 280 Tg、320 Tg 和 20 Tg N，经过长时间运行二维大气化学模式后，得到大气成分的分布作为工业革命前的大气状况。然后，以此为初值，加入含年际变化的 CH_4 、 CO 和 NO_x 的排放源方案，把模式从 1840 年积分到 2020 年，得到工业革命以来的 CH_4 、 CO 、 O_3 和 OH 自由基的浓度变化。

工业革命前 CH_4 年排放量为 280 Tg，土壤吸收 30 Tg，从对流层向平流层的输送为 16.7 Tg，与 OH 自由基反应了 233.3 Tg，大气中 CH_4 总量为 2 136.9 Tg，全球平均体积分数为 760.1×10^{-9} 。对流层 OH 自由基平均浓度为 7.17×10^5 分子数 / cm^3 。1991 年 CH_4 年排放量为 530.1 Tg，土壤吸收 30 Tg，从对流层向平流层的输送为 36.4 Tg，

与 OH 自由基反应了 467.5 Tg, 大气中 CH_4 总量为 4 531.7 Tg, 全球平均体积分数为 $1.611.9 \times 10^{-9}$, 对流层 OH 自由基平均浓度降为 5.79×10^5 分子数 / cm^3 。到 2020 年 CH_4 和 OH 浓度将分别为 $2.090.7 \times 10^{-9}$ 和 5.47×10^5 分子数 / cm^3 。表 1 是模式模拟的 1840 年、1991 年和 2020 年的 CH_4 和 OH 的平均浓度 (体积分数)。

表 1 模拟的全球 CH_4 、 CO 、 O_3 和 OH 的平均浓度 (体积分数)

时间	$\text{CH}_4 / 10^{-9}$	$\text{CO} / 10^{-9}$	$\text{O}_3 / 10^{-9}$	$\text{OH} / (10^5 \text{ 分子数} / \text{cm}^3)$
1840	760.1	26.9	39.0	7.17
1991	1 611.9	75.7	51.7	5.79
2020	2 090.7	104.6	57.8	5.47

图 1 是模式模拟的工业革命以来的 CH_4 和 OH 浓度变化图, 可以看出 CH_4 自工业革命以来一直是增长的, 模拟结果与南极冰芯的 CH_4 体积分数 (1840~1978 年) 以及在 Cape Grim ($40^{\circ}41'S$, 1984~1992 年) 观测的 CH_4 体积分数有很好的一致性; 而 OH 自工业革命以来一直呈下降趋势, 从 1840 年到 1991 年, 对流层 OH 平均浓度下降了 19%, 今后还会继续下降。

图 2 是模式模拟的 1991 年地面 CH_4 体积分数与观测^[15]的 CH_4 体积分数的比较。 CH_4 体积分数在南半球要小于北半球, 在北半球, CH_4 体积分数随纬度逐渐变大, 到 65°N 达到最大值。这主要是与 CH_4 的排放源集中在北半球有关。

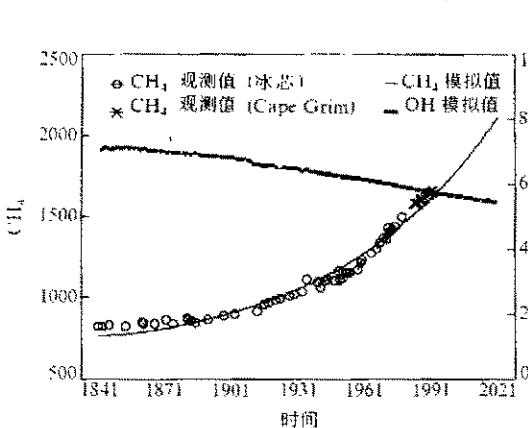


图 1 模拟的 $\text{CH}_4 (10^{-9})$ 和 $\text{OH} (10^5 \text{ 分子数} / \text{cm}^3)$ 的长期趋势

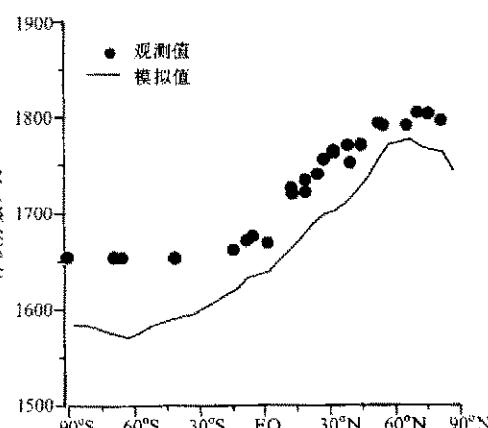


图 2 模拟和观测的地表层 CH_4 体积分数 (1991 年)

图 3 是模式模拟的 $35\sim40^{\circ}\text{N}$ 的 CH_4 体积分数和在民勤 (38°N) 观测的背景大气 CH_4 体积分数的比较 (1985~1988 年), 观测 CH_4 体积分数在 7 月达到最小而 12 月达到最大, 模拟的 CH_4 体积分数在 6 月达到最小而在 12 月达到最大, 两者有较好的一致性, 而 OH 浓度正好与此相反, 在 6 月达到最大而在 12 月达到最小。

3.2 CH_4 增长率在 1992 年突然下降的模拟研究

3.2.1 观测到的 CH_4 增长率的异常变化

目前大气中 CH_4 体积分数为 1.72×10^{-9} , 在 1990 年前的大约 30 年中, CH_4 以 $0.75\% / \text{a} \sim 1\% / \text{a}$ 的速率增长^[1]。研究表明 1983~1990 年间大气 CH_4 的年增长速率

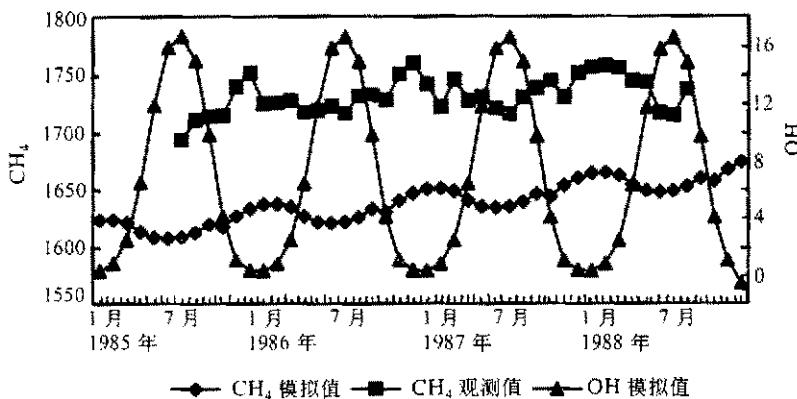


图 3 模拟地面层 CH_4 ($35\sim40^\circ\text{N}$) 和在民勤 (38°N) 观测的 CH_4 的季节变化

从 1983 年的 $13.3 \times 10^{-9} / \text{a}$ 降到 1990 年的 $9.5 \times 10^{-9} / \text{a}$ ^[2], 对 CH_4 背景体积分数观测资料研究还发现 1992 年 CH_4 增长速率异常减少^[3], 北半球的 CH_4 的年平均增长速率从 $(11.6 \pm 0.2) \times 10^{-9}$ (1983~1990) 下降到 1992 年的 $(1.8 \pm 1.6) \times 10^{-9}$, 南半球的 CH_4 的年平均增长速率从 $(11.1 \pm 0.2) \times 10^{-9}$ (1983~1990) 下降到 1992 年的 $(7.7 \pm 1.0) \times 10^{-9}$, 对于这种变化的原因各说不一^[16,17]。

对于 1992 年 CH_4 增长速率的异常下降的最可能的解释是 CH_4 排放源与汇的不平衡, 即源的减弱和汇的增强, 可能的机制主要有以下几种:

(1) CH_4 排放源减弱。西伯利亚的天然气储量约占世界的 $1/3$, 1989 年因输气管道的爆炸, 前苏联采取有关修复措施来减少天然气的泄漏, 估计 1991 年这些措施已取得成效。另外, 前苏联的解体和东欧经济的衰退, 全球煤产量下降。另一个可能的源是皮纳图博火山引起温度降低导致北半球中高纬度湿地排放以及南半球生物质燃烧的 CH_4 排放的减少^[16]。

(2) 平流层 O_3 减少引起对流层 OH 浓度的增大。1992 年平流层 O_3 比前年有较大的减少^[18], 从而引起进入对流层的太阳紫外辐射增强, O_3 的光解率增大, 引起 $\text{O}(\text{D})$ 浓度的增大, 从而引起对流层 OH 浓度的增大, 使 CH_4 的汇增强。

(3) 皮纳图博火山引起的温度和水汽的变化。观测表明皮纳图博火山使 1992 年对流层温度下降了 0.7°C ^[19]。由此引起大气中水汽浓度的减少以及 CH_4 与 OH 的反应系数的下降。同时由于皮纳图博火山的爆发引起 1992 年对流层温度下降了 0.7°C , 温度的下降会有两个方面的影响: (1) 温度的下降会引起 CH_4 与 OH 自由基反应系数的下降; (2) 温度的下降还会引起大气中水汽浓度的下降。例如, 在温度为 298 K 时, CH_4 与 OH 的反应系数和水汽浓度分别减少 1.35% 和 4.7% ; 在温度为 220 K 时, CH_4 与 OH 的反应系数和水汽浓度分别减少 2.5% 和 7.5% 。从反应机理看, 温度的下降由此引起 CH_4 汇的减弱, 从而引起 CH_4 增长速率的变化。

以上是国际上普遍公认的关于 1992 年 CH_4 增长率异常下降的可能原因的定性分析, 考虑到 CH_4 在大气中的汇是与 OH 反应, 而 OH 主要的汇是与 CH_4 和 CO 反应, 而与 CO 与 OH 的反应占 OH 汇的 60% 以上^[1]。因此 CO 体积分数的变化可能会引起

OH 浓度的变化, 从而对 CH_4 增长率的变化产生影响。

CO 体积分数在 1990~1993 年也以每年百分之几的惊人速度下降, 观测结果表明^[20], 1990 年 6 月到 1993 年 7 月, 北半球 CO 体积分数下降 $(7.3 \pm 0.9) \times 10^{-9}$, 南半球下降了 $(4.2 \pm 0.5) \times 10^{-9}$, 全球下降了 5.75×10^{-9} 。另一研究表明^[21], CO 在 80 年代以 $(1.2 \pm 0.6)\%$ 的年增长速率增长, 而在 1988 年至 1992 年, CO 在北半球下降 $(1.3 \pm 0.9) \times 10^{-9}/\text{a}$, 南半球下降了 $(2.3 \pm 0.3) \times 10^{-9}/\text{a}$ 。造成 CO 体积分数下降的原因主要是由于排放源的减少。在北半球, 人类源排放 CO 有所下降趋势, 在美国, CO 是“标准污染物”, 绝大多数汽车排放 CO 前体物受越来越严格的控制, 而且这种控制措施已推广到欧洲。一些地区如前苏联和东欧国家的经济衰退, 也同样引起 CO 排放源的减少。这些因子综合起来, 可能是北半球 CO 体积分数下降的原因。在南半球, 热带地区 CO 主要排放源—生物质燃烧排放 CO 的下降是热带地区 CO 下降的主要原因。

本研究除对从平流层 O_3 体积分数减小引起对流层 O_3 光解增大、1992 年对流层温度下降引起反应系数和水汽浓度的变化以及 CH_4 地面排放源减少这三个方面对 CH_4 近年异常增长进行定量研究外, 还提出了 CO 排放源减少可能是 1992 年 CH_4 异常增长的新观点, 并试图通过模式进行验证。

3.2.2 模式研究实验

下面是几个实验方案:

方案 A: 模式正常运行, CH_4 排放源按正常速度增长, 1992 年 CH_4 增长率较 1991 年有很小的增长, 南北半球均增长仅为 0.18×10^{-9} 。

方案 B: 保持 1992 年 CH_4 排放源与 1991 年相同, 1992 年 CH_4 增长率较 1991 年有所减少。这说明, 即使 CH_4 排放源保持不变, 其增长速率也会下降。

方案 C: 1992 年对流层温度下降 0.7°C , 同时考虑温度下降引起的反应系数和水汽浓度的变化。 CH_4 体积分数在北半球和南半球 1992 年分别增大了 17.02 和 15.64×10^{-9} , 由于温度下降引起的反应系数的变化引起 CH_4 增长率增大了 2.62×10^{-9} (北半球) 和 2.15×10^{-9} (南半球)。

方案 D: 研究表明^[17], 1992 年平流层 O_3 明显减少了约 6%, 引起全球对流层的紫外辐射增强, 导致 CH_4 体积分数北半球和南半球分别增大了 11.90×10^{-9} 和 11.56×10^{-9} , CH_4 在 1992 年增长率减少了 2.50×10^{-9} (北半球) 和 1.93×10^{-9} (南半球)。

方案 E: 同时考虑 O_3 对流层光解率增大 6% 和对流层温度下降 0.7°C 引起反应系数和水汽浓度的变化, 由此引起 1992 年 CH_4 体积分数增长率增大了 0.16×10^{-9} 和 0.22×10^{-9} 。

方案 F: CH_4 排放源在北半球 ($30\text{--}60^\circ\text{N}$) 减少 21.4 Tg , 南半球 ($0\text{--}30^\circ\text{S}$) 减少 6.3 Tg , 由此引起北、南半球 1992 年 CH_4 增长率减少了 10.00×10^{-9} 和 3.58×10^{-9} 。由此引起 1992 年 CO 北、南半球体积分数减少 0.10×10^{-9} 和 0.06×10^{-9} , CH_4 排放源的降低对 CO 体积分数变化影响是很小的。

方案 G: CO 排放减少 50 Tg , 由此引起 CH_4 北半球增长率减少 1.12×10^{-9} , 南半球增长率减少 0.80×10^{-9} 。1992 年 CO 在北半球减少 3.35×10^{-9} , 在南半球减少 1.49×10^{-9} , 这一结果与观测到的 CO 体积分数变化一致^[21]。

方案 H: CO 排放减少 50 Tg , CH_4 排放在北半球 ($30\text{--}60^\circ\text{N}$) 减少 19.3 Tg 南半

球 ($0\sim 30^\circ S$) 减少 4.4 Tg , 引起 CH_4 北半球增长率降低 9.95×10^{-9} , 南半球增长率降低 3.60×10^{-9} 。这一方案的结果与观测到的 CH_4 体积分数变化及观测的 CO 体积分数变化一致^[21]。

方案 I: CO 排放减少 100 Tg , 由此引起 CH_4 北半球增长率减少 2.27×10^{-9} , 南半球增长率减少 1.61×10^{-9} , 约占 CH_4 增长率变化的 27%。引起 1992 年 CO 北半球减少 7.92×10^{-9} , 南半球 3.69×10^{-9} 。本方案 CO 体积分数变化与观测结果相近^[21]。

方案 J: CO 排放减少 100 Tg , CH_4 排放在北半球 ($30\sim 60^\circ N$) 减少 17.2 Tg 南半球 ($0\sim 30^\circ S$) 减少 2.5 Tg , 引起 1992 年 CH_4 北半球增长率降低 9.92×10^{-9} , 南半球增长率降低 3.62×10^{-9} 。这一方案的结果与观测到的 CH_4 体积分数变化及观测的 CO 体积分数变化一致^[20]。

方案 K: 在 1992 年同时考虑 (a) 对流层 O_3 光解率增加 6%, (b) 对流层温度下降 0.7°C , (c) CO 排放减少 100 Tg , (d) 1992 年北半球 ($30\sim 60^\circ N$) 减少 17.2 Tg , 南半球 ($0\sim 30^\circ S$) 减少 2.5 Tg , (d) CO 减少 100 Tg 。结果是 1992 年北、南半球 CH_4 增长速率分别为 4.64×10^{-9} 和 10.09×10^{-9} , 增长率减少了 9.76×10^{-9} 和 3.4×10^{-9} 。这一结果与观测到的 CH_4 和 CO 体积分数变化均较为接近。

上述各试验方案的模拟结果和观测结果列于表 2。

表 2 1992 年 CH_4 增长率的观测和各敏感性试验方案的模拟结果

	半球	增长率 $\times 10^{-9}$	增长率变化 $\times 10^{-9}$
观测结果	北半球	1.8	-9.8
	南半球	7.7	-3.4
方案 A: 模式正常运行	北半球	14.40	+0.18
	南半球	13.50	+0.18
方案 B: 1992 年 CH_4 源与 1991 年同	北半球	13.16	-1.24
	南半球	12.82	-0.67
方案 C: 对流层温度下降 0.7°C	北半球	17.02	2.62
	南半球	15.64	2.15
方案 D: 平流层 O_3 减少 6%	北半球	11.90	-2.50
	南半球	11.56	-1.93
方案 E: 方案 C+方案 D	北半球	14.55	0.16
	南半球	13.72	0.22
方案 F: CH_4 排放源减少 21.4 Tg ($30\sim 60^\circ N$) 和 6.3 Tg ($0\sim 30^\circ S$)	北半球	4.40	-10.00
	南半球	9.91	-3.58
方案 G: CO 排放源减少 50 Tg	北半球	13.28	-1.12
	南半球	12.70	-0.80
方案 H: CO 排放源减少 50 Tg , CH_4 排放源减少 19.3 Tg ($30\sim 60^\circ N$) 和 4.4 Tg ($0\sim 30^\circ S$)	北半球	4.45	-9.95
	南半球	9.90	-3.60
方案 I: CO 排放源减少 100 Tg	北半球	12.13	-2.27
	南半球	11.88	-1.61
方案 J: CO 排放源减少 100 Tg , CH_4 排放源减少 17.2 Tg ($30\sim 60^\circ N$) 和 2.5 Tg ($0\sim 30^\circ S$)	北半球	4.48	-9.92
	南半球	9.87	-3.62
方案 K: (a) 对流层 O_3 减少 6%; (b) 对流层温度下降 0.7°C ; (c) CH_4 排放减少 17.2 Tg ($30\sim 60^\circ N$) 和 2.5 Tg ($0\sim 30^\circ S$); (d) CO 排放降低 100 Tg	北半球	4.64	-9.76
	南半球	10.09	-3.40

1992年大气中 CH_4 排放源的变化主要来自于北半球人为排放源的减少和南半球生物质燃烧排放源的减少。前苏联的解体以及东欧经济衰退导致全球天然气产量急剧下降,因此天然气利用过程中泄露排放的 CH_4 相应减少,这是北半球人为排放源的减少的主要原因。但是,如果不考虑 CO 引起的变化,需要在 $30\sim60^\circ\text{N}$ 减少 21.4 Tg 和南半球热带减少 6.3 Tg (方案F),突然减少如此大的排放源是难以与实际情况相符的,而且也不能解释 CO 体积分数的变化。一旦考虑了 CO 排放源的减少(100 Tg),只需在 $30\sim60^\circ\text{N}$ 减少 17.2 Tg 和南半球热带减少 2.5 Tg (方案K),既可以解释 CH_4 增长率的变化,又可以解释 CO 体积分数变化,其中 CO 排放源的减少对 CH_4 增长率下降的贡献可占27%之多。

4 总结与讨论

本研究运用初步建立的全球二维大气化学模式来模拟大气 CH_4 和 OH 自由基浓度的长期变化。然后通过敏感性实验对1992年大气 CH_4 增长率的突然下降的原因进行了定量研究。主要结论如下:

(1) 工业革命前的大气 CH_4 的体积分数和年排放总量分别为 760×10^{-9} 和 280 Tg ,1991年大气 CH_4 的体积分数和年排放总量分别为 1611.9×10^{-9} 和 530.1 Tg ,与IPCC(1994)^[14]报告一致。到2020年大气 CH_4 的体积分数和年排放总量为 2090.7×10^{-9} 和 966.2 Tg 。

(2) 1992年由于火山爆发影响引起对流层温度下降引起 CH_4 增长率在1992年北半球增加了 2.62×10^{-9} ,南半球增加了 2.15×10^{-9} ;平流层 O_3 减少引起 CH_4 增长率在1992年北半球降低了 2.49×10^{-9} ,南半球降低了 1.95×10^{-9} 。这两个过程是相互抵消的,其总结果对1992年 CH_4 增长率的异常变化几乎没有什么贡献。

(3) 除上述因子外,1992年大气 CH_4 增长速度下降的主要原因有二:一个是由于 CH_4 排放源在北半球($30\sim60^\circ\text{N}$)减少 17.2 Tg 和南半球($0\sim30^\circ\text{S}$)减少 2.5 Tg 引起(73%),另一个是由于 CO 的排放源减少 100 Tg 引起(占27%)。

参 考 文 献

- Crutzen, P. J., On the role of CH_4 in atmospheric chemistry, sources, sinks and possible reductions in anthropogenic sources, *Royal Swedish Academy of Sciences*, 1995, 24(1), 52~55.
- Steele, L. P., E. J. Dlugokencky, P. M. Lang, P. P. Tans, R. Martin, and K. A. Masarie, Slowing down of the global accumulation of atmospheric methane during 1980s, *Nature*, 1992, 358, 313~316.
- Dlugokencky E. J., L. P. Steele, P. M. Lang and K. A. Masarie, The growth rate and distribution of atmospheric methane, *J. Geophys. Res.*, 1994, 99, 17021~17043.
- 张仁健, 全球二维大气化学模式和甲烷的增长, 中国科学院大气物理研究所博士论文, 1997, 126pp.
- 苏煜城, 吴启光, 偏微分方程数值解法, 北京: 气象出版社, 1984, 444~446.
- 王书仁, 陈献伟, 游永乾, 王贵勤, 多元大气数值模拟, 北京: 气象出版社, 1992, 273pp.
- Hough, A. M., The development of a two-dimensional global tropospheric model: Model chemistry, *J. Geophys. Res.*, 1991, 96, 7325~7362.
- Law K. S. and Pyle J. A., Modeling traces gas budgets in the troposphere. 1. Ozone and odd nitrogen, 2. CH_4 and CO , *J. Geophys. Res.*, 1993, 98, 18377~18412.

- 9 Brasseur, G., M. H. Hitchman, S. Walters, M. Dymek, E. Falise and M. Pirre, An interactive chemical dynamical radiative two-dimensional model of the middle atmosphere., *J. Geophys. Res.*, 1990, **95**, 5639~5655.
- 10 DeMore, W. B., M. J. Molina, S. P. Sander, D. M. Golden, R. F. Hampson, I. J. Kurylo, C. J. Howard and A. R. Ravishankara, Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling, JPL 87~41 Publ., Jet Propul. Lab., Inst. of Technol., California, 1987, 195pp.
- 11 World Meteorological Organization (WMO), Atmospheric ozone 1985, Assessment of our understanding of the processes controlling its present distribution and change, Rep. 16, Global Ozone Res. Monit. Proj., 1986, Geneva.
- 12 Hidalgo H. and P. J. Crutzen, The tropospheric and stratospheric composition perturbed by NO_x emissions of high-altitude aircraft, *J. Geophys. Res.*, 1977, **82**, 5833~5866.
- 13 Stordal, F., I. S. A. Isaksen, and K. Horntveth, A diabatic circulation two-dimensional model with photochemistry, simulations of ozone and long-lived tracers with surface sources, *J. Geophys. Res.*, 1985, **90**, 5757~5776.
- 14 Houghton, J. T. et al. (eds), *IPCC / Intergovernmental Panel on Climate Change*, Cambridge: Cambridge University Press, 1994, 339pp.
- 15 James T. Peterson (eds), Summary Report 1991, National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA), Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory (CMDL), 1992, No.20, 131pp.
- 16 Rudolph, J., Anomalous methane, *Nature*, 1994, **368**, 19~20.
- 17 Bekki, S., K. S. Law and J. A. Pyle, Effect of ozone depletion on atmospheric CH₄ and CO concentrations, *Nature*, 1994, **371**, 595~602.
- 18 Gleason, J. F. et al., Record low global ozone in 1992, *Science*, 1993, **260**, 523~526.
- 19 McCormick, M. P., Larry W. Thomason and Charles R. Trepte, Atmospheric effects of the Mt Pinatubo eruption, *Nature*, 1995, **373**, 399~404.
- 20 Novelli, P. C., Masario, K. A. Tans, P. P. and Lang, P. M., Recent changes in atmospheric carbon monoxide, *Science*, 1994, **263**, 1587~1590.
- 21 Khalil, M. A. K. and R. A. Rasmussen, Global decrease of atmospheric carbon monoxide, *Nature*, 1994, **370**, 639~641.

A Modeling of the Sudden Decrease in CH₄ Growth Rate in 1992

Zhang Renjian and Wang Mingxing

(State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry,
Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029)

Abstract A two-dimensional global chemistry model is developed to study the distribution and long-term trend of CH₄. The model contains 34 species and 104 chemical and photochemical reactions. Using the model, the long history trends of CH₄ and OH in atmosphere is simulated, and a comparison between the model results and observations shows the simulation is successful. Experiments were done to investigate the causes of a dramatic decrease in the growth rate of CH₄ in 1992 such as stratospheric ozone depletion, decrease of temperature in the troposphere due to Mount Pinatubo eruption and descendant of CH₄ sources fluxes. A new explanation is proposed and verified by this model that the decrease of CO emission plays an important role in the abnormal growth rate of CH₄ in 1992. It shows that the decreases of emissions of CH₄ and CO are the main cause of the dramatic decrease in growth rate of CH₄ in 1992.

Key words: two-dimensional global chemistry model; methane; growth rate; carbon monoxide