

大气甲烷浓度长期变化及未来趋势*

张仁健 王明星 王跃思

(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, 对工业革命以来甲烷的长期变化进行了模拟研究。模式将 CH_4 、 CO 和 NO_x 排放源方案进行了参数化。在考虑了 CH_4 排放源以及对 OH 浓度有重要影响的 CO 和 NO_x 排放源的长期变化的基础上, 模拟了 CH_4 和 OH 浓度自 1840 年到 20 世纪 90 年代的长期变化趋势。结果表明, 工业革命前的大气甲烷体积分数和年排放总量分别为 760×10^{-9} 和 280 Tg, 1991 年大气甲烷的体积分数和年排放总量分别为 1611.9×10^{-9} 和 533.9 Tg。而对流层中 OH 的数密度则由 1840 年的 $7.17 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$ 变化到 1991 年的 $5.79 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$, 下降了 19%。如果 CH_4 、 CO 及 NO_x 这三种排放源继续按给定的方案增长, 那么到 2020 年大气甲烷的体积分数和年排放总量将增加为 2090.7×10^{-9} 和 966.2 Tg, 而 OH 的数密度将为 $5.47 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$, 比 1840 年降低 24%。

关键词: 全球二维大气化学模式; 甲烷; 排放源

1 引言

甲烷是重要的温室气体之一^[1,2]。研究表明, 工业革命以来甲烷浓度增长了 1 倍多^[3,4]。但在过去的几十年中, 甲烷的增长速率不是定常的, 70 年代末 80 年代初, 甲烷年增长速率较大, 但 80 年代后期有所减少^[5], 甲烷增长速率的异常变化已引起人们的极大关注。

甲烷在大气中的汇主要是与 OH 发生化学反应。甲烷在过去的 150 年中的快速增长不仅由于其排放源的增长, 同时与 OH 浓度的变化有关。研究^[6]表明, OH 在过去的 1 个多世纪里由于甲烷和一氧化碳的增长而有所下降。

在本研究中, 运用初步建立的全球二维大气化学模式^[7], 考虑了甲烷、一氧化碳和氮氧化物排放源的纬度-季节变化及其长期变化趋势, 对工业革命以来甲烷浓度的长期变化趋势进行了模拟, 并对未来甲烷的可能浓度变化进行了计算。

2 模式简介

2.1 模式结构

模式范围包括了从南极到北极, 从地面到 20 km 范围内的大气。模式的水平分辨率为 5° , 垂直分辨率为 1 km。模式的流场为根据非绝热加热率计算的剩余环流^[8], 扩散系数取自文献^[9]。

2000-09-01 收到, 2000-09-20 收到修改稿

* 国家重点基础研究发展规划项目“我国生存环境演变和北方干旱化趋势预测研究”项目 G1999043400 的资助

采用在实际应用中有很好的稳定性的二维交替方向隐式格式方法对物质连续方程求解^[10,11], 时间步长取为 8 h。温度场和水汽场取自 1990 年欧洲中心多年月平均资料 (ECMWF)。

2.2 模式化学

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: N_2 , O_2 , H_2 , CO_2 和 H_2O ; 活泼成分 13 种: $O(^3P)$, $O(^1D)$, H , OH , HO_2 , N , NO_3 , HCO , CH_2O , CH_3 , CH_3O , CH_3O_2 , CH_3OOH ; 较长寿命成分 16 种: CH_4 , N_2O , CO , CH_3Cl , $CFCl_3$, CCl_4 , CF_2Cl_2 , CH_3CCl_3 , O_3 , $NO_x(NO+NO_2)$, H_2O_2 , HNO_2 , HNO_3 , HNO_4 , N_2O_5 。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。化学反应系数主要参考文献[11~14], 光解系数是根据资料^[15,16]计算得到的月平均值。

2.3 排放源

模式对 CH_4 , CO 和 NO_x 的排放源进行了处理, 甲烷稻田、沼泽排放源有季节变化, 其他排放源无季节变化。最后, 将甲烷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 的排放源也被参数化为纬度和时间 (季节和年际) 的函数^[14]。

3 大气甲烷的长期变化

3.1 工业革命年以前的大气化学组成模拟

1990 年, CH_4 , CO 和 NO_x 的排放源分别为 529 Tg、800 Tg 和 40 Tg (N)。根据此排放源方案, 对模式积分 54 年后得到当前稳态的大气化学组成, 与观测结果比较表明模式可以较好地模拟大气化学组成^[17]。

工业革命前相当长一段时间里, 甲烷体积分数在 $(550 \sim 750) \times 10^{-9}$ 之间, 人类活动对大气组成的影响相对比较小, 大气化学组成可看作处于平衡态。采用工业革命前的 CH_4 , CO 和 NO_x 的排放源方案: CH_4 , CO 和 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, 得到大气化学组成的分布作为工业革命前的大气状况。

3.2 大气甲烷的长期变化模拟

以上面得到的工业革命前大气化学组成为初值, 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。这里我们采用的长期排放源方案为

$$\begin{aligned} CH_4 \quad S_{year} &= 280 + 39.225e^{0.0132324(year-1840)-1}, \\ CO \quad S_{year} &= 320 + 76.8e^{0.01312(year-1840)-1}, \\ NO_x \quad S_{year} &= 20 + 3.2e^{0.01312(year-1840)-1}. \end{aligned}$$

对于以上排放源方案, 甲烷排放源在 1840 年为 280 Tg, 1990 年为 526 Tg。从 1840 到 1940 的 100 年间, 甲烷排放源从 280 Tg 增长到 389 Tg, 而从 1940 到 1990 年的 50 年间, 甲烷排放源从 389 Tg 增长到 526 Tg。1940 年前 CH_4 排放源增长速度较慢

而 1940 年后则增长较快 (图 1)。这种现象是与全球经济及人口的增长趋势相符的。

根据以上两个排放源方案模拟得到了甲烷的长期变化 (图 2), 模拟结果与南极冰芯资料 (1840~1978 年) 及 Cape Grim 观测站 ($40^{\circ}10'S$, $144^{\circ}41'W$) 观测的甲烷浓度^[18] (1984~1993 年) 进行了比较。模拟得到的甲烷浓度与观测结果有较好的一致性。

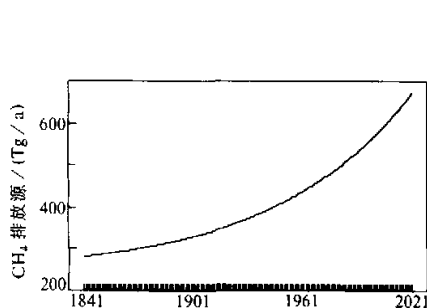


图 1 甲烷排放源的长期变化

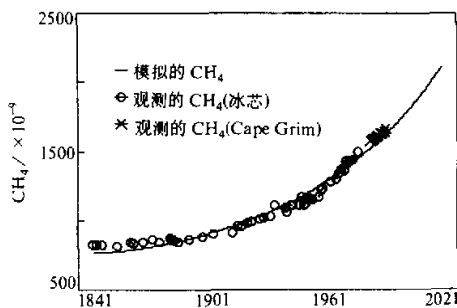


图 2 模拟和观测的甲烷的长期变化

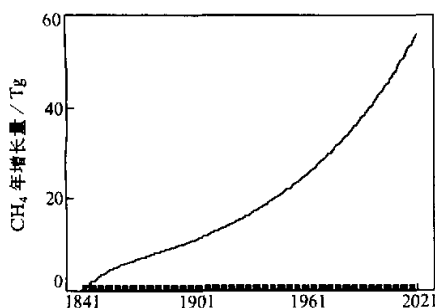


图 3 模拟的大气甲烷年增长量

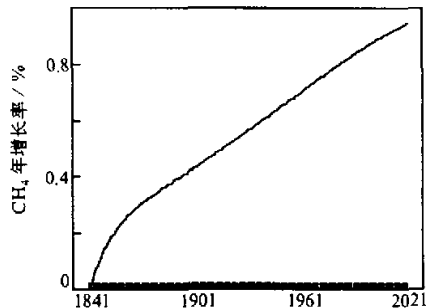


图 4 模拟的大气甲烷年增长率

从模拟的大气甲烷年增长量 (图 3) 看, 1990 年甲烷年增长 37.3 Tg。根据文献[18], 1990 年大气甲烷的年增长为 35~40 Tg。模拟的 1990 年甲烷年增长率为 0.83% (图 4)。表 1 是模拟的 CH_4 、CO 和 OH 在 1840、1991 和 2020 年的浓度。

表 1 模拟的 CH_4 、CO 体积分数和 OH 的数密度

年份	$CH_4 / \times 10^{-9}$	$CO / \times 10^{-9}$	$OH / (10^5 \text{ cm}^{-3})$
1840	760.1	26.9	7.17
1991	1611.9	75.7	5.79
2020	2090.7	104.6	5.47

图 5 给出了模拟得到的 CO 和 OH 浓度的长期变化。甲烷排放源主要来自地面的直接排放。与此不同的是, 一氧化碳排放源一方面来自陆地的直接排放, 同时还有来自甲烷和非甲烷烃的氧化。大气中甲烷和一氧化碳的增长消耗更多的 OH。1840 年对流层 OH 平均数密度为 $7.17 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$, 1991 年为 $5.79 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$, 在过去的 150 年间

OH 下降了 19%，2020 年将会下降到 $5.47 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$ 。OH 的降低意味着甲烷汇的减少，对甲烷的增长有一定的贡献。

计算的一氧化碳在 80 年代的增长率是 $1.03\%/\text{a} \sim 1.06\%/\text{a}$ ，与观测结果相符。已有的研究^[19]表明，在 1990 年前的 30 年中，全球 CO 以约 $1\%/\text{a}$ 的增长率增长。

图 6 是模拟 1991 年地面层甲烷和观测的甲烷体积分数的纬度变化^[20]。甲烷体积分南半球要小于北半球，南半球甲烷体积分数变化不大，在北半球甲烷体积分数随纬度逐渐变大，到 65°N 达到最大值。这主要是由于甲烷的排放源大多分布在北半球。

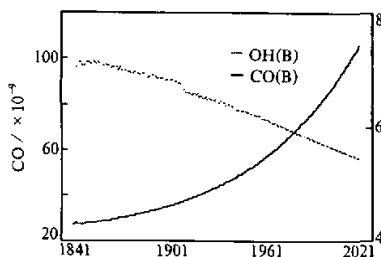


图 5 模拟的 OH 和 CO 的长期变化

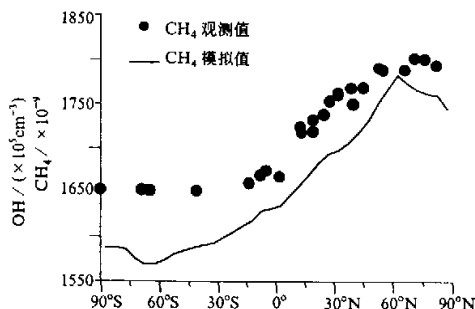


图 6 甲烷的纬度变化(1991 年)

4 结果讨论

应用初步建立的全球二维大气化学模式，模拟了甲烷自工业革命以来的长期变化。模拟的甲烷长期变化与甲烷的冰芯资料有较好的一致性。计算结果表明，工业革命前甲烷体积分数为 760×10^{-9} ，其年排放源为 280 Tg。1991 年，甲烷体积分数为 1611.9×10^{-9} ，年排放源为 530 Tg。1991 年甲烷年增长量为 37.9 Tg，年增长率为 0.84%。结果与 IPCC (1994) 研究报告一致。如果 CH_4 、CO 及 NO_x 这三种排放源继续按给定的方案增长，2020 年甲烷体积分数将达到 2090.7×10^{-9} ，年排放源为 766.2 Tg。

模式结果还表明，OH 浓度在过去的 150 多年中是下降的，其数密度自 1840 年的 $7.17 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$ 下降到 1991 年的 $5.79 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$ ，下降了 19%。今后，OH 还将继续下降，预计 2020 年 OH 数密度为 $5.47 \times 10^5 \text{ cm}^{-3}$ ，要比 1840 年降低 24%。

参 考 文 献

- 1 王明星，关于温室气体浓度变化及其引起的气候变化的几个问题，气候与环境研究，2000，5(2)，329~332。
- 2 王明星，张仁健，郑循华，温室气体的源和汇，气候与环境研究，2000，5(1)，75~79。
- 3 Etheridge, D. M., G. I. Pearman and P. J. Fraser, Changes in tropospheric methane between 1841 and 1978 from a high accumulation-rate Antarctic ice core, *Tellus*, 1992, 44B, 282~294.
- 4 张仁健，王明星，李晶，杨昕，王秀玲，中国甲烷排放现状，气候与环境研究，1999，4(2)，194~202。
- 5 Steele, L. P., E. J. Dlugokencky, P. M. Lang, P. P. Tans, R. Martin and K. A. Masarik, Slowing down of the global accumulation of atmospheric methane during 1980s, *Nature*, 1992, 358, 313~316.
- 6 Khalil, M. A. K. and R. A. Rasmussen, Atmospheric methane trends over the last 10,000 years, *Atmos. Environ.*,

- 21, 1984, 2445~2452.
- 7 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.
- 8 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.
- 9 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.
- 10 苏煜斌、吴启光, 偏微分方程数值解法, 北京: 气象出版社, 1989.
- 11 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.
- 12 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.
- 13 Hough, A. M., The development of a two-dimensional global tropospheric model—the model transport, *Atmospheric Environment*, 1989, **23**, 1235~1261.
- 14 Law, K. S. and J. A. Pyle, Modeling trace gas budgets in the troposphere, 1. Ozone and odd nitrogen; 2. CH_4 and CO, *J. Geophys. Res.*, 1993, **98**, 18377~18412.
- 15 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.
- 16 World Meteorological Organization, 1986 Atmospheric ozone, Assessment of our understanding of the processes controlling its present distribution and change, Rep. 16, Global Ozone Res. Monit. Proj., Geneva, 1985.
- 17 Zhang Renjian, Wang Mingxing and Zeng Qingcun, Global two-dimensional chemistry model and simulation of atmospheric chemical composition, *Adv. Atmos. Sci.*, 2000, **17**(1), 72~82.
- 18 Houghton J.T.(eds.), *Climate Change 1993*, Radiative Forcing of Climate Change and An Evaluation of the IPCC IS92 Emission Scenarios, Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, 1994, 339pp.
- 19 Zander, R., Ph. Demoulin, D. H. Ehhalt, U. Schmidt and C. P. Rinsland, Secular increase of the total vertical column abundance of carbon monoxide above central Europe since 1950, *J. Geophys. Res.*, 1989, **94**, 11021~11028.
- 20 James T. Peterson (eds), Summary Report 1991, National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA), Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory (CMDL), No.20, 1992, 131pp.

Long-Term Trends of Atmospheric Methane and Its Future Change

Zhang Renjian, Wang Mingxing and Wang Yuesi

(State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry,

Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029)

Abstract A global two-dimensional chemistry model is developed to study long-term trends of methane (CH_4) since industrial revolution. The emissions of methane, carbon monoxide and nitrous oxides are parameterized as functions of latitude and time. With long-term emission scenarios of CH_4 , CO, NO_x , long-term trends of CH_4 are simulated. The results have a good agreement with observation from ice cores. The modeled CH_4 increased 760×10^{-9} in 1840 and 1611.9×10^{-9} in 1991, while the modeled number concentration of OH decreased from 7.17×10^5 molecule/ cm^3 in 1840 to 5.79×10^5 molecule/ cm^3 in 1991, which decreased by 19%. If emissions of CH_4 , CO, NO_x continue to decrease according to given scenarios, CH_4 concentration and emission will be 2090.7×10^{-9} and 966.2 Tg/a, OH number concentration will be 5.47×10^5 molecule/ cm^3 , which decreased by 24% compared with that in 1840.

Key words: global two-dimensional chemistry model; methane