

大气甲烷的源和汇及其浓度的观测模拟研究进展

张定媛^{1, 2} 廖宏²

(1 中国气象局气象干部培训学院, 北京 100081;

2 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: 甲烷作为仅次于二氧化碳的长寿命温室气体, 不仅影响着地球上的辐射平衡, 它在大气中的化学反应对大气的氧化清洁能力和对流层臭氧浓度也起着至关重要的作用。因此, 系统全面地研究大气甲烷源汇和分布特征对了解空气质量和气候变化具有重要的科学意义。从甲烷的源和汇、浓度的观测和模拟几方面介绍了国内外的大气甲烷的研究进展以及存在的问题。

关键词: 甲烷, 源和汇, 观测, 模拟

DOI: 10.3969/j.issn.2095-1973.2015.01.005

Advances in the Research on Sources and Sinks of CH₄ and Observations and Simulations of CH₄ Concentrations

Zhang Dingyuan^{1, 2}, Liao Hong²

(1 CMA Training Centre, China Meteorological Administration, Beijing 100081

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

Abstract: As a long-lived anthropogenic greenhouse gas, second only to CO₂, methane (CH₄) influences the radiative balance of the Earth. CH₄ also plays a critical role in atmospheric chemistry by affecting the oxidizing capacity of the atmosphere. Consequently, it is important to get a clear understanding of the characteristics of atmospheric CH₄, especially for the countries where both air quality and climate change are of great concern. In this paper, we have discussed related researches and issues about the sources and sinks, observations and simulations of atmospheric CH₄.

Keywords: methane, sources and sinks, observations, simulations

0 引言

甲烷(CH₄)是大气中水汽、二氧化碳之后最为重要的温室气体^[1],也是仅次于二氧化碳的长寿命温室气体。根据IPCC第五次评估报告(IPCC AR5)^[2],在100年时间段内,甲烷的全球增温潜能是二氧化碳的28倍,另有研究结果显示为16倍^[3],其在大气中的停留时间是9.1年。自1750年以来,大气甲烷浓度增加所产生的辐射强迫为 $0.48 \pm 0.05 \text{ W/m}^2$,对全球温室气体辐射强迫总增长的贡献约为17%。2012年大气中温室气体含量达到工业革命以来的新高,并且还在加速增长,其中甲烷的全球平均浓度为 $1819 \pm 1 \text{ ppb}$ ^[4](图1)。AR5

还指出,如果甲烷等温室气体照目前的速率继续排放下去,到2100年,全球地表平均温度可能再增加 $1.4 \sim 5.8 \text{ }^\circ\text{C}$,可能会导致极端天气事件增加、气候灾害频繁、雨雪的时空分布异常、水资源分配不均、海平面升高等,影响到人们的生活和社会经济发展。同时,甲烷具有较强的化学活性,能在对流层中与臭氧争夺大气中主要的氧化剂OH自由基,并最终生成二氧化碳和水。甲烷在大气中的化学反应对大气的氧化清洁能力起着至关重要的作用,其浓度的增加还会导致大气中臭氧和平流层水汽的增加^[5]。因此,系统全面地研究大气甲烷的源和汇的动态变化,掌握其浓度时空变化特征,对了解大气环境状况和全球气候变化具有重要的科学意义和现实价值。

1 大气甲烷的源和汇

1.1 排放源

大气中甲烷的主要来源可分为自然源和人为

收稿日期: 2014年1月24日; 修回日期: 2014年7月28日
第一作者: 张定媛(1984—), Email: zhangdy@cma.gov.cn
资助信息: 大气边界层物理与大气化学国家重点实验室开放课题(LAPC-KF-2013-19)

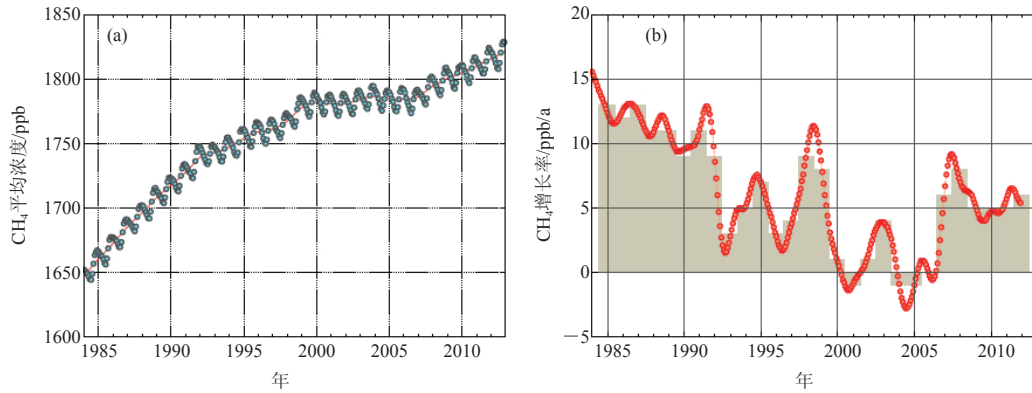


图1 1984—2012年全球甲烷平均浓度 (a) 及其增长率 (b)

源。自然源包括湿地、白蚁、海洋、植被和甲烷水合物^[6]；人为源包括煤矿开采、天然气生产、垃圾填埋、牲畜、稻田、生物质燃烧^[7]。表1显示了过去30年全球甲烷的收支情况，其中，人为源排放占全球甲烷排放的50%~65%^[2]。根据厌氧环境的生物参与过程，甲烷的排放源还可以分成生物来源和非生物来源。甲烷的生物产生过程为有机物大分子一次发酵成甲醛，经过二次发酵产生乙酸，在产甲烷细菌的作用下乙

酸生成甲烷和二氧化碳^[8]。所以，生物来源甲烷主要来自于具有很高还原条件的严格厌氧环境，包括：湿地、稻田、牲畜肠道、垃圾填埋和白蚁；非生物来源主要指非生物过程中甲烷的泄露，包括：石油和天然气生产、煤开采、生物质燃烧、地质学源（火山、地热、天然气释放）。IPCC^[2]的报告给出了目前已知的大气中甲烷源和汇的种类及其估算量，其中生物来源的排放超过全球排放的55%~70%。1974年，Ehhalt^[9]

表1 全球甲烷收支 (Tg(CH₄)/年)^[2]

	1980-1989		1990-1999		2000-2009	
	自上而下	自下而上	自上而下	自下而上	自上而下	自下而上
自然源	203 [150~267]	355 [244~466]	182 [167~197]	336 [230~465]	218 [179~273]	347 [238~484]
天然湿地	167 [115~231]	225 [183~266]	150 [144~160]	206 [169~265]	175 [142~208]	217 [177~284]
其他	36 [35~36]	130 [61~200]	32 [23~37]	130 [61~200]	43 [37~65]	130 [61~200]
淡水(湖泊和河流)		40 [8~73]		40 [8~73]		40 [8~73]
野生动物		15 [15~15]		15 [15~15]		15 [15~15]
野火		3 [1~5]		3 [1~5]		3 [1~5]
白蚁		11 [2~22]		11 [2~22]		11 [2~22]
地质源(含海洋)		54 [33~75]		54 [33~75]		54 [33~75]
水合物		6 [2~9]		6 [2~9]		6 [2~9]
永久冻土(不含湖泊和河流)		1 [0~1]		1 [0~1]		1 [0~1]
人为源	348 [305~383]	308 [292~323]	372 [290~453]	313 [281~347]	335 [273~409]	331 [304~368]
农业源和废弃物	208 [187~220]	185 [172~197]	239 [180~301]	187 [177~196]	209 [180~241]	200 [187~224]
水稻		43 [41~47]		35 [32~37]		36 [33~40]
反刍动物		85 [81~90]		86 [82~91]		89 [87~94]
垃圾填埋和废弃物		55 [50~60]		65 [63~68]		75 [67~90]
生物质燃烧(含生物燃料)	46 [43~55]	34 [31~37]	38 [26~45]	42 [38~45]	30 [24~45]	35 [32~39]
化石燃料	94 [75~108]	89 [89~89]	95 [84~107]	84 [66~96]	96 [77~123]	96 [85~105]
汇						
总化学损失	490 [450~533]	539 [411~671]	525 [491~554]	571 [521~621]	518 [510~538]	604 [483~738]
对流层OH	468 [382~567]	479 [457~501]	528 [454~617]			
平流层OH	46 [16~67]	67 [51~83]	51 [16~84]			
对流层Cl	25 [13~37]	25 [13~37]	25 [13~37]			
土壤	21 [10~27]	28 [9~47]	27 [27~27]	28 [9~47]	32 [26~42]	28 [9~47]
总计						
源	551 [500~592]	663 [536~789]	554 [529~596]	649 [511~812]	548 [526~569]	678 [542~852]
汇	511 [460~559]	539 [420~718]	542 [518~579]	596 [530~668]	540 [514~560]	632 [592~785]
源汇差额	30 [16~40]		12 [7~17]		8 [-4~19]	
大气增长率	34		17		6	

发表了第一份全球甲烷排放总量的清单, 据估计全球甲烷排放总量为590~1016Tg/年, 其中水稻种植排放甲烷为280Tg/年, 动物排放甲烷为100~200Tg/年。过去20年间, 也有大量的研究进行了甲烷排放源的估算^[10-13]。Forster等^[14]对甲烷1997—2006年的全球甲烷总排放估算值为503~610Tg/年。中国是甲烷的主要排放源区之一。张仁健等^[15]的估算结果表明, 1994年中国的甲烷排放为32.91Tg, 占当年全球排放的6.1%。

湿地是甲烷最大的排放源并且对气候变化十分敏感^[16]。湿地地表大量植物生长使其具有较高的生产力, 地表长期和季节性淹水, 土壤中水分过饱和而使得动植物残体分解缓慢, 含有丰富的有机质, 为甲烷的产生提供了良好的条件。利用重力卫星GRACE和环境卫星ENVISAT最新产品的研究结果显示, 湿地排放的甲烷大约占了全球甲烷总排放的三分之一, 其中52%~58%来自热带地区。由于中纬度和北极地区气候变暖, 湿地甲烷排在2003—2007年间增长了7%^[17], 这一变化趋势与大气中甲烷浓度的增加趋势相一致。另有研究^[18-19]将自下而上和自上而下估算的甲烷通量与甲烷观测浓度相结合, 应用于一个三维大气传输化学模式(ATCM), 评估结果表明超过70%的湿地甲烷排放来自于南部和热带地区。湿地甲烷排放具有明显的季节变化特征, 一般表现为夏季排放通量高于冬季^[20-21], 这主要是由于甲烷的排放受到地表温度变化影响, 此外, 积雪的覆盖会抑制甲烷的排放^[22]。近几年来, 中国的自然湿地甲烷排放受到越来越多的关注^[23-26]。Ding等^[27]根据原位观测的方法和前人的观测数据估算出在生长季中国自然湿地的甲烷排放约为1.48Tg, 年平均总排放量约为1.76Tg, 其中67%的甲烷排放来自中国东北地区的淡水沼泽。湿地甲烷排放表现出夏季高、冬季低的季节特征, 主要原因在于夏季温度较高且有充足的降水, 更有利于甲烷的排放。

20世纪60年代, 稻田被第一个确定为大气中甲烷的排放源^[28]。由于人为灌溉, 造成土壤密闭厌氧的环境, 甲烷在稻田土壤下产生, 大约有90%以上通过水稻植物体排放到大气中^[29]。早期对稻田排放甲烷的估算, 主要是通过有限数量的覆盖不同稻田生态系统站点的测量和管理试验而得, 估算得到全球稻田甲烷的排放量为20~100Tg/年^[30-31]。而Yan等^[32]根据2006年IPCC国家温室气体清单指南对稻田甲烷进行了估算, 结果显示2000年全球稻田排放量为25.6Tg, 低于之前所有研究结果。中国是水稻生产的大国之一, 21世纪初种植面积和产量分别占全球的22%和34%^[33]。2005

年国内水稻种植总面积约为 $2.88 \times 10^7 \text{hm}^2$ ^[34]。生长季的中国稻田甲烷排放量在7.67~8.05Tg之间^[35-36]。另有测量结合模拟的研究结果显示中国的稻田甲烷排放为7.41Tg/年^[32]。CH₄MOD模型模拟的1955—2005年间的中国稻田甲烷排放总体呈增加趋势, 排放最大的区域主要集中在华中和华南地区^[37]。与湿地甲烷排放一样, 稻田甲烷排放主要受到温度影响, 通常在夏季排放达到峰值^[38-39]。

化石燃料来源的甲烷来自于石油和天然气生产、运输和利用以及煤的开采过程, 这些来源的甲烷排放具有随机性强、规律性差的特点, 这部分排放占了甲烷人为排放量的30%左右, 是仅次于农业生产排放的第二大人为源^[40]。根据EDGAR^[40]排放清单版本4.0显示, 2000—2005年, 化石燃料来源甲烷排放快速增加, 到2005年, 石油和天然气来源的甲烷排放量约为60Tg, 煤矿排放的甲烷接近40Tg。另外, 清单还显示牲畜排放也明显增长, 至2005年的排放值为80Tg左右, 这主要是由于人们对动物产品需求的增长。其他的人为源, 如垃圾填埋和污水处理, 甲烷的排放量也呈现出快速增长的趋势, 2005年的排放值估算为50Tg, 这与Bousquet等^[13]的研究结果一致。中国目前只发布了1994年的甲烷排放清单^[41]。信息通报指出, 人为活动是我国甲烷排放主要的来源。1994年, 我国能源产业的甲烷排放量是9.37Tg。其中煤炭开采过程的排放是7.1Tg, 高于王明星等^[42]根据有限观察估算的6.08Tg, 而低于张仁健等^[15]同样针对1994年的研究结果10.3Tg。2000年煤矿开采排放的甲烷降为6.53Tg^[43], 但至2003年又迅速增长到11Tg左右^[44]。由于油气系统早期缺乏观测资料, 对它估算比较困难, 已有结果也存在较大差别。信息通报给出的油气系统及燃料逃逸的甲烷量为7.35Tg, 与之相比, 张仁健等^[15]的研究结果则远小于该值, 仅为0.1Tg。此外, 信息通报中还给出了反刍动物和垃圾处理的甲烷排放量分别为10.1Tg和7.72Tg, 均高于张仁健等^[15]的研究结果6.8Tg和1.13Tg。

生物质燃烧会向大气中释放出大量污染物。当燃烧完全的时候, 最终产物是二氧化碳和水。而如果火被焖烧, 燃烧不充分, 会产生出大量的甲烷和其他更高阶的碳氢化合物。生物质燃烧排放甲烷依赖于燃烧所达到的阶段、生物质的碳含量和燃烧的生物量^[45]。绝大多数的生物质燃烧来源于季节性的草原大火, 尤其是非洲热带草原和农业废弃物燃烧。生物质燃烧所产生的甲烷大约为45~55Tg/年, 但是年际间变化相差很大, 很大程度上取决于气象条件^[46]。IPCC^[2]给出

的值是35Tg/年。Streets等^[47]对亚洲地区生物质燃烧排放进行了估算,其中2000年中国区域生物质燃烧产生的甲烷排放值为0.54Tg,比1994年的国家信息通报值2.15Tg有所降低。据报道,其他甲烷的自然排放源如白蚁、甲烷水合物、海洋的年排放量分别为2~22Tg、9Tg、2~9Tg^[48]。

除上述之外,甲烷还存在一个非常有争议的源——植被。Frankenberg等^[49]通过对卫星资料的反演,发现热带森林地区甲烷排放量被低估。接着,又有对巴西亚马孙山地森林进行的观测和模拟,发现该地区存在不明来源的甲烷排放^[50]。为了证明自然界中是否存在尚未发现的甲烷植被源,Keppler等^[51]对植物体进行了测量研究,发现有氧环境下植被也会排放甲烷,且数量相当惊人,高达62~236Tg/年。Wang等^[52]在内蒙古草原开展的研究也证明了植物可以释放甲烷的理论,同时还发现释放甲烷的植物仅限于木本灌木,草本植物还未发现有甲烷产生。Cao等^[53]也报道了我国青藏高原生态系统植物群落的甲烷排放。而与此形成鲜明对比的是,Dueck等^[54]、Nisbet等^[55]则认为植被不会排放甲烷,对Keppler等^[51]的结果提出了质疑。尽管存在争议,但是Keppler等^[51]的结果还是得到了更多研究的支持^[56-59]。谢旻等^[60]基于Keppler等^[51]的工作,建立了适用于中国地区的陆地植被甲烷排放模式(PLANTCH₄),并结合NOAA/AVHRR卫星数据对2000年中国区域的植被甲烷的排放总量和空间分布进行了估算,结果显示中国植被甲烷排放为11.83(4.83~19.70)Tg/年,其中森林是最大的植被源,主要集中在我国云南和东北地区。

1.2 吸收汇

大气中甲烷的汇主要是对流层中与OH的氧化、干燥土壤中的生物氧化和平流层损失。OH自由基是低层大气的首要清洁剂,大气中甲烷最主要的清除过程就是在对流层中与OH的氧化反应,尤其是在光照充足的热带地区。OH在大气中的年平均浓度大概在 $0.9 \times 10^6 \sim 1.2 \times 10^6$ molecules/cm³^[61]。气象条件的变化对甲烷清除过程会产生很大的影响。例如,在高度污染地区,大气中氮氧化物充足,大气氧化过程更倾向于氮氧化物与OH反应生成臭氧,同时由于氮氧化物的存在能够循环产生OH,因此污染地区的OH浓度要高于同纬度的海洋^[62]。其他少量的甲烷清除来自于对流层向平流层的向上传输损失,以及土壤中甲烷氧化细菌的氧化。厌氧环境中产生的甲烷在输送到大气以前,有相当一部分在好氧区域被甲烷氧化菌在甲烷单氧化酶的作用下氧化为二氧化碳。继Harriss等^[63]发现

沼泽土壤在干旱条件下会消耗甲烷后,先后又有研究报道了森林^[64-65]、草地^[66-67]和农田土壤^[68]中的甲烷吸收氧化。

与对流层OH自由基的反应消耗甲烷约为528Tg/年,约占总汇的77%;向平流层输送甲烷51Tg/年,约占总汇的7%;通气良好的表层干燥土壤所消耗的大气甲烷的量约为28Tg/年,约占甲烷总汇的4%左右^[2]。另有研究通过对¹³C的测定发现,与海洋边界层的游离氯离子的反应很有可能是甲烷的另一个汇,每年消耗的甲烷大约为19Tg^[69-70]。

2 甲烷观测现状

从20世纪70年代起,世界各国陆续开展了大气甲烷浓度变化与分布特征的长期观测^[71]。目前,甲烷观测方式主要有地面采样观测、地基遥感、卫星遥感和航空采样观测。世界温室气体资料中心(WDCGG)是世界气象组织设置在日本气象厅的负责收集和分发大气和海洋中的温室气体及相关气体浓度资料的机构。WDCGG收集的资料来自全球大气监测网(GAW)、研究机构及其他合作计划(如NOAA/ERSL、CMA、CSIRO)。截止到2012年3月,该中心共收集了188个站点的甲烷观测资料,除有少量船舶观测以外,绝大部分为固定站点。根据WMO 2011年的WDCGG数据摘要^[72],可以看出,北半球甲烷浓度的季节变化要比南半球的明显且浓度值高于南半球。甲烷浓度的季节变化由其最大的汇OH自由基主导,也受到大气传输的影响。北半球甲烷冬高夏低,南半球秋高春低,靠近赤道附近区域冬季受北半球传输影响,甲烷浓度较高。我国大气甲烷观测开始于20世纪80年代,主要在西部清洁地区使用钢瓶采样开展分析研究^[73]。北京地区也开展了城市生态系统甲烷的定位监测^[74]。到2006年为止,我国先后建立了一个全球大气本底站(青海瓦里关)、三个区域大气本底站(北京上甸子、浙江临安和黑龙江龙凤山),并开展了温室气体网络化采样分析^[71, 75],结果显示:代表了我国长三角发达地区的临安站,甲烷冬季浓度最高,季节振幅最大;而代表我国清洁本底区域的瓦里关站,甲烷浓度最小,季节变化也最小。有限的地基观测数据显示,我国大气甲烷浓度根据站点不同具有高度变化的特点,变化范围大概在1700~2400ppb之间,也表明了甲烷的浓度水平和季节变化同时受到区域人为排放源和周边环境传输的影响^[76-78]。但是我国可靠的地面观测站点数量不足,缺乏长时间的观测序列,且多建立在远离人为活动排放的地方,还不能代表较大尺度的区域甲烷浓度特征。

卫星遥感能够快速获取全球尺度的观测数据，给出直观全面的监测气体时空分布特征。目前，能够进行甲烷探测的卫星有ENVISAT搭载的SCIAMACHY、GOSAT 搭载的TANSO-FTS、Aqua搭载的AIRS等。Aqua搭载的AIRS卫星遥感观测数据显示中高层大气甲烷浓度在夏季达到最高值^[79-80]。Zhang等^[81]利用ENVISAT卫星上SCIAMACHY传感器数据反演了中国区域的甲烷年平均柱浓度，结果显示甲烷浓度的空间分布呈现从东南到东北递减的梯度，而最低值则出现在青藏高原地区。

此外，还有地基遥感观测甲烷的手段，主要是基于傅里叶转换红外线光谱（FTIR）。Petersen等^[82]将FTIR观测与SCIAMACHY反演的结果做比较，在热带地区取得了很好的一致性。到目前为止，我国还没有自己的温室气体观测卫星，计划中的首颗全球二氧化碳监测科学试验卫星已经开始启动研制，预计于2015年发射。

3 大气甲烷浓度模拟

近年来，全球数值模式已被广泛应用于人为活动对气候影响的评估，对温室气体甲烷的模拟也成为对流层大气化学模拟的热点。甲烷的模拟主要在气象场的驱动下，由排放、传输、化学反应和吸收等几部分组成。Wang等^[12]利用全球化学传输模式GEOS-Chem，研究了甲烷1988—1997年增长率的减缓原因，结果表明，主要是由于排放源的减少和OH的增加，其中，1992—1993年甲烷浓度异常的低增长率可以由皮纳图博火山喷发后湿地排放和OH浓度的波动来解释。张仁健等^[83]采用全球二维大气化学模式的研究结果也给出了相同的解释。另有TM3的模式研究结果指出，这段时间大气甲烷增长水平的下降只是说明排放达到了暂时的稳定^[84]。Chen等^[18]利用MATCH模式研究了1996—2001年的甲烷年际变化，结果表明，模式能够抓住大部分短暂天气事件，如北大西洋涛动和厄尔尼诺，同时，该研究指出，使用连续的气象场观测资料对甲烷模拟研究十分重要，尤其是在与高频的地面观测资料做对比的时候。使用合适的OH场，MOZART 2-D模式也能得到与观测相似度较高的模拟结果^[85]。Fraser等^[86]利用GEOS-Chem 模式研究了区域排放和长距离传输对澳大利亚甲烷浓度的相关贡献。TransCom-CH₄对比试验（图2）利用不同的甲烷化学传输模式分析了地面排放、传输和化学损失在全球甲烷模拟分布中的作用^[87-88]，并对对流层不同高度下甲烷在水平和垂直方向上的传输进行了评估，结果显示，由于20世纪90年代起人为排放增长的放缓，甲烷

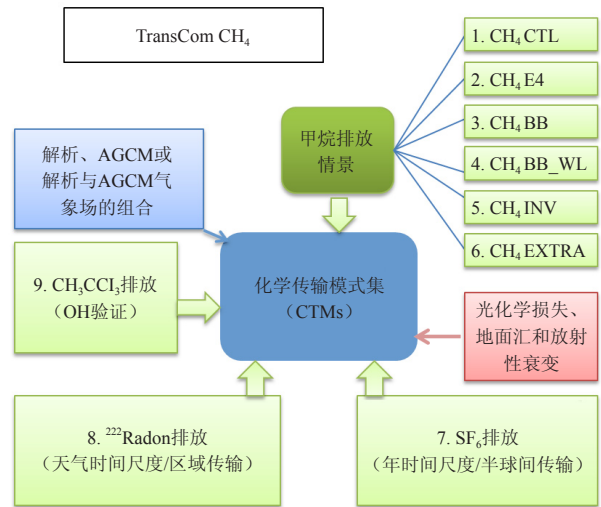


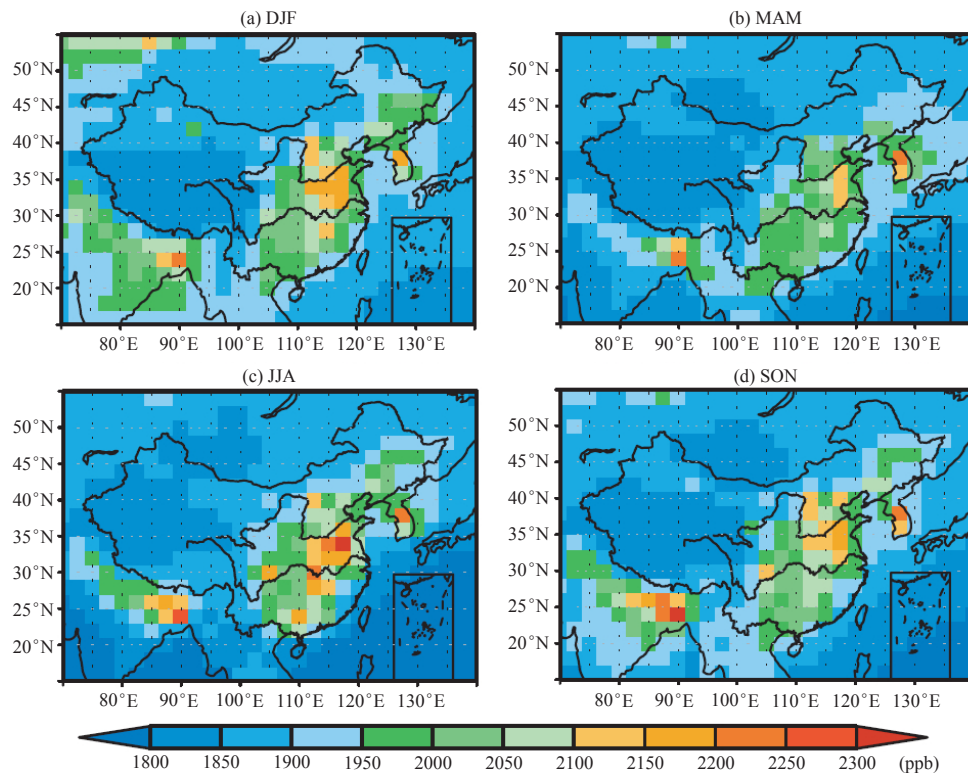
图2 TransCom-CH₄模式模拟试验示意图^[87]

的十年平均增长率可能已经在21世纪初达到平衡。

目前，国内对甲烷的模拟主要集中在对各种来源排放的研究以及区域小尺度研究上，对中国区域尺度上的大气甲烷总浓度的模拟研究还很缺乏。谢旻等^[60]利用MM5-CALGRID区域化学模式模拟了中国地区陆地植被排放对对流层低层甲烷浓度的影响，结果表明植被甲烷排放明显影响中国地区对流层低层甲烷浓度，使平均浓度增加了29.9%，在云南南部，这种变化高达69.68ppb。另有研究^[89]利用全球三维大气化学传输模式GEOS-Chem模拟了中国区域甲烷浓度的季节变化和空间分布特征，结果（图3）显示：中国区域地面甲烷浓度呈现出夏季浓度最高、春季浓度最低的季节变化特征；在夏季，中国东部地区甲烷最大浓度可超过2300ppb；从空间分布上看，青藏高原是中国地面甲烷浓度最低的区域，最低浓度可低于1800ppb；中国东部地区的地面甲烷浓度普遍高于西部地区，差值大约在200~400ppb左右。

4 结语与展望

近年来，随着全球温室气体浓度不断增加，大气中甲烷的现状也越来越受到关注。本文从源汇、观测和模拟等方面对大气甲烷以往的研究进行了介绍。甲烷主要的排放源是湿地，约占全球甲烷排放三分之一；甲烷最主要的汇是与对流层OH自由基反应，约占总汇的77%。北半球甲烷浓度的季节变化比南半球的季节变化明显且浓度值高于南半球。从以往研究中还可以看出，大气甲烷的研究主要集中在对各种来源排放的估计以及区域小尺度的通量研究上。这些研究结果显示，源和通量的大小、空间分布的变化对甲烷的产生具有重要的影响。然而各个排放源对大气中甲

图3 2004年中国区域模拟甲烷季节平均地面浓度分布^[89]

烷浓度的具体贡献以及外来传输的影响，涉及较少。未来还可以对甲烷的年际和年代际变化以及气象场对甲烷浓度的影响进行深入的研究。目前，中国区域的甲烷观测站点非常稀少，空间分布不均，观测资料有限，尤其是缺乏长时间的观测序列，对甲烷的时空分布特征、季节变化的主要驱动因素及其贡献并没有系统深入的研究。随着甲烷浓度地面采样观测资料和 FTIR 地基高光谱遥感观测数据的积累，以及卫星遥感空间观测如近红外观测 (GOSAT, SCIAMACHY) 和热红外观测 (IASI) 等技术的发展，将更多的长期有效的监测数据应用于甲烷浓度时空变化及其影响因素的分析，能够更好地进行排放清单估算和对模式的研究结果进行比较验证。因此，在全球气候变暖的背景下，对上述问题深入开展研究，对于科学制定温室气体减排政策和调节资源配置工作，积极应对全球气候变化将具有十分重要的意义。

参考文献

- [1] Ramaswamy V, Boucher O, Haigh J, et al. Radiative forcing of climate change. In: *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA: Cambridge University Press, 2001.
- [2] IPCC Climate Change. The physical science basis. Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the IPCC 2013. UK: Cambridge University Press, 2013.
- [3] 张华, 张若玉, 何金海, 等. CH_4 和 N_2O 的辐射强迫与全球增温潜能. *大气科学*, 2013, 37(3): 745-754.
- [4] WMO. WMO Greenhouse gas bulletin No.9. 2013.
- [5] Bouwan A F. Exchange of greenhouse gases between terrestrial ecosystems and the atmosphere. In: *Soils and Greenhouse Effect*. Chichester, USA: Wiley and Sons, 1990.
- [6] Fung I, John J, Lerner J, et al. Three-dimensional model synthesis of the global methane cycle. *J Geophys Res*, 1991, 96(D7): 13033-13065.
- [7] Olivier J G J, van Aardenne J A, Dentener F, et al. Recent trends in global greenhouse gas emissions: Regional trends and spatial distribution of key sources. In: *Non-CO₂ Greenhouse Gases (NCGG-4)*, edited by van Amstel A. Rotterdam: Millpress, 2005.
- [8] Conrad R. Soil microorganisms as controllers of atmospheric trace gases (H_2 , CO , CH_4 , OC_s , N_2O , and NO). *Microbiol Rev*, 1996, 60: 609-640.
- [9] Ehhalt D H. The atmospheric cycle of methane. *Tellus*, 1974, XXVI(1-2): 58-70.
- [10] Hein R, Crutzen P J, Heimann M. An inverse modeling approach to investigate the global atmospheric methane cycle. *Global Biogeochem Cycles*, 1997, 11: 43-76.
- [11] Houweling S, Kaminski T, Dentener F, et al. Inverse modeling of methane sources using the adjoint of a global transport model. *J Geophys Res*, 1999, 104: 26137-26160.
- [12] Wang J S, Logan J A, McElroy M B, et al. A 3-D model analysis of the slowdown and interannual variability in the methane growth rate from 1988 to 1997. *Global Biogeochem Cycles*, 2004, 18, GB3011.
- [13] Bousquet P, Ciais P, Miller J B, et al. Contribution of anthropogenic and natural sources to atmospheric methane variability. *Nature*, 2006, 443: 439-443.
- [14] Forster P, Ramaswamy V, Artaxo P, et al. Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to*

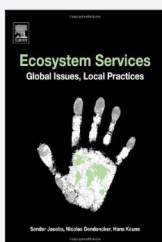
- the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA: Cambridge University Press, 2007.
- [15] 张仁健, 王明星, 李晶, 等. 中国甲烷排放现状. 气候与环境研究, 1999, 4(2): 194-202.
- [16] Kaplan J O, Folberth G, Hauglustaine D A. Role of methane and biogenic volatile organic compound sources in late glacial and Holocene fluctuations of atmospheric methane concentration. *Global Biogeochem Cycle*, 2006, 20, GB2016.
- [17] Bloom A A, Palmer P I, Fraser A, et al. Large-scale controls of methanogenesis inferred from methane and gravity spaceborne data. *Science*, 2010, 327: 322-325.
- [18] Chen Y H, Prinn R G. Atmospheric modeling of high- and low-frequency methane observations: Importance of interannually varying transport. *J Geophys Res*, 2005, 110, D10303.
- [19] Chen Y H, Prinn R G. Estimation of atmospheric methane emission between 1996-2001 using a 3-D global chemical transport model. *J Geophys Res*, 2006, 111, D10307.
- [20] Singh S N. Exploring correlation between redox potential and other edaphic factors in field and laboratory conditions in relation to methane efflux. *Environ Int*, 2001, 27: 265-274.
- [21] Hans B, Brian K S, Bent L. Are Phragmites-dominated wetlands a net source or net sink of greenhouse gases. *Aquat Bot*, 2001, 69: 313-324.
- [22] Pickett-Heaps C A, Jacob D J, Wecht K J, et al. Magnitude and seasonality of wetland methane emissions from the Hudson Bay Lowlands (Canada). *Atmos Chem Phys*, 2011, 11: 3773-3779.
- [23] Cui B S. Estimate of methane emission from mires in Sanjiang Plain. *Scientia Geographica Sinica*, 1997, 17: 93-96.
- [24] Jin H J, Wu J, Chen G D, et al. Methane emissions from wetlands on Qinghai-Tibet Plateau. *Chinese Science Bulletin*, 1999, 44: 2282-2287.
- [25] 叶勇, 卢昌义, 林鹏. 海南岛和厦门红树林湿地CH₄排放的时空变化. *大气科学*, 2000, 24(2): 152-156.
- [26] 黄国宏, 肖笃宁, 李玉祥, 等. 芦苇湿地温室气体甲烷(CH₄)排放研究. *生态学报*, 2001, 21(9): 1494-1497.
- [27] Ding W X, Cai Z C, Wang D X. Preliminary budget of methane emissions from natural wetlands in China. *Atmospheric Environment*, 2004, 38: 751-759.
- [28] Koyama T. Gaseous metabolism in lake sediments and paddy soils and the production of hydrogen and methane. *J Geophys Res*, 1963, 68: 3971-3973.
- [29] 上官行健, 王明星, 陈德章, 等. 稻田甲烷的传输. *地球科学进展*, 1993, 8(5): 13-22.
- [30] Wang M X, Dai A G, Shanguan X J, et al. Sources of methane in China. In: CH₄ and N₂O: Global Emissions and Controls From Rice Fields and Other Agricultural and Industrial Sources, edited by Minami K, Mosier A, Sass R L. Tsukuba, Japan: Natl Inst of Agro-Environ Sci, 1994.
- [31] Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). Radioactive forcing of climate change and an evaluation of the IPCC IS92 emission scenarios. In: *Climate Change 1994*. Cambridge, UK: Cambridge Univ Press, 1994.
- [32] Yan X, Akiyam H, Yagi K, et al. Global estimations of the inventory and mitigation potential of methane emissions from rice cultivation conducted using the 2006 Intergovernmental Panel on Climate Change Guidelines. *Global Biogeochem Cycles*, 2009, 23, GB2002.
- [33] FAO. [Online] Available: <http://faostat.fao.org/site/567/default.aspx#ancor> (2014/11/17).
- [34] IRRI. [Online] Available: <http://www.irri.org/> (2014/11/17).
- [35] Cai Z. A category for estimate of CH₄ emission from rice paddy fields in China. *Nutr Cycling Agroecosyst*, 1997, 49: 171-179.
- [36] Yan X Y, Ohara T, Akimoto H. Development of region-special emission factors and estimation of methane emission from rice fields in the east, southeast and south Asia countries. *Global Change Biology*, 2000, 9: 237-254.
- [37] 王平, 黄耀, 张稳. 1955-2005年中国稻田甲烷排放估算. *气候变化研究进展*, 2009, 5(5): 291-297.
- [38] 于心科. 温度对稻田甲烷排放的影响. *地球科学进展*, 1994, 9(5): 54-56.
- [39] Cai Z C, Tsuruta H, Minami K. Methane emission from rice fields in China. Measurements and influence factors. *J Geophys Res*, 2000, 105: 17231-17242.
- [40] EDGAR v4.0. European Commission, Joint Research Centre (JRC)/Netherlands Environmental Assessment Agency (PBL): Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR), release version 4.0, 2009.
- [41] 中华人民共和国气候变化初始国家信息通报(INCCC). 北京: 中国计划出版社, 2004.
- [42] 王明星, 戴爱国, 黄俊, 等. 中国CH₄排放量的估算. *大气科学*, 1993, 17(1): 52-64.
- [43] 郑爽, 王佑安, 王震宇. 中国煤矿甲烷向大气排放量. *煤矿安全*, 2005, 36(2): 29-33.
- [44] 宁成浩, 陈贵锋. 我国煤矿低浓度瓦斯排放及利用现状分析. *能源环境保护*, 2005, 19(4): 1-4, 17.
- [45] Levine J S, Cofer III W R, Pinto J P. Biomass burning. In: *Atmospheric Methane: Sources, Sinks and Role in Global Change*. New York: Springer-Verlag, 1993.
- [46] Dlugokencky E J, Nisbet E G, Fisher R, et al. Global atmospheric methane in 2010: Budget, changes and dangers. *Philos Trans R Soc A*, 2011, 369(1943): 2058-2072.
- [47] Streets D G, Yarber K F, Woo J H, et al. Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions. *Global Biogeochem Cycles*, 2003, 17(4), 1099, doi:10.1029/2003GB002040.
- [48] EPA. Methane and Nitrous Oxide Emissions from Natural Sources, 2010.
- [49] Frankenberg C, Meirink J F, Van Weele M, et al. Assessing methane emissions from global space-borne observations. *Science*, 2005, 308: 1010-1014.
- [50] Carmo J B, Keller M, Dias J D, et al. A source of methane from upland forests in the Brazilian Amazon. *Geophys Res Lett*, 2006, 33, L04809.
- [51] Keppler F, Hamilton J T G, Brass M, et al. Methane emissions from terrestrial plants under aerobic conditions. *Nature*, 2006, 439: 187-191.
- [52] Wang Z P, Han X G, Wang G G, et al. Aerobic methane emission from plants in the Inner Mongolia steppe. *Environ Sci Technol*, 2008, 42(1): 62-68.
- [53] Cao G, Xu X, Long R, et al. Methane emissions by alpine plant communities in the Qinghai-Tibet Plateau. *Biology Letters*, 2008, 4(6): 681-684.
- [54] Ducek T A, Visser R, Poorter H, et al. No evidence for substantial aerobic methane emission by terrestrial plants: A ¹³C-labelling approach. *New Phytol*, 2007, 175: 29-35.
- [55] Nisbet R E R, Fisher R, Nimmo R H, et al. Emission of methane from plants. *Proceedings of the Royal Society B. Biological Sciences*, 2009, 276(1660): 1347-1354.
- [56] Crutzen P J, Sanhueza E, Brenninkmeijer C A M. Methane production from mixed tropical savanna and forest vegetation in Vene-zuela. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2006, 6: 3093-3097.
- [57] Parsons A J, Newton C D P, Clark H, et al. Scaling methane emissions from vegetation. *Trends Ecol Evol*, 2006, 21: 423-424.
- [58] Houweling S, Rochmann T, Aben I, et al. Atmospheric constraints on global emissions of methane from plants. *Geophys Res Lett*, 2006, 33(15), L15821.
- [59] Ferretti D F, Miller J B, White J W C, et al. Stable isotopes provide revised global limits of aerobic methane emissions from plants. *Atmos Chem Phys*, 2007, 7: 237-241.
- [60] 谢旻, 李树, 江飞, 等. 中国地区陆地植被甲烷排放及其对对流层低层甲烷浓度的影响. *科学通报*, 2008, 53(19): 2365-2370.
- [61] Rigby M, Prinn R G, Fraser P J, et al. Renewed growth of atmospheric methane. *Geophys Res Lett*, 2008, 35(22), L22805.
- [62] Lelieveld J, Dentener F J, Peters W, et al. On the role of hydroxyl radicals in the self-cleansing capacity of the troposphere. *Atmos Chem Phys*, 2004, 4: 2337-2344.
- [63] Harriss R C, Sebacher D I, Day F P. Methane flux in the Great

- Dismal Swamp. *Nature*, 1982, 297: 673-674.
- [64] Steudler P A, Bowden R D, Melillo J M, et al. Influence of nitrogen fertilization on methane uptake in temperate forest soils. *Nature*, 1989, 34: 314-316.
- [65] Shigehiro I, Tadashi S, Kazuhiro I. Methane oxidation in Japanese forest soils. *Soil Biol Biochem*, 2000, 32: 769-777.
- [66] Mosier A R, Schimel D S, Valentine D, et al. Methane and nitrous oxide fluxes in native fertilized and cultivated grasslands. *Nature*, 1991, 350: 330-332.
- [67] Czepiel P M, Crill P M, Harriss R C. Environmental factors influencing the variability of methane oxidation in temperate zone soils. *J Geoph Res*, 1995, 100(D5) : 9359-9364.
- [68] Dubey S Y, Sinha A S K, Singh J S. Spatial variation in the capacity of soil for CH₄ uptake and population size of methane oxidizing bacteria in dry-land rice agriculture. *Current Sci*, 2000, 78(5): 617-620.
- [69] Platt U, Allan W, Lowe D. Hemispheric average C1 atom concentration from ¹²C/¹³C ratios in atmospheric methane. *Atmos Chem Phys*, 2004, 4: 2393-2399.
- [70] Allan W, Lowe D C, Gomez A J, et al. Interannual variation of ¹³C in tropospheric methane: Implications for a possible atomic chlorine sink in the marine boundary layer. *J Geophys Res*, 2005, 110, D11306.
- [71] 刘立新, 周凌晞, 温民, 等. 中国4个国家级野外站大气CH₄本底浓度变化特征. *气候变化研究进展*, 2009, 5(5): 285-290.
- [72] WMO. WMO WDCGG Data Summary, GAW DATA Volume IV-Greenhouse Gases and Other Atmospheric Gases (Methane), WDCGG No. 35. Geneva, 2011.
- [73] 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.
- [74] 王长科, 王跃思, 刘广仁, 等. 北京城区大气CH₄浓度及其变化规律. *环境科学研究*, 2003, 16(6): 43-45.
- [75] 方双喜, 周凌晞, 许林, 等. 我国4个WMO/GAW本底站大气CH₄浓度及变化特征. *环境科学*, 2012, 33(9): 2917-2923
- [76] 王跃思, 王明星. 北京大气甲烷季变化及发展趋势. *大气科学*, 2000, 24(2): 157-164.
- [77] 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. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(40), 7041-7054.
- [78] 宋长春, 王毅勇, 王跃思, 等. 人类活动影响下淡水沼泽湿地温室气体排放变化. *地理科学*, 2006, 26(1): 82-86.
- [79] Xiong X, Houweling S, Wei J, et al. Methane plume over south Asia during the monsoon season: Satellite observation and model simulation. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 783-794.
- [80] 张兴赢, 白文广, 张鹏, 等. 卫星遥感中国对流层中高层大气甲烷的时空分布特征. *科学通报*, 2011, 56(33): 2804-2811.
- [81] Zhang X, Jiang H, Wang Y, et al. Spatial variations of atmospheric methane concentrations in China. *International Journal of Remote Sensing*, 2011, 32(3): 833-847.
- [82] Petersen A K, Warneke T, Frankenberg C, et al. First ground-based FTIR observations of methane in the inner tropics over several years. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10: 7231-7239.
- [83] 张仁健, 王明星. 1992年大气甲烷增长速率异常下降的模拟研究. *大气科学*, 2000, 24(3): 355-362.
- [84] Dlugokencky E J, Houweling S, Bruhwiler L, et al. Atmospheric methane levels off: Temporary pause or a new steady-state? *Geophys Res Lett*, 2003, 30(19), 1992.
- [85] Cunnold D M, Steele L P, Fraser P J, et al. In situ measurements of atmospheric methane at GAGE/AGAGE sites during 1985-2000 and resulting source inferences. *J Geophys Res*, 2002, 107, D14.
- [86] Fraser A, Chan Miller C, Palmer P I, et al. The Australian methane budget: Interpreting surface and train-borne measurements using a chemistry transport model. *J Geophys Res*, 2011, 116, D20306.
- [87] Patra P K, Houweling S, Krol M, et al. TransCom model simulations of CH₄ and related species: Linking transport, surface flux and chemical loss with CH₄ variability in the troposphere and lower stratosphere. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11: 12813-12837.
- [88] Saito R, Patra P K, Sweeney C, et al. TransCom model simulations of methane: Comparison of vertical profiles with aircraft measurements. *J Geophys Res Atmos*, 2013, 118: 3891-3904.
- [89] Zhang D Y, Liao H, Wang Y S. Simulated Spatial Distribution and Seasonal Variation of Atmospheric Methane over China: Contributions from Key Sources. *Adv Atmos Sci*, 2014, 31(2): 283-292.

新书架

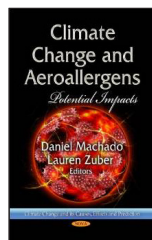
NEW BOOK

 感兴趣的读者可以到中国气象局图书馆查阅



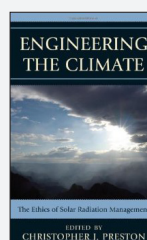
Ecosystem Services: Global Issues, Local Practices
《生态系统服务：全球问题，本地实践》

编著者：Sander Jacobs等
出版者：Elsevier
出版年：2013



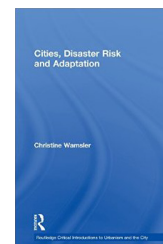
Climate Change and Aeroallergens: Potential Impacts
《气候变化与气源性致敏源：潜在影响》

编著者：Daniel Machado等
出版者：Nova Science Pub Inc
出版年：2013



Engineering the Climate: The Ethics of Solar Radiation Management
《制造气候：太阳辐射管理的伦理学》

编著者：Christopher J. Preston
出版者：Lexington Books
出版年：2013



Cities, Disaster Risk and Adaptation
《城市、灾害风险与适应》

编著者：Christine Wamsler
出版者：Routledge
出版年：2013