

中国 CH_4 排放量的估算

王明星 戴爱国 黄俊 任丽新 沈壬兴

(中国科学院大气物理研究所, 北京 100029)

H. Schutz H. Renneberg W. Seiler

(德国夫琅和费大气环境所)

R. A. Rasmussen M. A. K. Khalil

(美国俄勒冈研究生院)

提 要

1987—1989年用自动连续采样分析设备对杭州地区的稻田 CH_4 排放进行了三年连续观测, 1988—1990年用定期采样、分析方法对四川乐山地区的稻田 CH_4 排放进行了三年观测. 发现稻田 CH_4 排放率有很大的日变化、季节变化和年际变化, 这些变化主要是由土壤特性、水稻生长状况以及气象条件的变化造成的. 不同地区稻田 CH_4 排放率差别很大, 变化规律也不同, 这种差别主要是由土壤特性、水稻品种及气候条件的差别造成的. 根据现有观测资料, 估计中国稻田 CH_4 年排放总量为 $17 \times 10^{12} \text{g}$. 对沼气池的 CH_4 泄漏进行了三年系统观测研究, 发现沼气池泄漏变化范围很大, 但泄漏量总起来都很小, 中国 1000 万个沼气池不构成大气 CH_4 的重要源. 根据沼气池的泄漏估计了农村堆肥的 CH_4 排放量为 $3.2 \times 10^{12} \text{g/a}$; 根据城市、稻田附近和沙漠地区大气 CH_4 浓度的测量结果推算了城市 CH_4 排放量; 根据反刍动物消耗食物总量估计了反刍家畜的 CH_4 排放量; 根据瓦斯排放资料估计了煤矿 CH_4 排放量; 根据文献资料估计了中国天然湿地的 CH_4 排放量. 最后估计了中国各种源的 CH_4 排放总量及未来变化趋势. 1988 年中国 CH_4 排放总量为 $40 \times 10^{12} \text{g}$, 其中一半以上来自稻田. 2000 年中国 CH_4 排放总量可达 $46 \times 10^{12} \text{g}$, 主要是反刍动物和煤矿排放量增加.

关键词: 甲烷; 稻田; 沼气池; 中国.

一、引 言

甲烷 (CH_4) 是一种重要的大气微量成分. 与 CO_2 一样, 大气 CH_4 是一种长寿命温室效应气体, 大气 CH_4 增加将通过辐射过程直接引起气候变化; 另一方面, 与 CO_2 不同, 大气 CH_4 是一种化学活性物质, 它的增加将会引起许多大气化学过程的变化, 影响大气的其它化学成分, 间接地引起气候变化.

过去几十年里的大气 CH_4 观测及冰岩芯气泡的分析研究证明, 在过去 100 多年里大气 CH_4 的浓度发生了很大变化, 工业化前全球大气 CH_4 平均浓度只有 0.6—0.8ppmv,

1992 年 3 月 7 日收到, 6 月 20 日收到修改稿.

到 1990 年已达到 1.72 ppmv, 增加了将近一倍半, 在第二次世界大战以后的 40 多年里增加速度特别快, 1945—1985 年间平均年增加率达 1%, 自 1986 年以后, 大气 CH_4 的增加速率有下降的趋势, 目前全球平均年增长率 0.9%。我们对大气 CH_4 增加的原因尚未完全弄清, 一般认为是人为活动造成 CH_4 排放源增加, 但也不能排除大气污染造成大气 CH_4 汇强减弱的可能性。

为了进一步弄清大气 CH_4 增加的原因, 预测其未来变化趋势, 需要定量地研究大气 CH_4 各种源的排放量及其动态变化。就全球尺度而言, 大气 CH_4 的源主要是天然湿地、稻田、反刍家畜、化石燃料生产运输过程、垃圾处理及浅水湖沼。中国是 CH_4 排放大国, 特别是稻田 CH_4 排放对全球大气 CH_4 有重要影响。本文通过实际测量和大气成分浓度的分析估算了中国各类 CH_4 排放源的年排放量, 并对中国的 CH_4 总排放量及其未来变化趋势进行了估计。

二、中国各种源 CH_4 排放量的估算

1. 中国稻田 CH_4 排放

稻田是全球大气 CH_4 的主要排放源, 也是造成过去 100 多年里大气 CH_4 浓度增加的重要原因之一。中国是世界水稻生产大国。1988 年中国水稻播种面积为 4.8 亿亩, 占世界水稻总播种面积的 22%, 仅次于印度, 居世界第 2 位。中国水稻田几乎 100% 实现了灌溉化, 且大量使用有机肥料和化肥, 单位面积产量远高于印度, 与日本等发达国家相当。因此, 1988 年中国稻米的产量占世界稻米总产量的 38%, 居世界第一。中国稻田不仅是中国最主要的 CH_4 排放源, 而且对全球大气的 CH_4 也是个重要角色。

1) 中国稻田分布及其种植方式

我国的水稻栽培始于五千年前, 是世界上最早栽培水稻的国家之一, 我国人民通过长期以来的生产实践, 培养了许多典型的水稻土。水稻种植面积占全国耕地面积的四分之一, 分布几乎遍及全国, 北至 $53^{\circ}36' \text{N}$ 的黑龙江漠河, 南到 $18^{\circ}20' \text{N}$ 的海南岛崖县, 东到台湾, 西迄新疆和西藏, 其分布趋势是: 从热带、亚热带向暖温带逐渐减少, 从东南海滨平原向云贵高原逐渐递减, 而以长江中下游、成都平原、珠江三角洲、云贵川丘陵与平原、浙闽海滨和台湾平原最为集中。

根据不同生态气候带、地貌特征以及耕作制度, 我国水稻田大致可分五大区^[1]:

(a) 华南、滇南水稻区: 属亚热带及热带, 可以一年三熟, 水稻田占播种总面积的 40%—60%, 盛行双季稻, 稻田分布在丘陵台地、山间盆地、河谷平原和海滨平原。

(b) 华中水稻区: 地势以起伏的丘陵为主, 稻田分布在湘、赣、闽、浙的山地丘陵、盆地、河谷及海滨平原, 气候属中亚热带, 水稻田占播种总面积的 40%—60%, 除个别山地丘陵种一季稻外, 盛行双季稻。

(c) 长江中下游水稻区: 主要包括太湖平原、鄱阳湖平原、江汉平原。属亚热带, 水稻田占播种总面积的 20%—40%, 盛行稻麦两熟和双季稻。

(d) 西南水稻区：地处亚热带，海拔多在 1500—2000m 以上，为山地丘陵与高原盆地交错，一般一年只种一季，水稻田占播种总面积的 20% 左右。

(e) 北方水稻区：地貌为平原、山地高原、盆地，属暖温带和温带，水稻田占播种总面积的 10% 以下，多为一年一熟制。

表 1 列出了上述各水稻区水稻田土壤的肥力和灌水天数。

表1 中国稻田的肥力及灌溉期^[2]

耕作方式	地理分布	营养成分 (%)				灌溉天数 (d)
		O.M.	N	P ₂ O ₅	K ₂ O	
单季稻	西南地区山地丘陵	1.4	0.05	0.1	1.5	120—150
	华北平原	1.79	0.10	0.14	2.0	120—150
	东北平原	3.20	0.15	0.24	2.2	
一季晚稻	长江中下游平原					120—150
双季稻	长江中下游沿岸平原地区	2.20	0.13	0.11	1.2	90—100(早稻)
	长江中下游沿岸丘陵区	1.59	0.10	0.08	1.4	100—120(晚稻)
	南方三季作物区、平原区	2.40	0.16	0.12	1.9	
	南方三季作物区、山区	2.20	0.14	0.09	2.3	

中国稻田以南方水稻为主要部分，其种植过程包括浸种、育秧、移栽翻田、除草、收割等过程。过冬时稻田一般种上红花草等作为第二年的绿肥或种小麦、油菜等。南方早稻育秧一般在清明前后，4月下旬至5月上旬进行移栽，施肥在翻地(施有机肥，例如草灰、粪、禾秆等)和移栽前及水稻的分蘖期(施化肥)进行，7月下旬至8月上旬收割，生长期为 90—100 天，早稻或小麦收割完后，在田中撒些有机肥，就开始翻地灌水，移栽晚稻，晚稻在 11 月上旬收割，其生长期为 100—120 天，一季晚稻(即麦茬稻)生长期可达 120—150 天。单季稻多在北方及南方的盐碱地和山地丘陵区种植，生长期为 120—150 天，它的种植面积在整个水稻中所占比例很小。由于我国人口多，土地少，劳动力比较富裕，稻田多采用精耕细作的方式，单位面积产量在第三世界是最高的。

2) 稻田甲烷排放观测实验及结果分析

我国水稻种植面积约占全世界水稻总播种面积的 1/4，因而对全球稻田甲烷源来说，它的观测资料极其重要，以前的全球稻田甲烷排放估计一直因缺少这个地区的资料而缺乏说服力。

自 1987 年 8 月起，中国科学院大气物理所与西德夫琅和费大气环境研究所合作，使用他们在西班牙、意大利稻田甲烷排放观测中发展起来的一套自动连续观测系统，在我国杭州地区的一块稻田进行了亚太地区稻田 CH₄ 排放通量的首次观测；接着和美国能源部合作自 1988 年 5 月起在我国四川乐山地区的一块单季稻田开展了一些野外测量实验，获得了很有意义的资料，并进一步研究了稻田甲烷产生、排放的机制和特征。

(a) 杭州观测实验及结果

1987 年 8 月—1989 年 10 月，在浙江农业大学的一块实验田里对长江中下游区的代表性水稻土的稻田 CH_4 排放进行了两年半连续系统观测，观测实验方法和部分结果已在文献 [3] 中详细描述，本文将综合讨论 5 个生长季节的稻田 CH_4 排放规律。

在对 1988，1989 年的早稻及 1987—1989 年晚稻的观测资料进行仔细分析后我们发现，在整个水稻生长期，甲烷排放有明显的日变化，这种日变化的规律早稻和晚稻不同，并随生长季节而变动(图 1a, b)，早稻的甲烷排放量最大值一般出现在下午 1 点到 4 点，排放量最大值与最小值的比值在 1.26—12 间变动，夜间 0—3 点出现第二个极大值。而对晚稻来说，其排放极大值大都出现在夜间，偶尔在下午出现第二个极大值。这些特点与以前 Cicerone 和 Seiler 等 [4,5] 在温带稻田中所观测到的 CH_4 排放日变化结果有很大差别，这说明了影响稻田甲烷排放因素的复杂性。

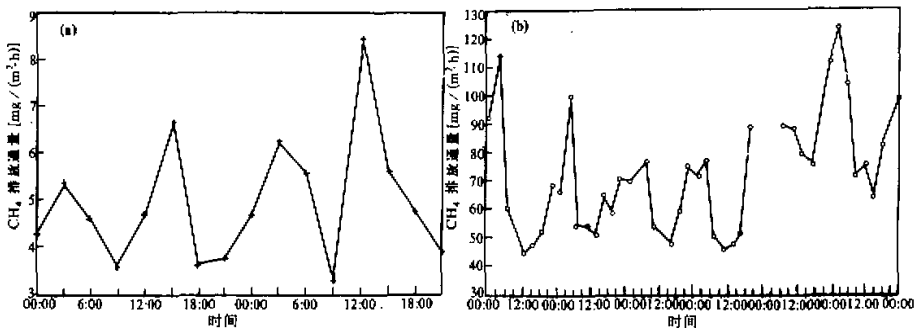


图 1 甲烷排放的日变化
(a) 早稻, (b) 晚稻。

稻田甲烷排放受三个过程的制约，即甲烷产生、再氧化及输送过程。稻田中甲烷主要在土壤中 5—15cm 深度层内产生，主要是通过水稻植物茎秆细胞壁间的空隙输送到大气中的，气泡形成及其随后在水面炸裂，及气体分子扩散对整个排放量贡献较小。当土壤中甲烷产生速率比较小而且(或)输送不畅时，大多数的甲烷在土壤中被再氧化，从而排放量就小；反之当甲烷生成速率较快，并且(或者)能很快排放到大气中，那么它们被氧化的可能性就小了，排放量就大。土壤中甲烷的产生在土壤环境温度范围内与土壤温度有正相关关系，温度越高，越利于甲烷的生成，因此早稻及晚稻都会有下午的排放极大值。但是，由于杭州地处亚热带，夏季白天阳光强烈，温度高，使水稻体内水分高速蒸腾，导致气孔在午间及下午短暂关闭，使产生的甲烷无法排放出来而积聚在土壤中，同时，由于气孔关闭，大气中的氧气也无法向水稻的根部输送，降低了这些积累甲烷的氧化率。而到晚上，气温下降，气孔张开，将下午产生、大量积聚的甲烷排放出来，从而出现夜间的最大值。总体而言，稻田甲烷的排放受上述过程的制约，但不同条件下他们的作用的相对大小不同。以前在加利福尼亚、欧洲的观测没有发现上述日变化特征，我们认为这主要是因为这几个测点地理位置靠北，水稻生长期间太阳辐射和(或)温度等还不够强烈，控制甲烷排放量的主要过程是随温度而变化的甲烷产

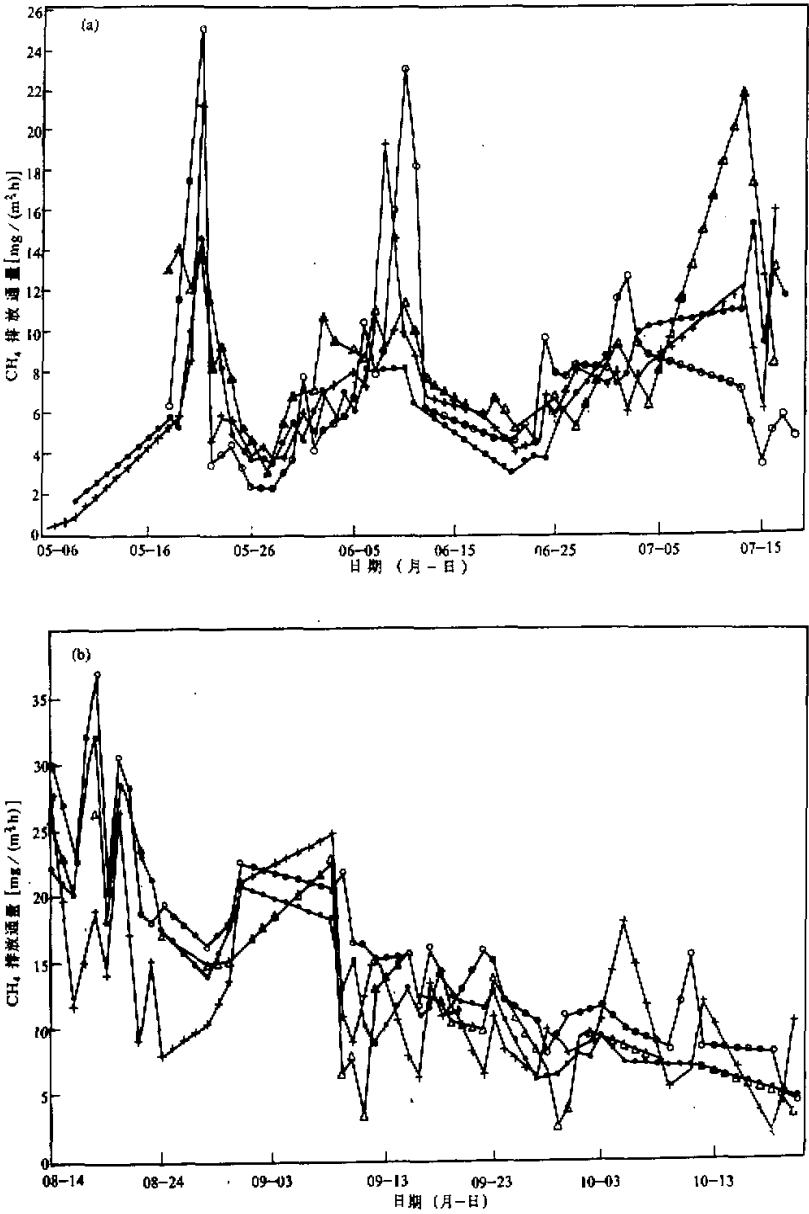


图2 1988年甲烷排放的季节性变化
(a) 早稻、(b) 晚稻。 “○” 1号田，“+” 2号田。
“*” 3号田，“△” 4号田。

生过程，输送过程的控制作用较小。另外，甲烷排放还与所种植的水稻品种有关系，不同品种的水稻其输送能力和控制其输送能力的环境条件各不相同。

除稻田甲烷排放的日变化外，我们还观测到它的季节波动（图 2a, b）。第一个极大值出现在水稻移栽后 10 天的分蘖初期，另外两个则在开花期前后。我们认为这种季节变化主要与土壤中的有机质含量及水稻植物体的活性有关。第一个极大值是由稻田灌水前留在稻田中的有机物形成的。稻田灌水后形成土壤缺氧环境，有机物开始分解产生 CH_4 ，但这时水稻还没生长或还未能成活，所产生的甲烷都无法很快地排放到大气而积聚在土壤中，或部分被氧化。到了分蘖期，水稻的成长使输送路径畅通，使累积的大量甲烷很快地被排放出来形成第一个排放峰值。随着土壤有机物的消耗， CH_4 产生和排放率也随之下降。分蘖期以后，水稻不断长大，其根部系统也越来越发达，它能通过根流出物质的方式向土壤的细菌提供有机物。根流出物主要有碳氢化合物、有机酸及氨基酸，这些物质在土壤厌氧条件下被分解发酵成 H_2/CO_2 、乙酸（盐），从而被产甲烷菌利用，产生更多甲烷。这后两个极值可能就是根系物质所造成的。

观测中还发现，晚稻的平均 CH_4 排放通量要比早稻高得多。这可能是由于水稻生长期土壤温度的差异和水稻品种不同造成的。但是，尽管甲烷的产生与土壤温度成正相关关系，而稻田甲烷排放与土壤温度的关系则要复杂得多。温度的升高或降低会引起许多影响甲烷排放因子的响应，但各因子的响应速度不同，因此它们的关系一时还难以定量地确定。我们在观测中就发现排放通量变化与土壤温度变化有 1—2 天的时间滞后，这大概就反映有机物质分解、发酵、甲烷产生及输送所需要的时间。

通过不同施肥田的比较，我们发现，在水稻生长初期，施硫酸钾肥的稻田排放通量要略小于没有施肥的田，而到生长后期，则反之。这是因为肥料中的 SO_4^{2-} 能刺激土壤中硫酸盐还原菌的增长，这种菌会与产甲烷菌对它们共同的被用物——乙酸（盐）进行争夺从而抑制了甲烷的产生。硫酸盐还原菌也可能参与甲烷的再氧化反应从而影响土壤中 CH_4 的再氧化速率；但是另一方面，肥料的使用使水稻生长快，提高水稻体输送甲烷的能力，而且水稻根系能向土壤提供较多的有机物。因此在生长后期反而有较高的 CH_4 排放通量。

（b）西南地区甲烷排放观测

自 1988 年 5 月起，中国科学院大气物理研究所与美国能源部合作，对能代表西南丘陵地区的一块稻田进行观测实验。观测地点选在四川乐山市市中区土主乡（ $29^\circ 40' \text{N}$, $103^\circ 50' \text{E}$ ）。实验田不远处有一几十米高的小丘，上面设一气象观测站。这里的土壤属于紫色土类、酸性紫色土亚类、红紫泥土土属，母质为中生界白垩系下统灰关组厚层砂岩或厚砂薄泥岩风化的残积或坡积物，质地居于沙壤至中壤土之间，砂粒含量为 59.70%—63.30%，耕层厚 13—31m，土壤以沙状结构为主，有机质及总氮的含量分别为 1.4% 与 0.034%，在水稻种植过程中，pH 值在 5.5—7 之间变动。与杭州的稻田相比，其有机质含量低，酸度大，而两地年降水量及相对湿度都很接近。西南山区水稻区一般一年只种植一季水稻，在 4 月中旬开始翻地灌水，下旬开始移栽，生长期约 140 天，到八月底开始收割。我们于五月一日正式开始观测（移栽后几天）。为了防止实验可能产生的随机误差，我们同时对四块田进行测量，每周共采样四次，分别

在周一、四上午 6:30—10:30 和周二、五下午 18:00—22:00，每次采样前后，都测出田旁及气象站两地空气中的甲烷浓度，同时还测得空气及土壤的温度，其中上午采样时，要赶在日出前后进行，因为这时空气逆温层还未被破坏，采集的样品在一两天内在实验室进行分析。

稻田甲烷排放通量的观测原理与杭州基本相同，但是观测次数要少得多，不能得出详尽的排放日变化，但是仍能看出下午排放要比上午大，甲烷排放通量和土壤温度之间也有明显的正相关(图 3)，在不同的生长期中，甲烷排放通量也呈现明显的季节性波动，但不像杭州地区那样有几个明显的峰值期，在水稻移栽初期，甲烷通量最小，随着水稻生长，其排放逐渐增加，5月中旬达到平均水平，7月下旬达到最大值，以后随着水稻成熟排放量又下降，收割时达到最低点，这种变化模型显然和在杭州的有较大的差别，这正说明了影响稻田 CH_4 排放因素的复杂性和对全国各典型水稻生产区分别进行系统观测的必要性。

在乐山观测的稻田 CH_4 排放率还有很明显的年际变化，这主要与当地的气候变化

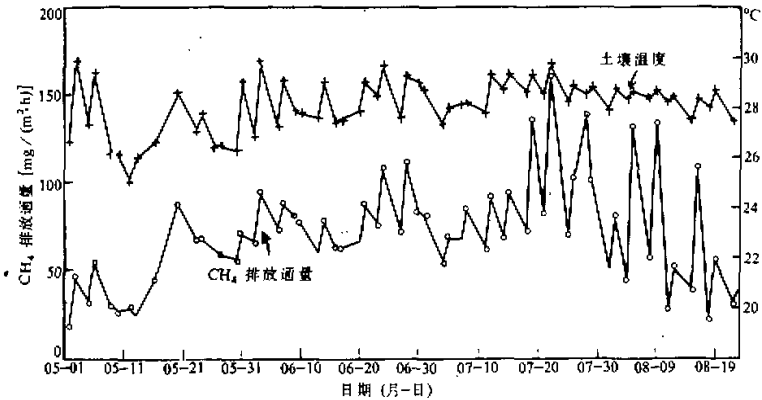


图 3 甲烷排放通量及其与土壤温度的关系

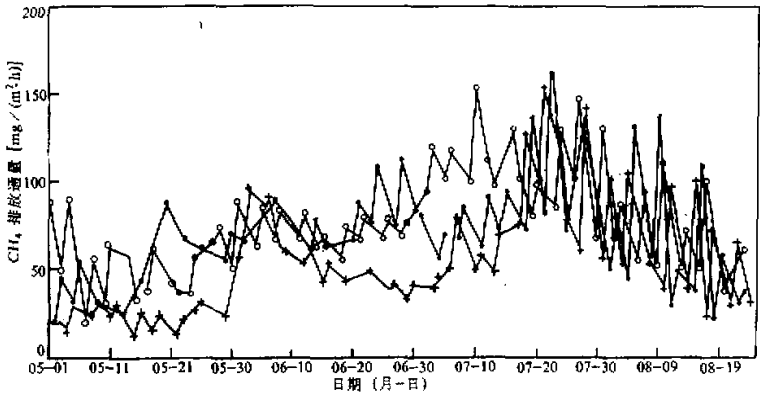


图 4 甲烷排放率通量的年际变化

“·” 1988，“+” 1989，“○” 1990

有关。1989 年四川夏季气温偏低，本年度观测的 CH_4 排放率也低(图 4)。同一地区同一时间稻田 CH_4 排放率还因水稻品种不同而明显不同。一般来说杂交水稻稻田的 CH_4 排放率要比普通水稻高。

因此，要正确估计全国稻田 CH_4 排放总量，必须在五类主要水稻产区选择代表性田块进行至少三年连续系统观测。

综上所述，我们在杭州及乐山稻田的观测结果与以前文献报道的在美国、欧洲的观测结果比较，除了 CH_4 排放通量的日变化和季节变化规律不同外，中国稻田 CH_4 排放的季平均量也要高得多。其中以在乐山土主乡观测到的最高(虽然这里土壤的有机质含量比杭州的低)。但是，我们实测的结果仍低于国外学者根据温带的观测和温度依赖关系推测的亚洲稻田甲烷排放。总结 1987—1989 年杭州观测结果我们得到：早稻田 CH_4 平均排放通量为 $7.8 \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ ，晚稻田甲烷平均排放通量为 $28.6 \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ ；总结 1988—1990 年乐山的观测，我们得到单季稻 CH_4 排放率为 $60 \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$ ，相应的年排放量分别为 $16.2 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$ ， $75.9 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$ 及 $216 \text{ g}/(\text{m}^2 \cdot \text{a})$ 。但是，应当特别注意，稻田 CH_4 排放率的日变化和季节变化幅度很大。这种变化主要取决于土壤类型、水稻植物体的变化及当地气象因素变化等。通过平均排放率计算全年排放总量时应当特别小心。

根据我们现有的观测结果估计中国稻田的 CH_4 排放总量可能达到 $(17 \pm 2) \times 10^{12} \text{ g/a}$ 。

在 1949—1988 年的 40 年间，中国稻米产量增加了将近 3 倍，但水稻播种面积增加不到 30%。自 1984 年起水稻播种面积已大体稳定在 4.9 亿亩左右，不再明显增加，受土地和水资源的限制，估计中国稻田播种面积在未来几十年里不会有大的变化。因此，中国稻田 CH_4 排放量也不会明显增加。

2. 反刍家畜甲烷排放估计

在动物的大肠和复胃动物(反刍动物)的瘤胃中终生寄生着多种微生物，在厌氧条件下，它们发酵动物消化道中的食物，从中摄取有机物质和能量维持群体的繁衍。

动物消化道中微生物发酵过程产生许多微量气体。在单胃动物(猪、鸡等)体内，这部分气体所损失的能量较少，气体产量也很少，一般可忽略不计。在反刍动物(牛、羊、骆驼等)体内，瘤胃犹如一个稳恒的连续发酵器，连续不断地消耗和消化动物食入的饲料。一般，在采食后，牛、羊瘤胃中气体的组成大约为： CO_2 占 40%， CH_4 占 30%—40%， H_2 占 5%， O_2 和 N_2 少量。瘤胃中甲烷的产生量占整个消化道产量的 87%，几乎全部由反刍时排出，肺和小肠只排出一小部分。

牛、羊甲烷的产生量进食后最大，牛可能超过 30 L/h ，羊可达 6 L/h ，随着进食后时间延长，产量越来越低，绝食时很微量。平均说来，每头牛每天可产生 154 L 甲烷，每只羊每天可产生 30 L 甲烷，呼出气中， CO_2 的含量约为 0.5%—3.0%，甲烷 0.03%—0.3%。

1988 年全国牛存栏 9752.525 万头(含约 50 万头骆驼)，全年可排放甲烷 54819 亿升；羊存栏 20133.62 万只；全年可排放甲烷 22046 亿升，两项合计 76865 亿升。据测定，动物排放的甲烷比重为 0.71682 g/L ，因此 1988 年全国牛、羊及骆驼等主要反刍家畜

甲烷排放量为 $5.5 \times 10^{12} \text{g/a}$ 。

根据农业部门预测^[6]，10—20年内我国牛存栏数将发展到14705万头，羊32730万只，加上50万头骆驼。到21世纪初我国反刍家畜的甲烷排放将可能达到 $8.5 \times 10^{12} \text{g/a}$ ，增加54%。

3. 工业 CH_4 排放量的估计

我国工业排放甲烷的主要来源是煤矿、石油、天然气矿的泄漏。对于石油、天然气矿的泄漏至今尚无观测资料，无法估计其向大气排放的 CH_4 量。对于煤矿的 CH_4 排放量是根据煤矿瓦斯排空量推算的，数据准确性也很差。

我国煤矿分为统配煤矿、地方煤矿和个体小煤矿，后两者监测手段不完备，且数据无法统计，因此在统计煤矿瓦斯排放时只有通过统配煤矿的绝对瓦斯涌出量和相对瓦斯涌出量等有关数据进行推算。排入大气中的瓦斯量是由统计的瓦斯涌出量和抽放瓦斯中未被利用的部分之和得出的。瓦斯的 CH_4 含量监测资料不多，根据有限的观测资料，抽放瓦斯 CH_4 含量为30%—90%，但 CH_4 含量为30%以上的抽放瓦斯均被利用，排放到大气中的瓦斯 CH_4 含量低于30%，而矿井通风的回流风中瓦斯 CH_4 含量更低，可忽略不计。根据这样的估计，1989年全国煤矿排入大气中的瓦斯 CH_4 含量为 $6.08 \times 10^{12} \text{g/a}$ 。

假如单位煤产量向大气排放的 CH_4 量保持不变，则2000年全国煤产量达到14亿吨时，煤矿 CH_4 排放量可达 $8 \times 10^{12} \text{g/a}$ 。

4. 沼气池泄漏和农村肥料处理

中国西南地区广大农村广泛应用沼气池，由农业废弃物产生沼气供炊事和取暖用。沼气池包括三个部分，其主要部分是4—10m³的圆柱形密封发酵池，它的一侧是人畜粪尿入口，与厕所和猪圈相通，人畜粪尿直接通过这里进入发酵池。另一侧有水池与中央发酵池相通。水池保持一定量的水来保证发酵池上方空气有一定压力，并保证发酵池底部的有机物始终被水淹没。除了人畜粪尿直接进入发酵池外，每年一次或两次从发酵池上边的入口处将残渣彻底清除（残渣是优质农家肥），然后加入几百公斤稻草。这个入口用一锥形水泥混凝土盖盖住。周围用粘土密封，盖上注水以保持粘土湿润来达到密封的目的。气管穿过混凝土盖中央将发酵池中产生的沼气引入住室使用。处在发酵池底部的稻草和人畜粪尿上方总保持一定深度的水，这些有机物便在厌氧环境发酵产生沼气，通过气泡直接送到发酵池上边，并使发酵池上边气压高于大气压（约高 $(10—40) \times 98.06375 \text{Pa}$ ），这样发酵池上部积累的沼气便可通过管道自动送到燃烧器。

沼气池使用过程中有3个地方会造成 CH_4 泄漏，一是发酵池上方入口处密封不好时；二是侧面水池与大气的自由交换，侧面水池的水与发酵池的水是相通的，它是对 CH_4 过饱和的，水池上有盖，但不密封， CH_4 将由此排向大气，第三种可能的泄漏是沼气使用时不完全燃烧。我们于1985年春夏之交和1987年夏秋之交在四川成都郊区选择10个不同类型的沼气池对上述3个泄漏点进行系统观测。观测方法类似稻田 CH_4 。

排放的箱技术^[7]。这里使用的箱是一个体积不定的大塑料袋，将塑料袋密封在泄漏点上后开始计时，并注入一定量的浓度已知的示踪气体 CF₃Br，轻轻摇动塑料袋使其内部气体均匀混合，然后每隔 5 分钟抽取一个 0.8L 的空气样品，每次取 4 个样品，并取一个环境空气样品。样品用气相色谱仪分析出 CH₄ 和 CF₃Br 的浓度，由示踪气体浓度随时间的变化可以计算出塑料袋的实际有效体积。塑料袋中示踪气体浓度随时间的变化由下式给出：

$$N_0 C_T(t) V = S e^{-t/\tau}, \quad (1)$$

其中 $C_T(t)$ 是 t 时刻取的样品中示踪气体的浓度，单位是体积混合比， S 是实验开始时注入塑料袋中的示踪气体总量，单位为个分子， V 是塑料袋的有效体积， τ 是气体在气袋中的平均停留时间，用来订正塑料袋与泄漏口之间密封不良造成的误差， N_0 是阿伏加德罗数。对(1)式取对数，得

$$\ln C_T(t) = \ln (S/N_0 V) - t/\tau. \quad (2)$$

利用不同时刻样品中的 $C_T(t)$ ，很容易根据(2)式用最小二乘法求出 V 和 τ 。

求出 V 和 τ 后就可根据测量的不同时刻样品中的 CH₄ 浓度求出泄漏点的 CH₄ 泄漏速率。气袋中的 CH₄ 浓度变化率可表示为

$$dC_g/dt = F_{in} - F_{out}, \quad (3)$$

其中 F_{in} 是气袋包围的泄漏点的 CH₄ 泄漏通量， F_{out} 是漏出气袋的 CH₄ 输送通量(包括密封不好和采进样品的损失)， C_g 是气袋内 CH₄ 的分子浓度，单位是单位体积中的 CH₄ 分子数。

$$C_g = C(t) V N_0, \quad (4)$$

其中 $C(t)$ 是样品空气中 CH₄ 的体积混合比，单位是 pptv，

$$F_{out} = (1/\tau) C_g. \quad (5)$$

因此，我们有

$$C(t) V N_0 = F_{in} \tau (1 - e^{-t/\tau}) + C(0) e^{-t/\tau} V N_0, \quad (6)$$

其中 $C(0)$ 是实验开始时环境空气样品中 CH₄ 的体积混合比，利用(6)式和测量的不同时刻的 CH₄ 混合比可用最小二乘法求出 CH₄ 的泄漏率 F_{in} 。

综合两年对不同沼气池的实验结果我们得到：沼气池 CH₄ 泄漏主要通过侧面的水池，发酵池上面的孔泄漏较小，沼气使用时不完全燃烧造成的泄漏等于零(表 2)。

表 2 沼气池 CH₄ 泄漏多次实验结果综合

泄漏地点	单池最小通量 (mg/h)	单池最高通量 (mg/h)	单池平均通量 (mg/h)	实验次数
发酵池上方孔	1.5	170	11	50
侧边水池	56	146	87	50
用户	0	0	0	5
合计	60	320	98	

总起来说，尽管沼气池 CH₄ 泄漏量变化范围很大，但其绝对值很小，即使用我们测量的最大泄漏量乘我国在用的 1 千万个沼气池，沼气池 CH₄ 泄漏总量也只有 0.03×10^{12} g/a，以平均值计算，泄漏总量为 0.01×10^{12} g/a，与其它源比较起来可以忽略不计。

但是,由沼气池我们想到了另一个重要的 CH_4 排放源,即农村的肥料处理.中国广大农村广泛使用堆肥,即农业废弃物和人、畜粪尿,这些农家肥在使用前一般要经过发酵处理以增加肥效和减少作物病虫害,进行这种发酵处理的堆肥场的环境有些类似于沼气池的发酵池.因此,这一过程将有 CH_4 产生,而产生的 CH_4 未被收集利用,直接全部排放到大气中.对这类排放源尚未进行任何实际观测.我们根据四川省沼气研究所提供的每户农户的农业废弃物和人畜粪便所能产生的沼气和农业年鉴提供的全国农户总数,并假定堆肥处理场的 CH_4 产率是沼气池的 10%,粗略估算堆肥场的 CH_4 年排放总量为:

$$F = 0.1GP\rho\eta = 0.1 \times 300 \times 1.9 \times 10^8 \times 0.71 \times 10^3 \times 0.8 = 3.2 \times 10^{12} \text{g/a}, \quad (7)$$

其中 $G = 300 \text{ m}^3/\text{a}$ 是每个农户年平均沼气产量, $P = 1.9 \times 10^8$ 是 1988 年全国农户总数, $\rho = 0.71 \text{ kg/m}^3$ 是 CH_4 平均密度, $\eta = 80\%$ 是沼气中的 CH_4 含量.

应当指出,这一估计数字的准确性很差,主要是因为堆肥场的环境条件千差万别,肥料发酵时间也相差很大,我们这里使用的每个农户的沼气产量和堆肥场的效率因子都只是很粗的估计值.尽管如此,中国农村堆肥场是 CH_4 的重要来源却是肯定的,值得对其进行认真研究.

5. 城镇 CH_4 排放

城镇的 CH_4 排放源主要是垃圾处理和污水处理系统.中国很多城镇仍然保留着大量化粪池,这类化粪池与农村堆肥场情况类似,可能是中国城镇的主要 CH_4 排放源.这类源排放面积大,排放率低,而且条件差别大,很难用直接测量来推算其排放总量.我们通过对城镇大气,稻田周围大气及干净背景大气中的 CH_4 浓度比较,用稻田的 CH_4 排放率间接推算城镇的 CH_4 排放率.

我们在 1985—1987 年在我国西北沙漠地区对大气 CH_4 的浓度进行了三年连续观测,我们把此浓度认为是中国的大气 CH_4 本底浓度(表 3),与此同时我们对北京的大气 CH_4 浓度进行了同步观测,认为其平均浓度超出本底浓度的部分是北京自身 CH_4 排放造成的(忽略城镇间的交换).我们在四川乐山进行稻田 CH_4 排放率测量时同时测量了田边大气中 CH_4 的浓度,通过这一测量我们把大气 CH_4 浓度与地面源排放率联系起来.我们假定稻田 CH_4 排放率与田边大气 CH_4 浓度和大气 CH_4 本底浓度之差的比值和北京地面 CH_4 排放率与北京大气 CH_4 浓度和大气 CH_4 本底浓度之差的比相同,即

$$(C_r - C_0)/F_r = (C_b - C_0)/F_b, \quad (8)$$

其中 C_r 是稻田附近大气 CH_4 浓度, C_0 为大气 CH_4 本底浓度, F_r 为稻田 CH_4 平均排放率, C_b 为北京大气 CH_4 浓度, F_b 为北京的 CH_4 排放率.根据表 3 列出的大气 CH_4 浓度测量结果,及前面提供的四川土主稻田 CH_4 排放率,我们得到北京的 CH_4 排放率为 $5.2 \text{ mg}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$,我们用下式将这一结果外推到全国:

$$F_t = F_b A_b P_t / P_b, \quad (9)$$

其中 F_t 是全国城镇的 CH_4 总排放率, A_b 为北京市城镇地区面积, P_t 是全国城镇人口总数, P_b 为北京市城镇人口总数,根据农业年鉴提供的有关数据,我们得到全国城镇的 CH_4 总排放率为 $0.6 \times 10^{12} \text{g/a}$.

表3 测量的不同地点大气CH₄浓度值(ppbv)

地 点	北 京	四川土主	甘肃民勤	成 都	圣路易斯
平均浓度上限	1833	2864	1739	2009	1812
平均浓度下限	1807	2593	1731	1739	1806
平均浓度	1820	2725	1735	1870	1809

应当承认这一估计数字可能只有量级的意义。由于稻田附近和北京市区大气结构和大气扩散输送能力差别较大，(8)式并不严格成立。另一方面用(9)式将北京结果推广到全国也有很大的误差，因为城镇面积与人口之比的全国平均值可能与北京市有很大不同，城镇气候条件和大气输送情况的不同也会造成不同的结果。

三、中国 CH₄ 排放总量及未来变化趋势

综上所述，我国主要 CH₄ 源的排放总量及未来变化趋势如表4所示。

表4 中国主要CH₄源的排放总量及未来变化趋势

源	排放总量 (10 ¹² g/a)	
	1988 年	2000 年
稻田	17±2	17±2
家畜	5.5	8.5
煤矿	6.1	8.0
天然湿地	2.2	2.2
农村堆肥	3.2	3.2
城镇	0.6	0.6
总计	35±10	40±10

如表4所示，中国的CH₄排放源主要是稻田CH₄的排放，约占全国CH₄总排放量的一半。由于土地资源的限制，中国稻田面积在未来几十年将不会有大幅度增加，人口增加对粮食的需求将不得不主要靠增加单位面积产量来解决。中国未来CH₄排放量增加的原因主要是煤矿和石油、天然气矿以及家畜排放增加。如果按目前的生产发展计划而不考虑CH₄排放的控制措施，中国的CH₄排放总量可能由1988年的35×10¹²g/a增加到2000年的40×10¹²g/a。但是，我国减少CH₄排放的潜力很大，如果我们能在长江以南广大地区推广沼气池代替堆肥处理场，稻田由施堆肥变成施沼气池残渣，则把全国CH₄排放总量降到35×10¹²g/a以下是不困难的。

参 考 文 献

- [1] Chen Hongzhou, 1981, Geographical Distribution of Paddy Soils in China, in: *Proceedings of the Symposium on Paddy Soil*, Institute of Soil Sciences, Chinese Academy of Sciences (ed.), Science Press, 101—107.
- [2] Xu Qi, 1981, Cropping System in relation to fertility of Paddy Soils in China, in: *Proceedings of the Symposium on Paddy Soil*, Institute of Soil Sciences, Chinese Academy of Sciences (ed.), Science Press, 2—100.

- [3] 戴爱国、王明星、沈壬兴, H. Schutz, W. Seiler, H. Rennenberg、吴海宝, 1991, 我国杭州地区秋季稻田的甲烷排放, 大气科学, 15, No.1, 102—110.
- [4] Cicerone, R. J., Shetter, J. D., and Dilwiche, C. C., 1983, Seasonal variation of methane flux from a Californian rice paddy, *J. Geophys. Res.*, 88, 11022—11024.
- [5] Seiler, W., Holzapfel, P. A., Conrad, R., and Scharffe, D., 1984, Methane emission from rice paddies, *J. Atmos. Chem.*, 1, 241—268.
- [6] *China Agricultural Yearbook 1985*, Agricultural Publishing House, 1986.
- [7] Khalil M. A. K., Rasmussen R. A., Wang Mingxing and Ren Lixin, 1991, Methane emissions from rice fields in China, *Environmental Science and Technology*, 25, 979—981.

Sources of Methane in China: Rice Fields, Agricultural Waste Treatment, Cattle, Coal Mines, and Other Minor Sources

Wang Mingxing, Dai Aiguo, Huang Jun, Ren Lixin, Shen Renxing

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

Schutz H., Rennenberg H., Seiler W.

(*Fraunhofer Institute for Atmospheric Environment Research, FRG*)

Rasmussen R. A., Khalil M. A. K.

(*Oregon Graduate Center, USA*)

Abstract

Continuous measurements of the methane flux from rice fields were carried out by using chamber technique. The results show that the methane flux from rice fields has a strong diurnal variation, and that the day-mean flux has a large seasonal variation. Based on the experiments, we estimate that the total emission of methane from rice fields in China is (17 ± 2) t/yr. Methane leakage from biogas pits is very little on the whole, with a range of 61—490 mg/hr/pit. The total emission from biogas pits in China may be of the order of 0.01 t/yr. Total emissions of methane from cattle in China are estimated to be 5.5 t/yr. Coal and oil mining may emit 6 t methane per year. Emissions from natural wetland in China are estimated to be about 2 t/yr. There is an important source of methane in China that has not been measured. Agricultural waste in China is often treated in cesspools, which are similar to the biogas pits. However, no methane is recovered from such cesspools. We estimate that the total flux of methane from such sources may be of the order of 5 t/yr. The total emissions of methane from sources in China are estimated to be about 35 ± 5 t/yr.

Key words: Methane; Rice field; Methane pool; China.