www.scichina.com earth.scichina.com

我国4个国家级本底站大气CO2浓度变化特征

刘立新,周凌晞*,张晓春,温民,张芳,姚波,方双喜

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 * 联系人, E-mail:<u>zhoulx@cams.cma.gov.cn</u>

收稿日期: 2008-05-20; 2008-08-05

国家自然科学基金(批准号: 40775078)、国家重点基础研究计划(编号: 2006CB403701)、国际科技合作项目(编号: 2007DFA20650)、国家 科技基础条件平台建设项目(编号: 2005DKA10602)和中国气象局气候变化专项(批准号: CCSF2007-1)资助

摘要 CO₂ 是影响全球温度的主要温室气体,其浓度变化状况能反映出不同区域大气受自然和人为活动影响的程度.以中国气象局青海瓦里关、北京上甸子、浙江临安和黑龙江龙凤山4个国家级大气本底站为研究基地,每周一次进行 Flask 瓶采样/实验室非色散红外吸收法 CO₂浓度分析.根据 2006 年 9 月~2007 年 8 月期间观测资料,并结合瓦里关长期在线观测数据处理经验,对大气 CO₂采样分析数据本底浓度筛选方法进行了初步探讨,并对我国 4 个典型区域大气 CO₂ 本底浓度特征进行了探索性分析,可以为深入了解我国典型区域温室气体浓度现状奠定基础.结果表明:观测期间瓦里关、上甸子、临安和龙凤山站大气 CO₂浓度水平分别为 383.5,385.9,387.8 和 384.3 ppm. 瓦里关站大气 CO₂浓度变化较为平稳;而上甸子和临安两个区域本底站分别受到京津塘经济圈和长三角经济圈人类活动的显著影响,浓度波动较大;龙凤山站由于受到植被光合作用和人类活动的综合影响,大气 CO₂浓度季节变化规律最为明显.

关键词 大气 CO₂ 瓶采样 本底数据筛选 浓度特征 区域差异

二氧化碳(CO₂)是影响全球温度的主要温室气体 之一,随着全球工业化进程的不断加快,人类活动造 成的大气中温室气体浓度的升高给全球的气候、生 态、经济等各方面带来显著影响,受到世界各国政 府、科学家和社会公众的普遍重视^[1-3].

美国Mauna Loa观测站自1957年开始对大气CO₂ 浓度进行观测,迄今为止近50 a的观测记录,为大气 CO₂ 浓度持续增加提供了有力证据^[4].此后,主要发 达国家凭借先进的技术设备和雄厚的经费投入,在 全球不同经纬度地区建立本底观测站并逐渐形成观 测网,如美国国家海洋与大气管理局地球系统研究 实验室(NOAA/ESRL)、澳大利亚联邦科工组织海洋 与大气研究中心(CSIRO/CMAR)、加拿大气象局 (MSC)、日本国立环境研究所(NIES)等,通过在不同 地区开展在线观测或间歇式采样分析,为系统研究 大气温室气体浓度动态变化规律、源汇机制等做出了 重要贡献^[5-7].

我国在温室气体本底观测方面的工作起步较晚, 20世纪80年代之后在青海瓦里关、浙江临安、黑龙 江龙凤山、甘肃民勤、青海五道梁及北京城区等地陆 续开展了短期的温室气体浓度观测,为我国温室气 体研究积累了宝贵经验^[8-12].但基于当时科研条件的 限制,一些问题还有待进一步探讨,例如,国内早期 大多用不锈钢瓶或复合膜气袋存贮样品,容器内壁 对气体的吸附、与气体间的碳交换或轻微漏气等给分 析结果带来一些不确定性;此外,分析大气样品时采 用的标气并不统一,较难进行相互间的比较.随着我 国科研工作者的努力以及国际合作交流的加强,以 上问题正逐步得到解决.

中国气象局现有青海瓦里关全球大气本底站

(2001 年入选科学技术部"国家重点野外科学观测试 验站"试点站,并于 2006 年经考核评估被正式列入科 学技术部"国家大气成分本底野外观测研究站")和北 京上甸子、浙江临安和黑龙江龙凤山 3 个区域大气本 底站(2005 年入选科学技术部"国家大气成分本底野 外观测研究站"),以上 4 个站点也已正式加入世界气 象组织全球大气观测网(WMO/GAW),陆续开展了多 种大气成分观测,2006 年起全面开展了温室气体采样 工作^[13-15].本文较系统地探讨了我国几个典型区域 大气CO₂本底浓度特征,并对其源汇输送和本底数据 筛选方法等进行了探讨.

1 区域概况及研究方法

1.1 研究区域自然概况

本研究对 2006 年 9 月~2007 年 8 月期间青海瓦 里关全球本底站以及北京上甸子、浙江临安和黑龙江 龙凤山 3 个区域本底站大气CO₂浓度进行了采样分析. 其中,青海瓦里关全球本底站是WMO/GAW位于欧 亚大陆腹地唯一的全球本底站^[13];其他 3 个区域本底 站地处我国典型的气候、生态与经济关键区,大气环 境具备区域本底特征(表 1).

1.2 采样及分析方法

大气样品采样及实验室集中分析均参照WMO/ GAW推荐的方法进行^[16,17],采样设备包括便携式采 样器和Flask硬质玻璃瓶,为保证采样质量,采样时 2 个Flask瓶串联(青海瓦里关站为4瓶串联),用当地空 气充分冲洗后加压至 1.2~1.5 atm (1 atm =1.01325× 10⁵ Pa,下同).各站点采样频率均为1次/周,由于瓦 里关站位于山顶,采样时间选择当地清晨下沉气流 期间(以避免白天上坡风向期间地面的人为影响),而 其他 3 个站点则选择在正午至下午时段采样(此时大 气混合层较高,采集的样品和自由对流层接近);采 样期间主要避开雨、雾、霾、沙尘等天气,风速需大于2m/s.依据CO2对红外辐射选择性吸收的原理,在实验室用非色散红外吸收方法(NDIR)并使用工作标气和零气对其浓度进行分析,系统具有较高的测量精度和稳定性^[18].

1.3 数据处理及质量控制

目前,中国气象局大气化学重点开放实验室保 存有两套可溯源至WMO国际CO₂标准的一级标气, 定期对实验室CO₂ 二级标气和工作标气进行标定^[18]. 同时,青海瓦里关站拥有CO₂ 在线观测系统,并且 Flask采样时为 4 瓶串联,其中 2 瓶在本实验室分析, 另 2 瓶送往美国NOAA/ESRL进行分析.由于瓦里关 站在线观测及中美两个实验室独立分析均采用可溯 源至同一标准的工作标气,并使用相同的样品分析 流程及数据处理方法,因此,两实验室独立分析结果 具有很好的一致性并显著相关(图 1, *R*²=0.983, *n*=106, 1 ppm=1 μL/L,下同),在线观测与采样分析结果也呈 显著正线性相关(图 2, *R*²=0.949, *P*=0.00),同时无系 统偏差,说明本研究所获资料可靠,具有国际可比性.



图 1 2006 年 9 月~2007 年 8 月期间 NOAA 与 CAWAS 实验室串联采样分析结果

表1 瓦里关、上甸子、临安和龙凤山4个本底站的自然、生态特征及区域代表性

站点	纬度(N)	经度(E)	海拔/m	气候特征	植被类型	代表区域	距中心城市距离
瓦里关	36°17′	100°54′	3816.0	高原大陆性气候	浅草植被和干旱半干旱 的荒漠草原及沙洲	欧亚大陆腹地	距西宁市 150 km
上甸子	40°39′	117°07′	293.3	暖温带半湿润季风 气候	林地、农田等	京津冀经济圈	距北京市 150 km
临安	30°18′	119°44′	138.6	亚热带季风气候	农田、稻田、灌木	长三角经济圈	距杭州市 50 km
龙凤山	44°44′	127°36′	330.5	温带大陆性季风气候	林地、稻田	东北平原区	距哈尔滨市 180 km



数据相关图

2 结果与分析

2.1 大气 CO2本底浓度数据筛选

大气本底是指滤除了局地条件和人为活动直接 影响、已混合均匀的大气组成特征^[19],对各观测站大 气CO₂浓度数据进行本底筛分,进而获得能反映该地 区大气本底特征的CO₂本底数据,是全面掌握我国不 同区域温室气体浓度变化特征和规律的基础.

本研究中,首先人工剔除由于采样操作不当、分析仪器波动等造成的明显不合理数据;然后利用统计学方法,将大于 3*o*的数据视为异常值剔除,在剩余数据中再将大于 3*o*的数据剔除,直至剩余数据标准差全部小于 3*o*.如此逐步逼近,可以基本去除由于气团在到达采样点前未充分混合均匀(例如明显污染气团过境)等原因造成的影响.

经以上初步处理的数据,再开展进一步的本底 数据筛分.对于青海瓦里关本底站的大气CO₂观测数 据,Zhou等^[20]利用 1994 年 7 月~2000 年 7 月连续 6 a 大气CO₂ 在线观测资料以及 80 m近地面风场连续观 测资料,建立了该站大气CO₂本底数据的分级筛选方 法,提出水平风向NE-ENE-E为瓦里关站温室气体观 测最主要的非本底扇区.本研究中参照此方法对 2006 年 9 月~2007 年 8 月瓦里关站Flask瓶采样数据 进行了本底筛选.

北京上甸子本底站没有CO2长期在线观测数据, 不能完全参考瓦里关站本底数据筛分方法,但该站 拥有CO浓度在线观测数据、因CO是污染气团从源区 输送到边远清洁地区的标志,可以作为CO2人为源的 示踪物[21],而上甸子站正是受京津塘经济圈人为活 动影响较大的区域(上甸子大气CO浓度年均本底值 为 154.9 ppb(1 ppb=1 nL/L, 下同), 年均污染值为 670.8 ppb). 因此, 本研究中结合地面风与CO浓度变 化之间的关系(表 2)以及上甸子站所在地理位置、区 域自然生态特征和社会经济状况,初步将上甸子站 WSW-SW-SSW, SSE和ESE 3 个来向视为非本底扇区, 如果此扇区内的浓度值高于本底值,同时CO2浓度值 也较高,则认为此时的CO2浓度值为非本底数据,予 以剔除. 然后将此扇区内观测数据与CO浓度结果进 行对比,将CO2和CO浓度值均显著高于其他方向的 CO2数据视为非本底数据进行筛除. 浙江临安站与上 甸子站类似, 主要受长三角经济圈人为活动的影响, 因此参考上甸子站本底数据筛分方法,初步将WNW-NW-NNW和NNE-NE-ENE两个来向中明显高于其他 来向的CO2数据视为非本底数据进行筛除.

黑龙江龙凤山站由于观测期间大气 CO₂ 浓度季 节变化规律性较强,没有非常明显的气团来向使其 浓度造成较为剧烈的波动,因此不能参照以上方法 对其进行非本底数据筛分,本研究中仅对明显异常 的数据进行了剔除. 图 3 为经过不同数据处理前后 4 个本底站大气 CO₂浓度变化情况.

2.2 4个本底站大气 CO2本底浓度特征分析

经对4个本底站 Flask 瓶采样大气 CO₂本底浓度 数据筛分后,初步获得了2006年9月~2007年8月期 间不同季节青海瓦里关、北京上甸子、浙江临安和黑 龙江龙凤山站大气 CO₂本底浓度典型值和季振幅,见 表3. 其中瓦里关站实测有效数据为96.15%,上甸子 站73.08%,临安站78.85%,龙凤山站98.08%(按照 每周1次采样,全年共52周计算).

表 2 2007 年北京上甸子区域大气本底站 CO2 与 CO 浓度相关关系比较举例 a)

观测要素对比	4月18日	4月25日	6月13日	6月20日
CO ₂ /ppm	410.07(非本底数据)	389.41(本底数据)	380.73(本底数据)	398.19(非本底数据)
CO/ppb	1219.23	186.70	155.41	925.9

a) 表中 CO2 与 CO 数据观测时间一致, 均为 Flask 采样规定的下午 13:00~15:00 之间



图 3 2006 年 9 月~2007 年 8 月我国 4 个国家级本底站大气 CO₂浓度本底数据筛分前后比对 (a) 原始数据, (b) 本底筛分后数据

表 3 2006 年 9 月~2007 年 8 月我国 4 个本底站大气 CO2 本底浓度典型值和季振幅(单位: ppm)

观测站点	瓦里关	上甸子	临安	龙凤山
秋季(9~11月)	380.9	383.7	386.0	383.5
冬季(12~2月)	384.9	390.3	393.2	394.5
春季(3~5月)	387.8	391.7	388.8	391.7
夏季(6~8月)	380.5	377.8	383.2	368.0
季振幅	13.2	27.0	17.8	37.7
本底浓度典型值	383.5	385.9	387.8	384.3

由表3可知,青海瓦里关站大气CO₂本底浓度值 较低,与全球大气平均浓度增长趋势较为接近(2006 年全球大气CO₂平均浓度为381.2 ppm,近10 a平均 增长率为1.93 ppm/a)^[2],主要是由于该站地处偏远, 远离工业区和人口稠密区,周边没有大的人为污染 源,同时海拔较高,各种大气成分在到达瓦里关之前 已得到充分混合,能较好地反映欧亚内陆大气本底 特征.

由图 4 可知, 瓦里关大气CO₂浓度季节变化较为 明显, 8 月降至最低, 4 月达最高, 2006~2007 年季振幅 为 13.2 ppm, 与其δ¹³C的季节变化规律呈显著的反 相关关系, 与瓦里关长期观测数据统计结果也基本 一致(图 5), 反映了陆地生物圈对大气圈的强烈影响, 主要体现了北半球中高纬度陆地生态系统的周期性 季节变化和源汇特征.参考大气CO₂及其δ¹³C值长期 变化趋势分析结果^[22], 1991~2003 年间, 瓦里关大气 CO₂ 浓度呈逐年增长趋势, 但其δ¹³C值却逐年降低, 主要原因是化石燃料燃烧等过程产生的CO₂ 含有较 多轻碳同位素(化石燃料均来源于远古时期植物演化, 它们都比当今大气CO₂ 含有较少比例的 ¹³CO₂)^[22,23], 反映了人类活动对大气中 CO_2 浓度及其 δ^{13} C的影响.

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[24.25]. 本研究中选择了观测期间不同 季节中的典型时段(即与Flask采样时间、天气条件基 本吻合的时间段),用三维后向轨迹反推3d空气团运 移过程,结合当地自然和人类活动背景信息,尝试对 3 个区域本底站大气CO2 浓度变化给出初步的解释. 3 个区域本底站中,以龙凤山站大气CO,浓度季节变化 最大,主要由于该区域土地覆被以森林为主,受东北 地区局地气团影响较大, 夏季由于森林生态系统光 合作用对CO₂的吸收,大气中CO₂浓度较低,冬季则 受哈尔滨、大庆、齐齐哈尔、沈阳等工业城市的影响, 工业及居民生活燃煤排放大量CO₂,大气中CO₂浓度 显著升高,因此大气CO,浓度值具有非常明显的季节 变化规律,季振幅可达 37.7 ppm; 上甸子站和临安站 则分别受到京津冀经济圈和长三角经济圈的影响较 大,这两个地区人口稠密、城市化程度高,在人



类活动与陆地生态系统的共同作用下,大气CO₂浓度 值高于龙凤山站观测结果,但季振幅趋缓.

从以上分析结果可以看出,我国3个区域本底站 观测结果既能反映所在区域大气CO₂浓度的本底变 化状况,也能反映自然及人类活动的影响.但迄今为 止我国区域本底站稀少、观测周期较短,在线观测系 统正在建设,目前尚无法准确掌握我国不同区域温 室气体浓度变化状况及地区间的差异.同时,由于我 国在大气CO₂稳定同位素示踪分析方面的能力还比 较薄弱,尚无法有效应用大气CO₂中碳、氧同位素比 值的变化对其源汇特征进行合理区分^[26],本科研组 正在这些方面积极探索,结合前期工作基础,以期更 为深入地分析我国不同区域大气CO₂浓度变化的规 律及源汇机理.

3 结论

本研究结果初步表明:

(1) 参考青海瓦里关站长期在线大气CO2浓度数

据本底筛分方法,将 NE-ENE-E 方向视为其非本底扇区,初步确定 2006 年 9 月~2007 年 8 月期间大气 CO₂本底浓度水平为 383.5 ppm,季振幅 13.2 ppm,可基本反映欧亚内陆大气本底特征.

(2) 结合北京上甸子站 CO 浓度在线观测结果与 地面风的关系,并考虑所在区域的自然生态特征和 社会经济状况,初步将 WSW-SW-SSW, SSE 和 ESE 3 个来向、同时 CO₂和 CO 浓度值均显著高于其他方向 的数据视为非本底数据,观测期间上甸子站大气 CO₂ 本底浓度 385.9 ppm;同理,将 WNW-NW-NNW 和 NNE-NE-ENE 两个来向的、CO₂浓度值显著高于其他 方向的数据视为非本底数据,大气 CO₂本底浓度 387.8 ppm.

(3) 黑龙江龙凤山站现有数据尚不能准确筛分 出本底数据,但已有夏半年观测数据能反映出东北 平原陆地生态系统对大气中 CO₂的强烈吸收,而冬半 年居民燃煤对大气中 CO₂浓度升高有较大的影响.

(4) 为弥补我国不同区域温室气体浓度长期、定

点观测资料的严重不足,进一步估算排放量和吸收 汇的动态变化,为我国气候变化的内政、外交提供科 技支撑,尽快建立、健全我国温室气体网络化观测分析系统极为必要.

致谢 感谢青海瓦里关本底站、北京上甸子本底站、浙江临安本底站和黑龙江龙凤山本底站业务人员在野 外现场的辛勤工作,感谢美国 NOAA/ESRL 和 CU/INSTAAR 提供经过质量控制的瓦里关 Flask 瓶采 样比对分析数据,感谢审稿人提出的建设性意见.

参考文献_

- 1 International Panel on Climate Change. Climate Change 2007: the Physical Science Basis. Cambridge: Cambridge University Press, 2007
- 2 World Meteorological Organization. The State of Greenhouse Gases in the Atmosphere Using Global Observations through 2006. In: World Meteorological Organization. Greenhouse Gas Bulletin, 2007
- 3 Komhyr W D, Gammon R H, Harris T B, et al. Global atmospheric CO₂ distribution and variations from 1968—1982 NOAA/GMCC CO₂ flask sample data. J Geophys Res, 1985, 90: 5567—5596[DOI]
- 4 Keeling C D. Atmospheric carbon dioxide variations at Mauna Loa observatory, Hawaii. Tellus, 1976, 28: 538-551
- 5 Conway T J, Tans P P, Waterman L S, et al. Evidence for inter-annual variability of the carbon cycle from the NOAA/CMDL global air sampling network. J Geophys Res, 1994, 99: 22831—22855[DOI]
- 6 Alison C E. δ¹³C of atmospheric CO₂ at Cape Grim: the *in situ* record, the flask record, air standards and the CG92 calibration scale.
 In: Dick A L, Bouma W, Derek N, eds. Baseline Atmospheric Program (Australia) 1996. Victoria: Bureau of Meteorology and CSIRO Division of Atmospheric Research, Melbourne, 1999. 45—56
- 7 World Meteorological Organization. 12th WMO/IAEA Meeting of experts on carbon dioxide concentration and related tracers measurement techniques. WMO GAW Report No. 161, 2005
- 8 温玉璞,汤洁,邵志清,等. 瓦里关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(2): 129-136
- 9 王木林, 李兴生. 大气本底监测站的 CH₄, CO₂和 CO 浓度的初步分析. 见: 李兴生, 主编. 我国大陆和西太平洋地区大气痕 量气体及其他化学物质的监测研究. 北京: 气象出版社, 1986. 172—185
- 10 王明星, 刘卫卫, Rasmussen R A, 等. 我国西北部沙漠地区大气甲烷浓度的季节变化的长期变化趋势. 科学通报, 1989, 9: 684-686
- 11 王庚辰,温玉璞,孔琴心,等. 中国大陆上空 CO2的本底浓度及其变化. 科学通报, 2002, 47(10): 780-783
- 12 王长科,王跃思,刘广仁.北京城市大气 CO2 浓度变化特征及影响因素.环境科学,2003,24(4):13-17
- 13 周秀骥,中国大气本底基准观象台进展总结报告,北京:气象出版社,2005
- 14 Zhou L X, Thomas J C, James W C, et al. Long-term record of atmospheric CO₂ and stable isotopic ratios at Waliguan Observatory: background features and possible drivers, 1991—2002. Glob Biogeochem Cycles, 2005, 19, doi: 10.1029/2004GB002430
- 15 周凌晞,周秀骥,张晓春,等. 瓦里关温室气体本底研究的主要进展. 气象学报,2007,65(3):458-468
- 16 Tans P P, Thoning K W, Elliott W P, et al. Background atmospheric CO₂ patterns from weekly flask samples at Barrow, Alaska: optimal signal recovery and error estimates. In: NOAA Tech. Memo (ERL ARL-173). Boulder: Environmental Research Laboratories, 1989. 131
- 17 Komhyr W D, Waterman L S, Taylor W R. Semi automatic Nondispersive Infrared Analyzer Apparatus for CO₂ Air Sample Analyses. J Geophys Res, 1983, 88: 1315–1322
- 18 张晓春,蔡永祥,温玉璞,等. 大气 CO2标准气浓度标定及采样瓶 CO2浓度分析系统. 气象科技,2005,33(6):538—547
- 19 World Meteorological Organization. Global Atmosphere Watch. Geneva: World Meteorological Organization. 1993. 1-19
- 20 Zhou L X, Tang J, Wen Y P. The impact of local winds and long-range transport on the continuous carbon dioxide record at Mount Waliguan, China. Tellus, 2003, 55: 145—158[DOI]

- 21 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 (17-18): 2881–2894
- 22 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
- 23 Zhou L X, Thomas J C, James W C, et al. Long-term record of atmospheric CO₂ and stable isotopic ratios at Waliguan Observatory: seasonally averaged 1991—2002 source/sink signals, and a comparison of 1998—2002 record to the 11 selected sites in the Northern Hemisphere. Glob Biogeochem Cycles, 2006, 20: GB2001, doi: 10.1029/2004GB002431
- 24 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[DOI]
- 25 Draxler R R. Description of the HYSPLIT-4 modeling system. NOAA Technical Memo, ERL ARL224, 1997
- 26 Miller J B, Tans P P, White W C, et al. The atmospheric signal of terrestrial carbon isotopic discrimination and its implication for partition carbon fluxes. Tellus Ser B-Chem Phys Meteorol, 2003, 55: 197–206[DOI]