南极中山站大气六氟化硫浓度本底特征

王灿^①, 卞林根^{②*}, 叶文娟^①, 朱仁斌^{①*}, 郑向东^②, 刘立新^②

① 中国科学技术大学地球和空间科学学院极地环境研究室, 合肥 230026;

② 中国气象科学研究院, 北京 100081

* 联系人, E-mail: blg@cma.gov.cn; zhurb@ustc.edu.cn

2015-09-29 收稿, 2015-11-21 修回, 2015-11-23 接受, 2016-02-23 网络版发表

南北极环境综合考察与评估极地专项(CHINARE 2011-2015)、国家自然科学基金(41176171, 41576181)和中国气象局与国家海洋局极地办中国 IPY 行动计划资助

摘要 六氟化硫(SF₆)是一种增温潜能极高、主要来自人为排放的温室气体, 对其大气背景浓度进行长期监测, 对于研究全球变化具有重要意义. 利用南极中山站区2008年2月~2013年1月近5年SF₆浓度的观测资料, 对SF₆本底浓度和变化趋势进行了研究, 结果表明: 中山站风向为偏东风时大气中SF₆浓度较低, 风向为偏西风时浓度较高, 这主要是受海陆气团差异引起, 而局地源和风速的影响可忽略不计. 大气SF₆浓度的变化范围为6.01~7.80 pptv (1 pptv=1×10⁻¹² L/L, 下同), 平均浓度为6.90±0.40 pptv. SF₆浓度呈明显稳定的年增长趋势, 年平均增长速率为0.28 pptv a⁻¹, 其变化趋势与全球其他观测点较接近, 中山站的观测结果可代表南极地区SF₆的本底浓度. 通过与全球其他观测点大气SF₆浓度数据对比, 结果显示: 南半球大气SF₆平均浓度明显低于北半球, 北半球是SF₆排放的主要源区; 而南半球SF₆主要来源于北半球大气传输和南北半球间大气高度混合, 能较好地反映全球大气SF₆本底浓度. 南极受人类活动影响很小, 是研究全球SF₆浓度变化趋势的理想区域.

关键词 南极, 中山站, 六氟化硫浓度, 大气, 本底浓度

六氟化硫(SF₆)是一种重要的温室气体, 由于其全球增温潜能(GWP₁₀₀)高达23500^[1], 被《京都议定书》列为限制排放的6种温室气体之一. 自1953年开始, SF₆作为高电压设备的绝缘气体, 被广泛应用在气体绝缘全封闭组合电器、气体绝缘变压器、高压断路器等电力设备中, 其年排放量从1953年几乎为零增加到2008年7420 t^[2,3]. 现在大气中SF₆主要排放源为电气设备行业(包括电器设备的维护、退役和泄漏等), 其次为半导体制造业和镁生产行业^[4]. 地壳中也能产生微量的SF₆^[5], 但自然产生量可忽略不计^[6]. SF₆的清除机制主要为在平流层或更高层大气中缓慢光解^[1], 2005年SF₆在大气中的汇为40~170 t, 占大气中增加总量的1%~4%, 在海洋中的汇可忽略不计^[7]. 虽然SF₆在大气中的浓度较低, 对人为辐射强迫的贡献不足0.1%^[8],

但其在大气中寿命长达3200年^[9]; 千年级尺度的寿命和不断的人为排放, 导致SF₆浓度在大气中不可逆的累积增加, 对全球气候变化的影响不容忽视.

最早对大气SF₆浓度的观测始于20世纪70年代^[10], 当时大气中SF₆浓度接近于零; 而到2010年, 全球大气SF₆平均浓度已经达到7.0 pptv (1 pptv=1×10⁻¹² L/L, 下同), 并仍在持续上升^[11]. 因此, 国际上高度重视对大气中SF₆的监测和对排放源区的控制. Lal等人^[11]在1996~2002年期间对印度Thumba (8.6°N, 77°E)附近大气中CH₄和SF₆浓度进行观测, 结果表明大气SF₆浓度以0.25 pptv a⁻¹的速率增长. Rigby等人^[3]通过长期的大气监测资料, 发现大气SF₆浓度在1995~2000年期间有小幅度下降, 随后开始增加. 我国学者张华等人^[12]利用分子吸收数据库HITRAN2004中的红外截面数据,

引用格式: 王灿, 卞林根, 叶文娟, 等. 南极中山站大气六氟化硫浓度本底特征. 科学通报, 2016, 61: 782~790

Wang C, Bian L G, Ye W J, et al. Background characteristics of atmospheric sulfur hexafluoride concentrations at Zhongshan Station, Antarctica (in Chinese). Chin Sci Bull, 2016, 61: 782~790, doi: 10.1360/N972015-00651

计算出 SF_6 辐射效率为 $0.680 \text{ W m}^{-2} \text{ ppb}^{-1}$ ($1 \text{ ppb}=1 \times 10^{-9}$), 从工业革命时期到2005年的辐射强迫为 0.004 W m^{-2} . 王迎红等人^[13]在2008年北京奥运会前后对北京及周边大气 SF_6 浓度变化进行了研究, 指出北京周边大气中 SF_6 浓度呈线性增加, 并且增长速率大于全球大气背景的增长速率. 我国最早对 SF_6 进行长期监测是在青海瓦里关站, 始于1996年. 从2006年开始, 在北京上甸子站、浙江临安站、黑龙江龙凤山站和湖北金沙站也展开了对大气 SF_6 的长期观测. 2011年瓦里关站和上甸子站观测的大气 SF_6 平均浓度分别为7.54和7.52 pptv; 2013年 SF_6 平均浓度达到了8.10和8.12 pptv. 虽然人们不断试图从技术和生产工艺上减少 SF_6 的排放, 但随着发展中国家电力产业的不断发展, 以及 SF_6 难以降解的特性, 大气中 SF_6 浓度仍在不断增加.

南极远离其他大陆, 是受人类活动影响最小的地区之一, 由于其被环绕南极大陆的南大洋和极地涡旋隔离, 是对各种温室气体进行本底浓度观测的绝佳场所. 通过对南极大气的化学特征和大气本底浓度进行分析, 可更好地解读人类活动对全球环境变化的影响, 从而为我国政府制定相关的政策提供参考依据. 因此, 在南极进行大气温室气体本底浓度监测对我国南极考察计划有重要的参考意义, 同时也将填补我国极地大气化学相关研究的领域空白. 就 SF_6 来说, 在南半球大气监测站为数不多, 我国在

中山站开展 SF_6 浓度监测, 可以对 SF_6 浓度全球监测网予以补充, 便于进行 SF_6 本底浓度、来源与传输路径追踪研究. 在国际极地年(2008/2009)期间, 我国在南极中山站区建立了第一个大气本底监测站, 这是我国第一个项目较为齐全南极大气成份监测站, 实现了对大气中臭氧、黑碳气溶胶、二氧化碳、一氧化碳、六氟化硫等气体的连续监测. 本文利用2008年2月~2013年1月期间南极中山站区采集的大气样品, 分析了 SF_6 浓度变化特征, 并与全球温室气体数据中心(WMO World Data Centre for Greenhouse Gases)数据库中其他站点资料相对比, 为研究全球大气 SF_6 浓度的变化趋势提供参考.

1 研究区域与方法

1.1 研究区域概况

气体采样区域位于东南极大陆沿岸的中山站($69^\circ 22' 24'' \text{S}$, $76^\circ 22' 40'' \text{E}$)所在的米洛半岛(图1). 大气成分监测点设立在中山站的西北边缘天鹅岭顶部的平坦裸岩上. 中山站属于典型的南极大陆性气候, 受南极大陆高压和极地气旋的影响, 具有低温酷寒、暴风雪频繁的气候特征. 年平均气温 -10°C 左右, 极端最低温度为 -45.7°C ^[14]. 中山站常年受来自大陆冰盖下降风的影响, 年平均风速 7.1 m/s , 中山站平均大

图1 研究区域(a)与中山站 SF_6 浓度监测站位置(b)

Figure 1 The study area (a) and the observation site (b) for atmospheric SF_6 concentration at Chinese Zhongshan Station, East Antarctica

风日(当日出现风力大于6级)159 d, 极大风速为50.3 m/s. 东风和偏东风($45^{\circ}\sim 135^{\circ}$)的风向频率在80%以上^[15].

1.2 SF₆浓度测量与数据处理方法

近地面大气样品的采集参照WMO/GAW推荐的方法进行^[16,17], 使用空气采样瓶(Flask)进行采样, 对样品中SF₆浓度的检测采用双通道气相色谱法. Flask样品瓶在中国气象局大气成分研究所进行恒温真空热脱附处理, 70℃恒温器中抽真空处理72 h后, 进行24 h检漏检查, 充入平衡气(平衡气为来自瓦里关本底站的干洁空气)后发往南极. 在南极中山站采样点用自然空气对采样瓶进行3次清洗后, 进行分析样品采集. 在2008年2月27日~2013年1月25日期间, 每周进行一次样品采集, 每次采集2个平行样, 共采集气体样品500瓶. 在中国气象局大气成分研究所实验室采用Agilent 6890N气相色谱仪(美国安捷伦公司), 配备Agilent微电子捕获检测器(μ -ECD)测定. 本研究室在Agilent 6890N气相色谱仪基础上将商业化气相色谱仪进行改造, 将之与自组装的进样及控制系统和标校系统进行集成调试与测试, 建立了高精度的双通道气相色谱系统. 测试用标气来自美国Scott-Marrin公司(0.029 m³铝合金钢瓶, 以清洁空气为底气), 该标气可溯源至WMO一级标气. 采集的空气样品经过7 μ m的过滤器去除颗粒物后通过KNF泵抽入分析系统, 流量约1 L min⁻¹. 空气经-75℃超低温冷阱去除大部分水分后进入色谱阀箱. 除去水分的样气经切换阀进入双通道气相色谱系统, 样气经过色谱柱分离后进入ECD检测器进行检测. 为达到WMO/GAW大气本底监测要求, 实验测定时隔3个空气样品分析1个标气进行校准, SF₆利用峰高定量, 测定的SF₆体积分数标准偏差小于 0.11×10^{-12} ^[18].

通过测定标气浓度对观测数据进行校准后, 根据 $|x_i - \bar{x}| > 3\sigma$ 为检验判据, 剔除数据中的异常值, 其中, x_i 为测量值, $\bar{x}$ 为月平均值, σ 为标准差. 经上述处理后, 数据完整率为94.8%. 为与全球不同区域大气SF₆浓度进行比较, 本文选取了南北半球9个不同纬度观测站点2008年2月~2013年1月SF₆浓度的监测数据与中山站数据相对比, 选取的站点分别为South Pole, Palmer Station, Cape Grim, Tutuila, Mauna Loa, Tenerife, Trinidad Head, Summit和Alert (所有站点的经纬度如表1所示). 大气SF₆浓度资料来自WMO世界

温室气体数据中心(WDCGG)(<http://ds.data.jma.go.jp/gmd/wdcgg>).

2 结果与讨论

2.1 风向与风速对SF₆浓度的影响

为了分析近地面风速风向和站区排放源对SF₆观测结果的影响, 利用5年来中山站观测的风向资料, 绘成十六方位的玫瑰图, 并计算出SF₆在各个风向的浓度平均值(图2). 中山站的发电栋和垃圾焚烧炉位于观测站的东南方向, 距离观测站约400 m, 是最有可能对观测结果产生影响的局地源. 从图2中可以看出, 东南风出现的频率很小, 约为2.79%, 在出现东南风时, SF₆平均浓度为6.85 pptv, 与出现其他风向时的浓度相比没有显著增加, 说明观测结果没有受到站区人为因素影响. 由于南极大陆上覆盖的冰雪的高反射率导致了辐射冷却作用, 使近地层冷空气下沉, 从内陆海拔较高处向沿海地区流动从而形成下降风^[19]. 中山站主要受强下降风控制, 主导的风向为偏东风, 东风至偏东风($45^{\circ}\sim 135^{\circ}$)的出现频率高达92.0%. 中山站受极地气旋影响频率较低, 偏西风向较少出现. 在出现东风至东南风时SF₆浓度较低, 为6.89 pptv; 在出现西风至西南风时, SF₆的平均浓度较高, 为7.16 pptv. 这可能是由于观测站受盛行东风影响时, 气团主要来自东南极内陆地区, 且气团中SF₆浓度较低; 而受西风至西南风影响时, 观测站主要受来自海上气团的影响, 气团中SF₆浓度较高.

图2 中山站2008年2月~2013年1月16个风向下对应的5年平均SF₆浓度、风向频率(WF)和平均风速(WS)

Figure 2 The rose figure for annual average SF₆ concentration, wind direction frequency (WF) and average wind speed (WS) under sixteen wind directions at Zhongshan Station from February 2008 to January 2013

为进一步分析不同季节风向对SF₆浓度的影响, 同样按照十六方位绘制四季的风向玫瑰图. 图3给出了春季(9~11月)、夏季(12~2月)、秋季(3~5月)和冬季(6~8月)的十六方位玫瑰图和各风向上SF₆的平均浓度. 从图中看出, 四季盛行风向无明显差异, 均为偏东风(45°~135°), 冬季的平均风速较大. 在出现偏西风时, SF₆平均浓度较出现偏东风时高, 与全年的观测结果一致, 并以秋季和冬季最为明显. 从不同季节的各风向SF₆平均浓度来看, SF₆浓度受风向的影响, 但影响较小.

由于风速较小时不利于污染物的扩散, 需要考虑到风速对SF₆浓度变化可能产生的影响, 将风速划分为0~3, 3~6, 6~10, 10~15, 15~20和>20 m s⁻¹共6组进行统计分析. 图4显示0~15 m s⁻¹风速出现的频率最高, 占样本总数的98.0%. 除了在风速较大的情况下(>15 m s⁻¹), 由于样本较少导致SF₆浓度随风速变化不稳定, 其余情况风速对SF₆浓度影响较小. 总体

来看, 在风速较小时, SF₆浓度略高, 这可能是由于风速较小时观测点附近气团比较稳定, 不利于局地微量污染物扩散导致的. 总体来看SF₆浓度随风速变化的幅度小于0.3 pptv, 对监测结果影响不大.

2.2 SF₆浓度年际和季节变化特征及影响因素

根据上述的分析结果, 风速和风向对SF₆浓度的影响较小, 在中山站的观测结果可以代表当地大气中SF₆的本底浓度. 图5显示了从2008年2月~2013年1月SF₆浓度变化时间序列. 从图中可看出大气SF₆浓度逐年稳定上升, 具有长期一致的变化趋势, 浓度变化范围为6.25~7.73 pptv. 在观测的5年中, SF₆浓度没有观测到明显的周期性变化, 这是由于SF₆是一种人造气体, 其来源不会由于温度和季节的变化发生周期性改变. 2008~2012年SF₆的平均浓度分别为6.36±0.06, 6.59±0.10, 6.85±0.11, 7.13±0.12和7.47±0.10 pptv. 通过最小二乘法对SF₆浓度和时间进行线性拟合, 相

图3 中山站2008年2月~2013年1月16个风向下不同季节SF₆平均浓度、风向频率(WF)和平均风速(WS)

Figure 3 The rose figures for seasonal average SF₆ concentration, average wind speed (WS) and wind direction frequency (WF) under sixteen wind directions at Zhongshan Station from February 2008 to January 2013

图4 中山站 2008 年 2 月~2013 年 1 月不同风速等级出现频率及对应的 SF₆ 平均浓度

Figure 4 The rank frequency of wind speeds and corresponding average SF₆ concentrations at Zhongshan Station from February 2008 to January 2013

图5 中山站 2008 年 2 月~2013 年 1 月大气 SF₆ 月平均浓度随时间的变化特征

Figure 5 Characteristics of SF₆ monthly average concentrations at Zhongshan Station from February 2008 to January 2013

关系系数 R^2 达到 0.989, SF₆ 浓度和时间呈现很好的线性关系. 根据线性拟合结果进行计算, 大气 SF₆ 浓度的平均增长率约为 0.28 pptv a^{-1} .

图6为观测期间不同季节 SF₆ 浓度的盒子统计图. 可以看出在春季与夏季 SF₆ 浓度没有显著变化, 但到秋季则出现了一个明显下降, 降幅约 0.2 pptv , 到冬季则又出现回升. 通过统计不同季节东风至东南风的频率, 结果表明秋季东风至东南风出现的频率最高, 为 62.1%, 其次为冬季 55.4%、春季 44.6%、夏季 39.0%. 将风向频率与 SF₆ 浓度平均值对比可以看出, 东风至东南风出现频率越高, SF₆ 平均浓度越低. 这与前文 2.1 节的结果相对应, 在东风至东南风时, 中山站受东南极内陆的气团影响, 由于内陆气团中 SF₆ 浓度较低, 导致秋季 SF₆ 平均浓度低于其他季节.

为研究全球大气 SF₆ 浓度分布和主要排放源区, 本文选取了南北半球不同纬度的 9 个大气观测点, 以研究 SF₆ 在大气中的空间分布和运输. 图 7 比较了

图6 中山站 2008 年 2 月~2013 年 1 月不同季节 SF₆ 浓度分布盒子统计图

Figure 6 The statistical boxplot of average SF₆ concentrations in different seasons at Zhongshan Station from February 2008 to January 2013

2008 年 2 月~2013 年 1 月期间南极中山站与全球其他监测点测定的大气 SF₆ 浓度随时间的变化特征 (Palmer 站 2011 和 2012 年的观测结果与其他站点有较大差距, 故舍去). 从图中可以看出, 中山站区大气 SF₆ 浓度观测结果处在南半球各站观测的 SF₆ 浓度范围之内, 说明本文的观测数据可反映南半球大气 SF₆ 本底浓度的变化趋势. 通过对比分析不同纬度地区 SF₆ 浓度结果表明: 低纬度地区 SF₆ 的浓度沿纬度梯度由北到南呈降低趋势, 这和 Maiss 和 Brenninkmeijer^[20] 以及 Geller 等人^[21] 的研究结果相一致. 在较高纬地区 SF₆ 的混合比较均匀, 北半球高纬地区大气 SF₆ 浓度比南半球高约 $0.3 \sim 0.4 \text{ pptv}$, 这是由于超过 95% 的 SF₆ 排放来自北半球^[4]. 根据 2008~2012 年南北半球大气 SF₆ 年平均浓度变化趋势进行线性拟合, 得到北半球 SF₆ 浓度平均增长速度约为 0.28 pptv a^{-1} , 南半球 SF₆ 浓度平均增长速度约为 0.29 pptv a^{-1} , 根据中山站监测结果得到的 SF₆ 年增长速率为 0.28 pptv a^{-1} , 较南半球得到的增长率略小.

表 1 列出了中山站与选取的观测站点经纬度及 2008~2012 年大气 SF₆ 浓度年平均值. 从表中可以看出, 2008~2012 年期间南北半球大气 SF₆ 浓度年平均增幅相近, 都约为 0.28 pptv a^{-1} , 说明每年 SF₆ 的排放量比较稳定, 使大气中 SF₆ 浓度的增加量维持在稳定水平. 南北半球大气 SF₆ 浓度增幅相似说明 SF₆ 在大气中混合良好, 南北半球的监测数据都没有受当地排放的影响. 在 2010 年北半球大气 SF₆ 浓度出现了一个明显增幅, 随后出现缓慢回降, 这在中低纬地区更为明显, 而在高纬地区 SF₆ 浓度增长速率较为稳定. 在北半球中低纬度地区人口密集, 工业发达, 是 SF₆ 排

图7 中山站大气观测点与全球其他站点SF₆浓度的年变化比较。(a) 选取的全球不同纬度SF₆浓度监测站分布图;(b) 全球不同站点SF₆浓度月平均值及南北半球SF₆年平均值变化趋势,其中SH与NH分别代表南半球和北半球,数据来自http://cdiac.ornl.gov/oceans/CFC_ATM_Hist2015.html

Figure 7 Comparisons of average SF₆ concentrations between the observation site at Zhongshan Station and other global sites. (a) The distribution of global observation sites for SF₆ concentrations selected from different latitudes; (b) the variations of monthly average SF₆ concentrations at different observation sites and annual average SF₆ concentrations in the Northern and Southern Hemispheres. SH and NH indicates the Southern Hemispheres and the Northern Hemispheres, respectively. The data were cited from http://cdiac.ornl.gov/oceans/CFC_ATM_Hist2015.html

放的主要源区,可以推断在2010年北半球SF₆的排放有明显增加,随后排放量恢复到2008/2009年水平。处在28°18'N的Tenerife观测站靠近非洲海岸,其观测到的2010年SF₆浓度增幅要小于位于其南边的Mauna Loa站和位于其北边的Trinidad Head站,这可能是由于其他两个观测站位置更靠近工业较为发达的北美

洲。在南半球大气SF₆浓度增幅变化无明显规律,这可能是由于SF₆作为一种主要由工业生产和人类活动产生的气体,其在南半球排放来源较少,大气在观测区域已经过充分混合。除了位于南半球纬度较低的Tutuila站外,其余观测站与澳大利亚的Cape Grim站在2010和2011年后SF₆浓度增幅有小范围上升,随后

表1 中山站与选取的观测站点经纬度及2008~2012年大气SF₆浓度年平均值^{a)}Table 1 The longitudes and latitudes for the SF₆ observation sites, and average SF₆ concentrations and their growth rates from 2008 to 2012

站点名称	纬度	经度	SF ₆ 浓度 (pptv)							增长速度 (pptv a ⁻¹)			
			变化范围	平均值	2008 年	2009 年	2010 年	2011 年	2012 年	2008~ 2009年	2009~ 2010年	2010~ 2011年	2011~ 2012年
South Pole	89°58'S	24°48'W	6.11~7.58	6.85±0.40	6.30	6.53	6.81	7.10	7.39	0.23	0.28	0.29	0.29
Zhongshan	69°22'S	76°22'E	6.25~7.73	6.92±0.54	6.35	6.59	6.84	7.13	7.42	0.24	0.25	0.29	0.29
Palmer Station	64°55'S	64°W	6.12~7.61	6.79±0.32	6.28	6.55	6.84	/	/	0.27	0.29	/	/
Cape Grim	40°40'S	144°41'E	6.18~7.66	6.82±0.40	6.30	6.56	6.82	7.11	7.40	0.26	0.26	0.29	0.29
Tutuila	14°14'S	170°34'W	6.24~8.46	6.89±0.43	6.37	6.63	6.93	7.20	7.52	0.26	0.3	0.27	0.32
南半球平均			6.29~7.43		6.29	6.58	6.87	7.17	7.43	0.29	0.29	0.3	0.26
Mauna Loa	19°32'N	155°35'W	6.30~7.93	7.12±0.43	6.51	6.77	7.12	7.40	7.67	0.26	0.35	0.28	0.27
Tenerife	28°18'N	16°30'W	6.45~8.00	7.23±0.40	6.63	6.88	7.17	7.45	7.75	0.25	0.29	0.28	0.3
Trinidad Head	41°2'N	124°9'W	6.47~8.11	7.24±0.41	6.69	6.93	7.23	7.55	7.80	0.24	0.3	0.32	0.25
Summit	72°34'N	38°29'W	6.53~8.06	7.26±0.40	6.68	6.94	7.22	7.50	7.79	0.26	0.28	0.28	0.29
Alert	82°27'N	62°31'W	6.51~7.97	7.24±0.40	6.67	6.94	7.21	7.49	7.76	0.27	0.27	0.28	0.27
北半球平均			6.62~7.73		6.62	6.89	7.21	7.46	7.73	0.27	0.32	0.25	0.27

a) 数据来自 http://cdiac.ornl.gov/oceans/CFC_ATM_Hist2015.html, “/” 示数据缺失

增幅保持稳定; 暗示中山站有可能受到来自澳大利亚气流的影响. 与北半球相比, 南半球对北半球SF₆排放增加有一定的敏感性, 对于排放下降则无法及时反馈. 这可能是由于南半球SF₆排放源较少, SF₆的主要输入来源为北半球的大气输入, 南北半球气团混合需要一定时间, 而SF₆难以分解, 在南半球大气中SF₆浓度的变化主要为北半球输入的持续积聚造成, 可作为全球大气的本底. 因此南半球高纬度地区大气SF₆浓度更稳定, 不易受到SF₆排放量急剧变化的影响, 因此南极是对SF₆浓度进行本底监测的理想区域.

3 结论

通过南极中山站2008~2013年的大气SF₆浓度连续监测, 获得了中山站大气SF₆本底浓度和变化特征. 结果表明, 不同风向和风速条件对SF₆监测影响很小, 观测的SF₆浓度可以代表南极中山站大气SF₆本底浓度. 通过与全球其他站点数据对比看出, 大气中SF₆浓度随纬度梯度变化明显, 呈现南半球低北半球高的规律, 这是由于北半球人口密集工业发展程度较高, SF₆的排放主要集中在北半球. 中山站获得的SF₆

浓度值处于南半球各站观测的SF₆浓度范围之内, 并与其他站点观测结果呈现一致的变化趋势, 说明本文的观测结果能代表全球大气本底变化特征. 大气中SF₆浓度在持续稳定增加, 年平均增长速率约为0.28 pptv a⁻¹. 由此可见, SF₆虽然是被限制排放的温室气体, 但由于其在工业中不可或缺的地位以及对SF₆减排控制技术的不成熟, 使大气中的SF₆浓度仍不断增加. 为减少SF₆的排放, 当前主要的解决措施包括: 使用其他气体代替SF₆, 将排放气体回收从中分离出SF₆循环利用, 以及加强对电气设备的监控来减少排放; 而解决问题的根本方法是用其他气体完全替代SF₆, 但当前还没有成熟的SF₆替代品, 因此对SF₆的潜在替代品进行研究对缓解日益严重的全球大气环境问题意义重大. 本研究在南极中山站区获得的监测结果能较好地反映大气充分混合后SF₆的背景浓度, 对全球监控和控制SF₆的排放, 以及研究SF₆浓度的增加对全球变化的影响具有重要参考意义. 在未来的研究中, 仍将继续进行南极中山站温室气体的监测活动, 并进一步结合当地气象条件, 以系统分析南极大气中SF₆的来源和传输路径, 为全球SF₆排放的监管提供参考依据.

致谢 中国气象局大气化学重点实验室和南极中山站考察队在资料获取中做出了很大的贡献, 在此一并表示衷心感谢.

参考文献

- 1 Stocker T F, Qin D, Plattner G K, et al. IPCC, 2013: Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA: Cambridge University Press, 2013. 1535
- 2 Maiss M, Levin I. Global increase of SF₆ observed in the atmosphere. *Geophys Res Lett*, 1994, 21: 569–572
- 3 Rigby M, Mühle J, Miller B R, et al. History of atmospheric SF₆ from 1973 to 2008. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10: 10305–10320
- 4 Olivier J G J, Van Aardenne J A, Dentener F J, et al. Recent trends in global greenhouse gas emissions: Regional trends 1970–2000 and spatial distribution of key sources in 2000. *Environ Sci*, 2005, 2: 81–99
- 5 Harnisch J, Eisenhauer A. Natural CF₄ and SF₆ on Earth. *Geophys Res Lett*, 1998, 25: 2401–2404
- 6 Busenberg E, Plummer L N. Dating young groundwater with sulfur hexafluoride: Natural and anthropogenic sources of sulfur hexafluoride. *Water Resour Res*, 2000, 36: 3011–3030
- 7 Ko M K W, Sze N D, Wang W C, et al. Atmospheric sulfur hexafluoride: Sources, sinks and greenhouse warming. *J Geophys Res* (1984–2012), 1993, 98: 10499–10507
- 8 Levin I, Naegler T, Heinz R, et al. The global SF₆ source inferred from long-term high precision atmospheric measurements and its comparison with emission inventories. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10: 2655–2662
- 9 Ravishankara A R, Solomon S, Turnipseed A A, et al. Atmospheric lifetimes of long-lived halogenated species. *Science*, 1993, 259: 194–199
- 10 Lovelock J E. Atmospheric fluorine compounds as indicators of air movements. *Nature*, 1971, 230: 379
- 11 Lal S, Chand D, Venkataramani S, et al. Trends in methane and sulfur hexafluoride at a tropical coastal site, Thumba (8.6°N, 77°E), in India. *Atmos Environ*, 2004, 38: 1145–1151
- 12 Zhang H, Zhang R Y, He J H, et al. Radiative forcing and global warming potentials of CH₄ and N₂O (in Chinese). *Chin J Atmos Sci*, 2013, 37: 745–754 [张华, 张若玉, 何金海, 等. CH₄ 和 N₂O 的辐射强迫与全球增温潜能. *大气科学*, 2013, 37: 745–754]
- 13 Wang Y H, Wang Y S. Atmospheric sulfur hexafluoride in Beijing and near cities during the summer of 2008 (in Chinese). *China Environ Sci*, 2010, 30: 941–945 [王迎红, 王跃思. 奥运前后北京及其周边大气六氟化硫浓度的变化. *中国环境科学*, 2010, 7: 941–945]
- 14 Bian L G, Ma Y F, Lu C G, et al. Temperature variations at the Great Wall Station (1985–2008) and Zhongshan Station (1989–2008), Antarctic. *Chin J Polar Res*, 2010, 22: 1–9
- 15 Bian L G, Ma Y F, Lu C G, et al. Climate characteristics of precipitation and wind as well pressure and cloud amount at the Great Wall Staion (1985–2008) and Zhongshan Station (1989–2008), Antarctic (in Chinese). *Chin J Polar Res*, 2010, 22: 321–333 [卞林根, 马永锋, 逮昌贵, 等. 南极长城站(1985–2008)和中山站(1989–2008)风和降水等要素的气候特征. *极地研究*, 2010, 22: 321–333]
- 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
- 17 Komhyr W D, Waterman L S, Taylor W R. Semiautomatic nondispersive infrared analyzer apparatus for CO₂ air sample analyses. *J Geophys Res*, 1983, 88: 1315–1322
- 18 Fang S X, Zhou L X, Zhang F, et al. Dual channel GC system for measuring background atmospheric CH₄, CO, N₂O and SF₆ (in Chinese). *Acta Sci Circum*, 2010, 30: 52–59 [方双喜, 周凌晞, 张芳, 等. 双通道气相色谱法观测本底大气中的 CH₄, CO, N₂O 和 SF₆. *环境科学学报*, 2010, 30: 52–59]
- 19 Yang Q H, Zhang L, Li C H, et al. Analysis on the variation tendencies of meteorological elements at Zhongshan Station, Antarctica (in Chinese). *Mar Sci Bull*, 2010, 29: 601–607 [杨清华, 张林, 李春花, 等. 南极中山站气象要素变化特征分析. *海洋通报*, 2011, 29: 601–607]
- 20 Maiss M, Brenninkmeijer C A M. Atmospheric SF₆: Trends, sources, and prospects. *Environ Sci Technol*, 1998, 32: 3077–3086
- 21 Geller L S, Elkins J W, Lobert J M, et al. Tropospheric SF₆: Observed latitudinal distribution and trends, derived emissions and interhemispheric exchange time. *Geophys Res Lett*, 1997, 24: 675–678

Background characteristics of atmospheric sulfur hexafluoride concentrations at Zhongshan Station, Antarctica

WANG Can¹, BIAN LinGen², YE WenJuan¹, ZHU RenBin¹, ZHENG XiangDong² & LIU LiXin²

¹ Institute of Polar Environment, School of Earth and Space Sciences, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China;

² Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081, China

Sulfur hexafluoride (SF₆) is one kind of highly stable anthropogenic greenhouse gas with a global warming potential (GWP) of 2.35×10^4 over a 100-year time horizon. SF₆ emissions are targeted for reduction under the Kyoto Protocol. Therefore it is important for the research about global change to observe atmospheric SF₆ background concentrations. Here, we present the patterns for the seasonal and annual variations of atmospheric SF₆ concentrations at Zhongshan Station, east Antarctica from February 2008 to January 2013. The prevailing wind direction at the observation site was from the east with the frequency of 92.0%. The average SF₆ concentration was about 6.89 pptv under east wind, lower than that under west wind (7.16 pptv). More frequent west wind occurred in autumn and thus average SF₆ concentration was higher in autumn than other seasons, indicating that the airflow from western sea area contained higher SF₆ concentration than the airflow from east Antarctic continent. On the whole, SF₆ concentrations showed an insignificant change under different wind speeds and directions, indicating that the influence of wind and local pollution could be ignored. Our results could represent the background concentrations for atmospheric SF₆ at Zhongshan Station. The SF₆ concentrations ranged from 6.01 to 7.80 pptv with the average of 6.90 ± 0.40 pptv from February 2008 to January 2013. Annual SF₆ concentrations in the atmosphere steadily increased at the rate of 0.28 pptv a^{-1} , and the increasing magnitudes were very close to each other per year during the period of 2008–2012, similar to the results from other global observation sites, indicating that annual SF₆ emission amount could be almost stable each year. No evident periodical changes in SF₆ concentrations were observed during the five years. The seasonal SF₆ concentration did not show insignificant variation in spring and summer, but an evident decrease in its level occurred in autumn, and then it rose back to normal level in winter. Combined our data with those from other nine observation sites, atmospheric SF₆ concentrations showed an evident gradient change with the latitudes at the global scale, and its concentrations in the Northern Hemisphere were 0.3–0.4 pptv higher than those in the Southern Hemisphere because the main emission sources for atmospheric SF₆ concentrated in the Northern Hemisphere. The primary source for atmospheric SF₆ is industrial emissions in the Northern Hemisphere, whereas its main source is the SF₆ southward transportation in the Southern Hemisphere. Our results prove that atmospheric SF₆ concentration is continuously growing and its industrial emission control needs to be strengthened. Antarctica is less affected by human activities on the globe, which makes it an ideal area to observe SF₆ background concentrations. Our data in the present study will guide industry in optimizing and controlling the SF₆ emissions. The SF₆ sources and its transportation pathways will be further studied at Zhongshan Station in the future.

Antarctica, Zhongshan Station, SF₆ concentration, atmosphere, background concentration

doi: 10.1360/N972015-00651