杨文武,彭 婷,吴 莹,等.基于大气浓度观测的区域尺度稻田 CH_4 排放量反演 [J]. 中国环境科学, 2026,46(3):1298-1309.
Yang W W, Peng T, Wu Y, et al. Regional scale inversion of CH_4 emissions from rice paddies based on atmospheric concentration observations [J]. China Environmental Science, 2026,46(3):1298-1309.

基于大气浓度观测的区域尺度稻田 CH_4 排放量反演

杨文武[1],彭 婷[1],吴 莹[1],王玉祥[1],朱 俊[1],赵美玲[1],张艺凡[2],史雪静[2],肖 薇[3],胡 诚[2,3*] (1.江苏省泰州环境监测中心,江苏 泰州 225300；2.南京林业大学生态与环境学院,江苏 南京 210018；3.南京信息工程大学,中国气象局生态系统碳源汇重点开放实验室大气环境中心,江苏 南京 210044)

摘要：选取我国水稻主产区之一的江苏为研究区域,在位于江苏中部的泰州市建立 50m 高度的高精度大气 CH_4 浓度观测系统,并选取覆盖当地水稻种植期的 2023 年 5 月 20 日~10 月 31 日为研究时段,通过耦合大气传输模型和优化的反演方法,在 10d(旬)尺度上开展了稻田 CH_4 通量反演.结果表明,(1)基于自下而上方法的 EDGAR 先验排放清单没有明显的稻田 CH_4 通量时间变化特征,且不存在 CH_4 排放峰值,这与江苏省稻田 CH_4 排放在 7~8 月分蘖-孕穗期达到峰值不符,需要基于 CH_4 浓度观测进行订正和反演.(2)基于高塔浓度观测的反演结果表明,无论是泰州市还是江苏省,在 8 月上、中旬 CH_4 排放出现了峰值,之后逐渐下降,且其峰值分别达到了(966.6±104.6)和(1182.9±128.0) mg/(m^2·d),是反演前排放清单的(3.27±0.35)倍.(3)从 5 月下旬~10 月下旬整个研究时段内,泰州市和江苏省稻田 CH_4 的后验平均 CH_4 通量分别为(307.3±40.5)和(376.7±49.7)mg CH_4/(m^2·d),是先验清单的(1.37±0.18)倍,以上反演结果表明先验排放清单无论从时间变化还是总量上存在明显偏差.

关键词：稻田 CH_4 排放量；大气反演；高塔浓度观测；长三角区域
中图分类号：X51 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2026)03-1298-12

Regional scale inversion of CH_4 emissions from rice paddies based on atmospheric concentration observations. YANG Wen-wu[1], PENG Ting[1], WU Ying[1], WANG Yu-xiang[1], ZHU Jun[1], ZHAO Mei-ling[1], ZHANG Yi-fan[2], SHI Xue-jing[2], XIAO Wei[3], HU Cheng[2,3*] (1.Taizhou Environment Monitoring Center of Jiangsu Province, Taizhou 225300, China；2.College of Ecology and Environment, Nanjing Forestry University, Nanjing 210018, China；3.China Meteorological Administration Key Laboratory of Ecosystem Carbon Source and Sink, Center on Atmospheric Environment, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China). *China Environmental Science*, 2026,46(3)：1298~1309

Abstract：Jiangsu Province—one of China's major rice-producing regions—was selected as the research area. A high-precision CH_4 observation system was established at a height of 50m in Taizhou City, central Jiangsu, and the period from 20th May to 31st October 2023, covering the local rice-growing season, was used for analysis. Paddy CH_4 flux was retrieved at a 10d scale by coupling an atmospheric transport model with an optimized inversion framework. The main findings are as follows: (1) The "bottom-up" approach based EDGAR prior inventory exhibited neither distinct temporal variability nor emission peaks for paddy CH_4 fluxes, inconsistent with the observed peak emissions during the tillering-booting stage in July~August in Jiangsu, which should be constrained and calibrated by using atmospheric CH_4 observations. (2) Inversions revealed that both Taizhou City and Jiangsu Province experienced peak CH_4 emissions in early to mid-August, followed by a gradual decline. The peak fluxes reached (966.6 ± 104.6) mg/(m^2·d) and (1182.9 ± 128.0) mg/(m^2·d), respectively, which were (3.27 ± 0.35) times higher than the *prior* estimates. (3) Over the entire study period, the *posterior* mean paddy CH_4 flux for Taizhou and Jiangsu were (307.3 ± 40.5) mg CH_4/(m^2·d) and (376.7 ± 49.7) mg CH_4/(m^2·d), respectively, (1.37 ± 0.18) times the prior values. These results indicate that the prior inventory substantially underestimated both the magnitude and temporal variation of paddy CH_4 emissions.

Key words：rice paddy CH_4 emissions；atmospheric inversion；tower-based concentration observation；Yangtze River Delta region

收稿日期：2025-08-10
基金项目：国家自然科学基金资助项目(42475125,42105117);江苏省碳达峰碳中和科技创新专项资金(前沿基础)资助项目(BK20220020);江苏省杰出青年基金资助项目(BK20220055);江苏省"333 人才"领军型人才团队项目(BRA2022023);中国气象局生态系统碳源汇重点开放实验室资助项目(ECSS-CMA202403);江苏省泰州环境监测中心 2023 年生态环境监测科研基金项目"泰州市大气 $PM_{2.5}$ 和 O_3 复合污染特征分析"(2304)
* 责任作者, 副教授, chenghu@njfu.edu.cn

甲烷(CH_4)是仅次于二氧化碳(CO_2)的第二大人为温室气体,贡献了全球辐射强迫的 20%~25%[1].基于全球大气 CH_4 浓度观测的结果表明,其浓度在2025 年已上升到 1930×10^{-9}.而近 20a 内大气 CH_4 浓度年增加幅度在 $0.33\sim17.68\times10^{-9}$/a 间波动,展现了巨大年际差异及偏离预期估算的结果,并直接表明当前对 CH_4 排放源、汇量的估算存在较大偏差及对其驱动机制的认知依旧不明晰.区域尺度($10^2\sim10^6km^2$)包含城市及省级区域,被作为准确核算国家尺度 CH_4 总排放的重要节点[2-3].因此,对区域尺度 CH_4 排放源的准确核算,是各国制定碳减排政策的关键数据支撑.中国是全球最大的人为 CH_4 排放国,随着我国于 2023 年底签署《甲烷排放控制行动方案》,并制定 CH_4 排放量的减排及缓解气候变化政策,对我国区域尺度 CH_4 排放量开展准确核算及建立监测方法,已成为量化我温室气体总排放及实施“双碳”战略的关键一环.

从组分构成可将 CH_4 排放源分为人为源和自然源两大类,其中人为源主要包括煤炭开采、畜牧养殖、稻田种植和垃圾处理过程(包含固废填埋和污水处理)等人为活动导致的类别;而自然源则包括自然湿地、湖泊、河流等生态系统[4-5].而由于稻田和垃圾处理等主要排放源受到微生物活动和人为管理等共同影响,因此显示出受下垫面差异、气候因子等不同生物物理因子主导的高时空差异性,及排放量估算的极大不确定性[6-8].虽然前人在我国已采用大量基于站点观测的方法,在不同下垫面开展了站点尺度的 CH_4 排放量的观测并积累了丰富的实验数据,如涡度相关方法、箱试法、水平衡法等[9-10].但由于以上影响因子呈现时空分布的高度异质性,如土壤碳氮含量、含水量、人为管理措施及温度、降水等气候特征等[11-12],导致从站点尺度进行空间上推到区域尺度仍存在很大的不确定性,这也是当前估算区域尺度 CH_4 排放量的最大难点.

稻田是我国仅次于畜牧养殖的第二大农业排放源,占我国总排放量的 13.7%[13].稻田 CH_4 排放由于受水稻类型、水肥管理方式(如有机质添加量、播种和收获时间、农田水位管理等)等影响,大量观测结果表明即便同一种水稻类型其排放因子也差异 10 倍($0.1\sim1.4g/(m^2\cdot d)$).这导致区域尺度稻田 CH_4 排放量时空分布特征的准确量化依旧存在很大不确定性[14-16].如基于排放清单方法和站点尺度观测的排放因子,计算的我国稻田 CH_4 年总排放量为 5.3~13.9Tg,其不确定性为 250%[17].如上所述,由于稻田 CH_4 排放受到以上多重自然和人为因子共同驱动,且在站点尺度具有高观测成本和时空异质性,无法对区域尺度中所包含的任意空间点位开展繁复的观测,进而直接导致若开展从单观测站点到包含所有空间异质区的尺度上推,将带来极大误差.

相对于站点尺度的直接观测,当前对区域尺度 CH_4 排放的核算主要包括基于“自下而上”原理的排放清单和“自上而下”原理的大气反演方法.其中排放清单主要依托于活动数据和排放因子,活动数据来自于统计部门,而排放因子则主要采用基于站点观测的计算结果,并未进行本地化及时空分布上的校正,因此被认为排放清单方法不确定性的最主要来源.基于大气(如高塔和卫星等)CH_4 浓度观测和大气传输模型的反演算法,能为排放清单方法提供独立的验证与评估[16-17].而其中以高塔 CH_4 浓度观测为代表,具有空间代表性强、观测时间连续、可对目标区域开展全天候的观测等优点,近几年被广泛应用于温室气体排放量的核算中[15,18-19].然而,鲜有研究基于高塔大气 CH_4 浓度观测对我国稻田 CH_4 排放进行反演和评估[20].此外,传统的大气反演方法需要结合复杂的反演算法及提供关键参数的不确定性范围,这阻碍了在不同地区和部门的有效推广.因此,基于简化且具有可推广性的排放量反演方法,则具有更广泛的实际应用意义.

长三角区域是我国经济和城市化发展最发达的地区之一,也是我国水稻种植的主产区之一,是我国稻田 CH_4 高排放区[21-22].本研究拟选择长三角区域的江苏省为研究对象,通过开展基于高塔的大气 CH_4 浓度观测,结合大气传输模型评估全生育期的稻田 CH_4 排放量,评估和降低排放清单方法在区域尺度 CH_4 排放估算上的不确定性,旨在为准确计算区域尺度 CH_4 总排放及其组分提供数据支持.

1　材料和方法

1.1　大气 CH_4 浓度观测

大气 CH_4 浓度观测系统(119°56′E, 32°19′N)位于江苏省泰州市,从 2023 年 5 月 20 日开始观测至今(图 1).观测系统依托于 55m 高的高塔,进气口位于离

地面 50m 高度且通过气路连接与地面机房的分析仪进行抽气和测量.大气 CH_4 浓度的观测是基于北京唯思德科技有限公司的 CH_4 浓度分析仪(GGA-311 型号),该系统采用离轴积分腔输出光谱技术(Off-axis Integrated Cavity Output Spectroscopy),且为了降低大气水汽浓度波动对CH_4浓度观测准确性的影响,在仪器测量前气路通过冷井冷凝除水.此外,为获取高精度的 CH_4 浓度观测结果,浓度标定系统每 12h 连通 3 个不同梯度的CH_4标气进行测量,每次通标气时间为 5min.本研究所使用的浓度为基于 3 个梯度校正后的大气 CH_4 小时浓度,其观测准确性在 2×10^{-9} 以内.由于本研究主要关注位于长三角的稻田 CH_4 排放量变化及对浓度的影响,因此基于前期文献调研,将当地水稻种植时段定义为 6 月初~11 月初.考虑到水稻成熟收割前 1 周放干田水导致CH_4排放可忽略不计,因此选取观测时段从开始观测的 2023 年 5 月 20 日~2023 年 10 月 31 日.

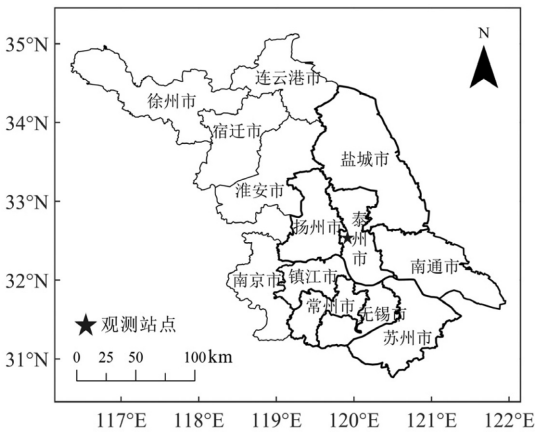


图 1 50m 高度大气 CH_4 观测高塔站点位置及江苏省各市

Fig.1 Locations of 50m CH_4 observation towers (black triangles) and cities in Jiangsu Province

粗黑线边界为与泰州接壤城市,细黑线边界为非接壤城市

此外,为在模型中提供不同风向的 CH_4 浓度背景值,本研究选取位于模拟区域外围边界的 6 个国际 CH_4 浓度背景值观测站点,包括 UUM 站(外蒙古,44°27'N, 111°06'E),WLG 站(中国青海省,36°17'N, 100°54'E),DSI 站(中国台湾省的东沙岛,20°42'N, 116°44'E), LLN 站(中国台湾省的鹿林,23°28'N, 120°52'E), RYO 站(日本,39°02'N, 141°49'E)和 YON 站点(日本,24°28'N, 123°01'E).由于其中部分背景站点观测频率为每周,为得到适用于小时尺度的模型模拟 CH_4 背景值,本研究采用由美国国家海洋和大气管理局(NOAA)碳循环组开发的一种基于数字滤波曲线拟合算法(CCGCRV)生成以上 6 个背景站的小时 CH_4 浓度[23]

泰州市位于江苏省中部地区及长三角腹地,全市 2023 年稻田种植面积为 $1.87\times10^3km^2$,占全市总面积 32%;而其所在的江苏稻田种植面积为 $2.81\times10^4km^2$,占全省面积 26.2%.通过前期模型模拟发现江苏省稻田CH_4是观测站点浓度增加值的最重要来源,进一步表明在稻田生育期能观测其高排放对大气 CH_4 浓度的显著影响.而在长三角区域,尤其是江苏省水稻的种植时间在 6 月中下旬~10 月下旬,因此观测时段包含江苏水稻的完整生育期,且能监测到不同时段的稻田 CH_4 排放变化特征.

1.2 基于 WRF-STILT 模型的 CH_4 浓度模拟

1.2.1 WRF-STILT 参数设置及模型构建 基于项目团队在中国中东部其它区域的研究及真实大气 CH_4 浓度的构成[18-19,24],把大气 CH_4 浓度(CH_{4_model})分为背景值浓度($CH_{4_background}$)和区域源、汇贡献(即浓度增加值 enhancement,公式 1).其中 $CH_{4_background}$ 的获取是根据追踪 WRF-STILT 模型模拟的粒子扩散来源,选择最靠近的 CH_4 背景站作为其背景值浓度;而后者CH_4浓度增加值 enhancement 由大气传输过程模型模拟的足迹贡献源区(footprint)和研究区域内的 CH_4 排放源汇(E_{CH4})两者综合贡献,i 为任何时刻 CH_4 浓度模拟的过去积分小时数,本研究采用 7d,因此浓度增加值代表从当前到过去 168h 内任意小时大气流经任何区域的源、汇项对其浓度的累计贡献,考虑到模拟时段只有 7d,因此与之前研究相同,认为大气中 OH 离子导致的CH_4汇相对于排放源可以忽略.

$$CH_{4_model} = CH_{4_background} + \sum_{i=1}^{168} footprint_i \cdot (E_{CH_4})_i \quad (1)$$

其中浓度贡献源区 footprint 由 STILT (Stochastic Time-Inverted Lagrangian Transport)模型在高时空分辨率的气象场驱动下模拟,气象驱动场来自 WRF (Weather Research and Forecasting, 4.2.2 版本)中尺度数值天气预报模型.本研究中 WRF 模型采用双层嵌套,最外层(Domain 1,空间分辨率 27km)覆盖亚洲东部地区,最内层(Domain 2,空间分辨率为 9km)覆盖中国中部和东部大部分地区,物理参数化方案与之前在长三角的研究一致,对于模拟

区域的设置详见 Hu 等[19].

在 WRF 气象场的驱动下,STILT 模型通过释放粒子(本研究选取 500 个)并追踪所在模拟区域的位置和边界层内的停留时间来计算观测站点的浓度贡献源区 footprint,其代表模拟区域内任何网格任何区域源、汇对观测点位浓度的潜在贡献,本研究 STILT 模型对 footprint 的模拟区域为 106°E~124°E, 20°N−40°N;空间分辨率为 0.1°,做到了和模型所使用 CH_4 排放量的匹配.由于大气 CH_4 浓度包含所有区域所有排放源组分的共同影响,为区分不同区域和 CH_4 排放源的贡献,将进一步拆分模拟,并量化和分析模拟区域江苏省内各市、长三角各省尺度和主要 CH_4 类别的贡献.

1.2.2　先验人为源和自然源 CH_4 排放量　模型所使用的 CH_4 排放源包括人为源和自然源,其中人为源来自于 EDGAR (Emissions Database for Global Atmospheric Research,版本 v8.1),EDGAR 提供全球尺度 0.1°网格分辨率的不同人为排放源类别,主要包括农业土壤(AGS,在本研究主要是代表稻田)、垃圾处理(WWT,包括固废填埋和污水处理)、居民区燃气泄露(RCO)及其它多个类别.湿地自然源来自于 LPJ−wsl 模型模拟的排放产品,该湿地模型由 MERRA 和 CRU 两种气象场驱动,本研究用两者平均作为自然源 CH_4 排放,空间分辨率为 0.5°[25].人为源和自然源时间分辨率都是月平均.

1.3　稻田 CH_4 排放量反演方案

通过前期分析,得到稻田和垃圾处理 CH_4 排放是泰州市和江苏省主要排放源,两者之和达到总排放的 85%,且占比分别接近 50%和 35%.因此基于稻田的高占比,观测站点的 CH_4 浓度变化将显著捕捉稻田 CH_4 排放的强烈影响.本研究采用乘法比例因子法[26-27],进行稻田 CH_4 排放量及其时间变化的反演,该方法如方程(2)所示,

$$\mathrm{SF}(E_{\mathrm{rice_paddy}}) = \frac{\mathrm{CH_{4_obs}} - \mathrm{CH_{4_background}} - \Delta\mathrm{CH_{4_others}}}{\Delta\mathrm{CH_{4_rice_paddy}}} \quad (2)$$

式中:$\mathrm{SF}(E_{\mathrm{rice_paddy}})$为稻田 CH_4 排放量的校正系数;$\mathrm{CH_{4_obs}}$,$\mathrm{CH_{4_background}}$,$\Delta\mathrm{CH_{4_others}}$,和 $\Delta\mathrm{CH_{4_rice_paddy}}$ 分别为观测到的大气 CH_4 浓度,背景值浓度,模型模拟的除稻田外的其它类别 CH_4 浓度增加值,以及模型模拟的稻田 CH_4 浓度增加值.需要指出的是以上方法需要考虑不同组分的不确定性和月变化对稻田 CH_4 排放量校正系数的影响;其中垃圾处理和湿地 CH_4 排放是重要的组分,且属于微生物过程主导的排放类别,并具有显著的温度敏感性.基于模型模拟的湿地 CH_4 通量已存在显著的月变化特征;而 EDGAR 排放清单的垃圾处理过程没有月变化,这与真实情况不符,需要进行排放量订正.团队前期基于贝叶斯方法的反演结果表明江苏和浙江垃圾处理过程 CH_4 年总排放量是排放清单的 65%[19],且垃圾处理 CH_4 排放因子具有显著的温度敏感性,即温度上升 10℃其排放量增加 30%;而除垃圾处理和稻田之外的其它排放源具有较低的占比和较高的准确性(偏差约 10%),因此基于以上校正方案可首先对公式(1)中垃圾处理过程的 CH_4 排放量进行订正,校正方程如公式(3)所示,

$$E_{\mathrm{waste_post}} = 0.65 \times E_{\mathrm{waste_EDGAR}} \times (1 + \frac{T_i - T_{\mathrm{mean}}}{10} \times 30\%) \quad (3)$$

式中:$E_{\mathrm{waste_post}}$为基于温度校正后的月尺度垃圾处理产生的 CH_4 排放量;T_i 和 T_{mean} 分别为月平均和年平均 $T_{2\mathrm{m}}$ 温度;系数 0.65 为对江苏省垃圾处理过程 CH_4 年总排放量的订正;30%为垃圾处理过程的温度敏感性 Q_{10},意味着温度上升(或下降)10°C,其排放量增加(或降低)30%.为了计算公式(1)中大气传输过程、气象场的模拟、其它类别排放量的不确定性对稻田 CH_4 排放量反演的影响,采用蒙特卡洛方法计算获得水稻 CH_4 排放的不确定性,其中随机计算 10000 次,基于观测分析得到大气 CH_4 浓度、背景值浓度和其它源的不确定性分别为 0.1%、0.1%和 10%, WRF−STILT 模型模拟的 footprint 不确定性为 13%,且以上所有不确定性采取正态分布[24,28].

2　结果与讨论

2.1　基于 WRF−STILT 模型和先验排放清单的 CH_4 浓度模拟

2.1.1　不同类别先验 CH_4 排放对比　从图 2(a)可以看出,长三角尤其是江苏中南部分布较高的水稻种植区域,导致 CH_4 排放量在江苏中部和南部地区高于北部地区.而图 2(b)中,垃圾处理过程 CH_4 排放则主要分布在江苏中部、南部以及浙江的北部、上海等地区,这主要是在 EDGAR 等先验排放清单采用人口、经济和夜晚灯光数据进行空间降尺度,因此其显示出与经济和人口之间的高空间相似性.而湿地

除了在长江中游的鄱阳湖分布较高之外,在长三角内主要位于安徽和江苏省,尤其是围绕太湖流域周边区域,以及位于观测点的东北部和南部区域(图2(c)).其它类别的人为源则展示出高度异质化的空间分布,但相对于稻田和垃圾处理显示出相对较小的数值(图2(d)).通过分析以上CH_4排放量结果,表明稻田和垃圾处理CH_4排放将是主导观测点及长三角和江苏区域大气CH_4浓度的主要类别.

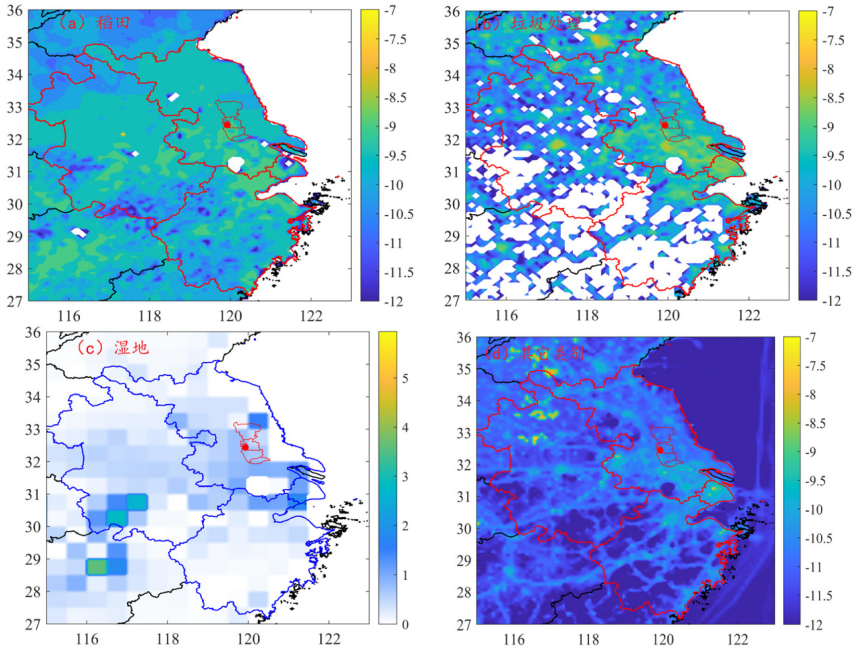


图2 整个研究时段6~10月平均的不同类别CH_4排放源的空间分布

Fig.2 Spatial distribution of different categories of CH_4 emission sources averaged over June~October for the entire study period

(a)稻田排放,lg[g/(m^2·s)], (b)垃圾处理过程排放,lg[g/(m^2·s)], (c)湿地排放,g/(m^2·month), (d)所有其它类别排放,lg[g/(m^2·s)];横刻度值单位为°E,纵刻度值单位为°N

本研究基于先验EDGAR清单和湿地CH_4模拟结果进一步计算了泰州市和江苏省CH_4排放量,其中泰州市6~10月CH_4总排放量为12.5×10^4t,稻田、垃圾处理、湿地和其它源分别为6.4×10^4t、4.2×10^4t、1.9×10^4t和0.2×10^4t,占全市CH_4总排放量51.1%、33.5%、15.2%和0.2%.而江苏省6~10月CH_4总排放量为193.5×10^4t,其中稻田、垃圾处理、湿地和其它源分别为93.4×10^4t、68.3×10^4t、20.9×10^4t和10.9×10^4t,所占比例分别为48.3%、35.3%、10.8%和5.6%.从泰州市和江苏省不同排放源所占总排放的比例可知,两者非常接近,这进一步表明泰州市观测到的CH_4浓度所推算出的校正系数同样适用于江苏全省.以上结果和Huang等[20]在安徽省全椒县开展的高塔CH_4观测与模拟结果接近,也进一步说明稻田是控制长三角各省CH_4排放的主要类别.需要指出的是,以上比例和排放仅是基于先验清单的结果,本文将进一步结合大气CH_4浓度观测和耦合大气传输模型进行稻田CH_4排放量的反演和校正.

2.1.2 基于WRF-STILT模型模拟的浓度贡献源区footprint 浓度贡献源区footprint的空间分布及时间变化能直接表明不同区域对观测点浓度的潜在贡献,本研究基于WRF-STILT模型模拟了2023年5月20日~10月31日的小时尺度浓度footprint.从图3可以看出,泰州本地和江苏全省的CH_4排放在整个研究时期都对观测站点有较大的贡献(高贡献区为图3显示的常用对数$\log_{10}$大于-3的区域内).其中6~8月footprint主要呈现东-西向分布,而9~10月则呈现东北-西南向分布,这主要是东部沿海盛行风向的季节变化导致的;在6~7月主要是东南季风控制,9~10月由东北风控制,而8月则是受两者交替影响.此外,footprint中黄色的区域同样是当地CH_4浓度的明显贡献源区.需要指出的是,footprint以$\log_{10}$的形式展示,因此在假设单位网格点CH_4通量一致

的基础上,footprint 在数值±1 的变化,在浓度贡献的差异上可以达到 10 倍.虽然强的浓度贡献源区 footprint 在空间上也同样覆盖海洋区域,但是海洋天然气开采泄露区域离观测站点超过 500km,使得海洋的 CH_4 通量相对于东部区域的陆地可以忽略;来自于海洋 CH_4 的背景值浓度相对于陆地上更低,因此也是造成我国东部地区在夏秋季CH_4浓度呈现周期性变化的重要因素.此外,在之前的研究中同样发现,夏季由于太阳辐射导致的边界层内对流加强以及边界层高度升高,也将显著降低单位网格的 footprint 值,进而将导致模拟的浓度增加值 enhancement 降低[18-19].

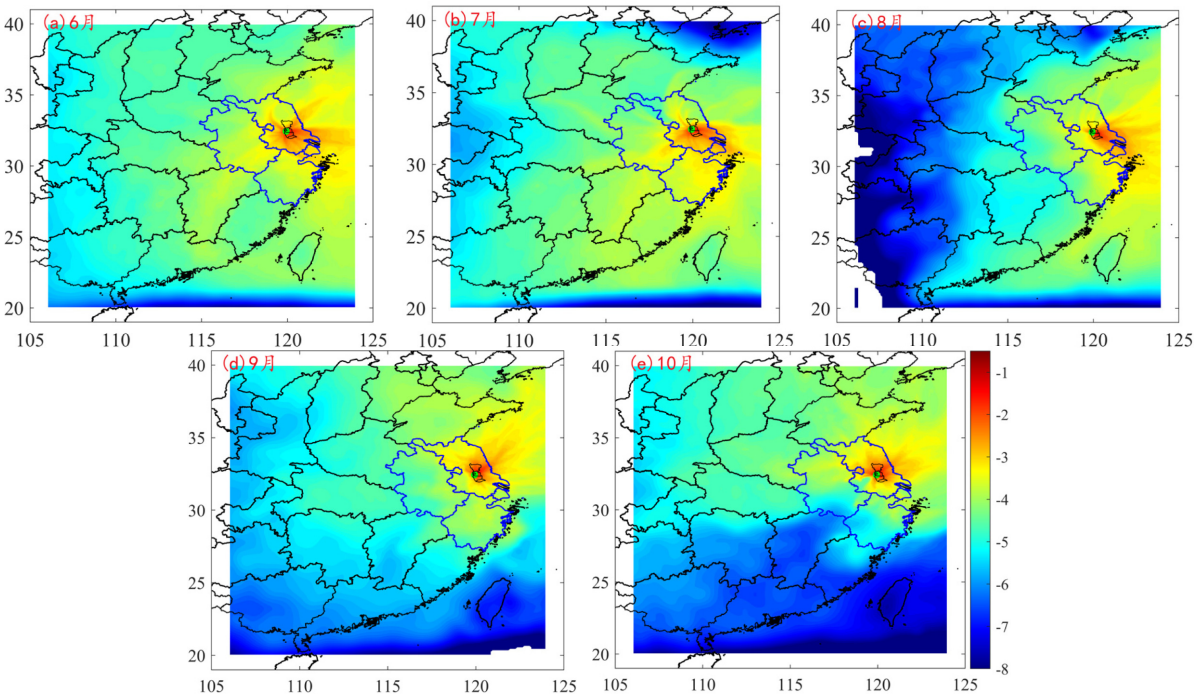


图 3　基于 WRF−STILT 模型模拟的浓度贡献源区 footprint 空间分布

Fig.3　Spatial distribution of monthly averaged footprint based on the WRF−STILT model

(a)2023 年 6 月, (b)2023 年 7 月, (c)2023 年 8 月, (d)2023 年 9 月, (e)2023 年 10 月.长三角边界用蓝色展示,泰州市边界已展示,观测站点用绿点展示,footprint 单位为 $\log_{10}(10^{-6}\cdot m^2\cdot s/mol)$;横刻度值单位为°E,纵刻度值单位为°N

2.1.3　基于高塔观测与 WRF−STILT 模型模拟的小时平均 CH_4 浓度对比　基于 WRF−STILT 模型和月尺度先验 EDGAR 排放清单及湿地 CH_4 通量模拟了小时尺度 CH_4 浓度、组分,并与高塔观测进行了对比,从图 4(a)中可以看出,整体上 CH_4 浓度模拟结果能与观测的小时变化趋势一致,说明 WRF−STILT 模拟对大气传输过程和浓度贡献源区 footprint 的有效模拟,整个模拟时段基于小时平均的相关系数(R),平均误差(MB)和均方根误差(RMSE)分别为 0.43,12.1×10^{-9} 和 242.7×10^{-9}.模拟和观测的日变化幅度在部分时间段出现了较大偏差,例如在 5~6 月模拟明显高于观测,而在 8 月 6 日~9 月 5 日,观测浓度出现了高值,但是模型却无法准确模拟,9 月 5 日以后观测和模拟出现了较高的一致性.在以上不同时段的不一致表明模型所使用的先验 CH_4 通量与真实结果存在较大差异.从图 4(b)可知,稻田和垃圾处理过程的 CH_4 排放是主导浓度变化的最主要因素,因此除了稻田 CH_4 排放存在潜在误差外,垃圾处理过程的 CH_4 排放由于无月变化特征,同样是导致以上观测和模拟 CH_4 浓度差异的重要因素;考虑到垃圾填埋和污水处理是基于微生物过程的排放源,具有高度的温度依赖性,因此模型使用的先验排放清单在不同温度下和真实排放存在偏差.此外,稻田和垃圾处理过程 CH_4 浓度贡献呈现高度一致的时间变化特征,这也直接表明传统的反演方法难以通过时间序列的波动将两者的排放量进行有效拆分和反演.

基于 WRF−STILT 模型和先验排放清单,本研究

进一步细化了不同CH_4排放源组分和区域对观测点CH_4浓度增加值的贡献,如表1和表2所示,其中养殖业等农业源由于占浓度总增加值比例较低,则被归为其它类别.

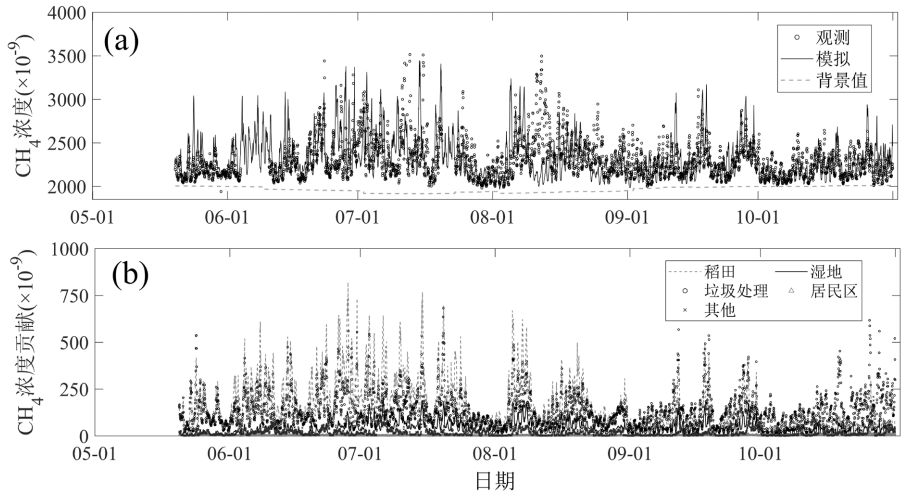


图4 CH_4浓度及其组分的时间序列变化

Fig.4 Time series of CH_4 concentration and components

(a)基于先验排放清单的 CH_4 小时模拟浓度和高塔观测结果的对比, (b)基于先验清单的不同浓度增加值组分的时间序列,分别为稻田、湿地、垃圾处理、居民使用泄露和其它所有类别

表1 基于先验排放清单模拟的不同排放源组分月平均浓度贡献($\times10^{-9}$)及其占总贡献比例

Table 1 Monthly average concentration contributions ($\times10^{-9}$) from different emission source categories simulated based on the *prior* emission inventory and their percentage shares of the total contribution

排放类别	6月	7月	8月	9月	10月
稻田	246.3 (54.0%)	230.6 (49.9%)	173.2 (48.2%)	111.2 (38.3%)	38.0 (17.7%)
垃圾处理	155.2 (34.0%)	147.0 (31.8%)	122.2 (34.0%)	119.3 (41.1%)	126.3 (58.7%)
湿地	30.9 (6.8%)	58.8 (12.7%)	47.5 (13.2%)	41.9 (14.5%)	25.9 (12.0%)
居民区	2.1 (0.5%)	1.6 (0.3%)	1.5 (0.4%)	2.6 (0.9%)	5.9 (2.8%)
其它	21.9 (4.8%)	24.0 (5.2%)	14.7 (4.1%)	15.1 (5.2%)	18.9 (8.8%)
总和	456.5	462.0	359.1	290.2	215.1

表1显示,6~10月先验的浓度增加值存在明显的月变化特征,这主要是由于CH_4排放源及大气传输过程和不同气象因子(尤其是边界层高度、温度、风速、风向等)共同影响,而其中的大气传输过程和所有气象因子的影响可由footprint模拟和表征.稻田CH_4排放在6~10月的浓度贡献分别为(246.3, 230.6,173.2,111.2,38.0)$\times10^{-9}$,占模拟CH_4总浓度增加值比达到54.0%、49.9%、48.2%、38.3%、17.7%.垃圾处理的浓度贡献分别为(155.2,147.0,122.2, 119.3,126.3)$\times10^{-9}$,占比达到34.0%、31.8%、34.0%、41.1%、58.7%.以上结果进一步从浓度上表明稻田和垃圾处理过程是当地CH_4浓度变化的主要组分,且两者展示出了显著的月变化特征.如上所述,先验清单中稻田CH_4排放只有较小的月变化特征,而清单中垃圾处理过程则没有月变化,这显然与真实CH_4排放相比不合理.基于其温度敏感性,夏天CH_4排放应该高于冬季,6~10月的气温分别为24.9,28.3,27.8, 24.3,18.6℃,高于全年平均值16.2℃,因此真实的贡献及其比例在6~9月应该更高,尤其是7~8月.此外,湿地CH_4排放也是重要的贡献来源,在6~10月浓度增强分别为(30.9,58.8,47.5,41.9,25.9)$\times10^{-9}$,占比为6.8%、12.7%、13.2%、14.5%、12.0%.因此可知,控制观测站点大气CH_4浓度变化主要是以上三种微生物过程,而非化石燃料来源(如工业、汽车和居民区等).通过对比基于WRF-STILT模型在我国其它地区的研究,发现本研究与在江苏南京、安徽全椒、浙江杭州的主导排放源类似,但与在山西太原观测结果不同,以上差异的主要原因是山西以煤炭开采为主,瓦斯泄露是当地CH_4的主要排放源,而长三角人口密集,河网密布,农业发达,因此导致稻田、垃圾处理等成为重要排放源,因此展示出不同地区大气

CH_4 浓度的组分呈现较大差异,以及具有当地下垫面特色的组分变化特征[3,18-20,24,29].

表 2　基于先验排放清单模拟的不同区域对站点 CH_4 月平均浓度贡献($\times10^{-9}$)

Table 2　Monthly average CH_4 concentration contributions ($\times10^{-9}$) at the site from different regions simulated based on the *prior* emission inventory

	区域	6 月	7 月	8 月	9 月	10 月
长三角	安徽	21.3	22.2	8.7	5.6	8.1
	浙江	9.6	10.9	1.1	0.6	0.1
	上海	1.1	1.0	0.2	0.2	0.0
	江苏	349.9	328.2	287.3	251.8	176.9
江苏省内	泰州	175.9	163.7	160.9	170.4	110.9
	盐城	7.4	3.4	5.6	25.6	13.4
	镇江	22.8	29.1	3.2	2.2	3.0
	常州	24.8	17.8	5.6	3.8	3.2
	无锡	17.4	14.8	13.1	4.2	2.7
	苏州	26.3	28.9	36.5	5.0	3.9
	南通	38.0	39.3	47.8	14.8	11.9
	扬州	24.6	21.6	9.0	15.7	22.4
所有区域		456.5	462.0	359.1	290.2	215.1

从表2可以看出,江苏省内CH_4排放源是观测站点主要贡献源,在 6~10 月分别贡献了(349.9,328.2,287.3,251.8,176.9)$\times10^{-9}$,占整个模拟区域(图 3 的中国中东部)的比例分别为 76.6%、71.0%、80.0%、86.8%、82.2%.由于观测站点位于泰州市中部,因此泰州市贡献分别为(175.9,163.7,160.9,170.4,110.9)$\times10^{-9}$,占总模拟区域的比例为 38.5%、35.4%、44.8%、58.7%、51.6%;且与泰州市接壤的 7 个市在 6~10 月分别贡献了(161.3,154.9,120.8,71.3,60.5)$\times10^{-9}$,占总贡献的 35.3%、33.5%、33.6%、24.6%和 28.1%.

从泰州市及周边接壤城市的CH_4浓度占比可知,位于泰州市的 CH_4 浓度观测站点,能接收到泰州及周边接壤城市的显著信号,且其总和在 6~10 月占比达到了浓度增加值的 71.1%、68.9%、78.4%、83.3%、79.7%.上述 8 个市的稻田种植总面积是 $1.25\times10^4 km^2$,更是占江苏全省稻田种植面积的 44.4%.以上模拟结果直接表明江苏省中部和南部区域是影响该站点大气 CH_4 浓度的主要源区,排放量反演结果能展示泰州和江苏区域稻田 CH_4 排放特征.此外,泰州及周边接壤 7 市的总面积为 6 万 km^2,约 245km 的半径区域.因此,本研究在泰州市的浓度贡献区域模拟结果表明 70%~80%的浓度增加值的贡献来自于以观测站点为中心,半径为 250km 内的区域.此外,在山西太原市、江苏南京市、浙江杭州市、江西南昌市模拟的主要源区范围也与本研究接近[3,18-20,24,29],以上结果可为其它城市开展温室气体浓度监测选址提供参考.

2.3　基于浓度观测的稻田 CH_4 排放量反演

表 3　基于 10d 平均的先验和后验稻田 CH_4 排放通量及校正系数对比

Table 3　Comparison of 10−day averaged prior and posterior paddy field CH_4 emission fluxes and correction factors

时期	5 月下旬	6 月上旬	6 月中旬	6 月下旬	7 月上旬	7 月中旬	7 月下旬	8 月上旬	8 月中旬	8 月下旬	9 月上旬	9 月中旬	9 月下旬	10 月上旬	10 月中旬	10 月下旬
泰州先验	220.9	308.8	308.8	308.8	285.3	285.3	285.3	295.7	295.7	295.7	178.2	178.2	178.2	52.6	52.6	52.6
江苏先验	270.6	377.9	377.9	377.9	349.1	349.1	349.1	361.9	361.9	361.9	218.5	218.5	218.5	65.1	65.1	65.1
校正系数	0.63 (±0.11)	0.15 (±0.07)	0.67 (±0.10)	0.82 (±0.11)	0.92 (±0.12)	1.30 (±0.16)	1.33 (±0.18)	1.33 (±0.17)	3.27 (±0.36)	2.14 (±0.24)	2.51 (±0.29)	1.20 (±0.18)	1.10 (±0.17)	3.85 (±0.52)	3.10 (±0.47)	0.85 (±0.33)
泰州后验	140.2 (±23.4)	45.7 (±21.3)	206.5 (±29.0)	252.5 (±33.1)	262.3 (±35.1)	370.8 (±46.5)	379.3 (±51.1)	392.2 (±50.8)	966.6 (±104.6)	633.0 (±71.2)	447.9 (±51.9)	213.8 (±32.2)	196.5 (±29.7)	202.2 (±27.0)	163.0 (±24.4)	44.9 (±17.1)
江苏后验	171.8 (±28.7)	56.0 (±26.1)	252.7 (±35.5)	309.0 (±40.5)	321.0 (±42.9)	453.8 (±56.9)	464.2 (±62.5)	480.0 (±62.1)	1182.9 (±128.0)	774.6 (±87.2)	549.2 (±63.7)	262.1 (±39.5)	241.0 (±36.5)	250.6 (±33.4)	202.0 (±30.3)	55.7 (±21.2)

注:排放通量单位为: mg $CH_4/(m^2\cdot d)$,括号内为不确定性范围.

如上所述,由于稻田和垃圾处理展示出高度一致的时间变化特征,因此传统反演方法难以对其进行有效拆分和反演,本文将采用公式(2~3)对稻田 CH_4 进行反演.该方法虽然能在日尺度上得出了反演校正系数,受到日尺度上背景值和大气传输过程的影响,为了消除以上原因导致的较大日尺度上的波动,采用 10d 平均进行校正系数的平滑并得到旬平均的校正系数和反演结果.从表 3 可以看出,EDGAR 先验排放清单并没有显著的时间变化特征,无论是泰州市或江苏全省的平均最高值出现在 6~8

月,且泰州市在 285.3~308.8mg $CH_4/(m^2·d)$,江苏省则是 270.6~361.9mg $CH_4/(m^2·d)$,都没有展示出由于水稻生育期变化产生的 CH_4 通量的显著改变.

而基于高塔浓度的后验校正系数则表明,在 7 月中旬~10 月中旬排放量应该高于先验通量,而 5 月下旬~7 月上旬,以及 10 月下旬排放清单则出现了高估.使用以上后验校正系数及不确定性,得出泰州市和江苏省稻田 CH_4 通量的最高值出现在 8 月中旬,分别达到(966.6±104.6)和(1182.9±128.0)mg $CH_4/(m^2·d)$;且在 6 月上旬和 10 月下旬达到最低值,接近 50mg $CH_4/(m^2·d)$.在整个研究时段展示出了显著的时间变化特征,且高排放峰值持续时间在 10d 内.整个研究时段平均值对比可以看出,泰州市和江苏省先验 CH_4 通量分别为 223.9,274.3mg $CH_4/(m^2·d)$,而后验结果分别为(307.3±40.5),(376.7±49.7)mg $CH_4/(m^2·d)$,后验通量是先验清单的(1.37±0.18)倍.Huang 等[20]采用贝叶斯反演方法开展了长三角 CH_4 月尺度排放量的反演,发现了稻田 CH_4 的季节变化是主导长三角大气 CH_4 时间变化的主要因子,本研究相对于前人研究,不仅采用更简化的校正方法,还增加了时间分辨率,从月尺度提升到 10d 平均.以上结果表明先验排放清单无论从时间变化还是总量上存在明显偏差,而本研究得出的后验校正系数则可用于未来长三角区域稻田 CH_4 通量的订正.

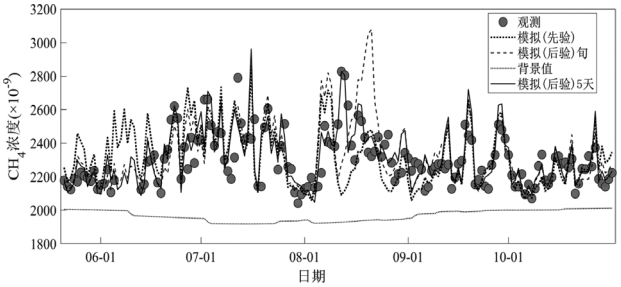


图 5 观测和模拟的日平均 CH_4 浓度对比

Fig.5 Comparison of observed and simulated daily average CH_4concentrations

模拟分别采用先验 CH_4 通量和校正后的后验通量,模拟后验分别采用旬平均和 5 日平均

为了评估本研究的校正方法对 CH_4 排放量的改进效果,再次采用校正后的稻田和垃圾处理 CH_4 排放量重新模拟 CH_4 浓度,并与观测结果进行对比(图 5).其中观测和先验浓度模拟的相关系数、平均误差和均方根误差分别为 0.44,12.4×10^{-9},175.6×10^{-9},而校正后的以上参数分别为 0.76,22.0×10^{-9},117.6×10^{-9}.虽然平均误差稍微上升,但相关系数和均方根误差都显示出了明显的改进,说明改进后的 CH_4 后验排放量在时间变化上能更好地捕捉江苏省内真实的稻田 CH_4 排放.此外,模拟后验 CH_4 浓度在 6 月上旬和中旬校正了先验排放量的高估结果,更符合真实的大气 CH_4 浓度变化.而 8 月上旬和中旬的后验模拟同样校正了先验排放量的低估结果.此外,在其它模拟时段,先验和后验 CH_4 浓度并无明显差异.

2.4 影响因子分析及与前人基于站点尺度观测的对比和讨论

由于稻田 CH_4 排放是基于微生物活动过程,因此受到水稻生理、气象环境条件和人为管理共同作用的影响,其中气象要素是主要因素之一[29].图 6 中,稻田 CH_4 产生核心是产甲烷菌在厌氧环境下分解有机物,因此温度是主导驱动因子,产甲烷菌最适活性温度在 25~35°C,土壤温度从 7~8 月呈现逐渐上升的态势,CH_4 排放峰值(8 月上中旬)与土壤温度峰值(29.2°C)同步出现.同时,由于太阳短波辐射的增加促使 7 月下旬和 8 月上旬边界层高度和风速上升到全年最高,边界层高度和风速的增加使得 CH_4 水平和垂直扩散加剧,这也是导致该时段即便排放量上升,但图 4~5 中显示观测和模拟的 CH_4 浓度显著下降的主要因素.此外,8 月中旬虽降水少,土壤湿度也随之从 39.8%下降到 29.5%,但因前期 7 月持续降水及人为保水,稻田土壤仍维持厌氧状态,叠加高温导致排放跃升,达到排放峰值.

本研究中位于长三角江苏区域的 CH_4 排放呈现单峰型季节模式,通过对比模型优化前后的排放因子(SFs)发现后验 CH_4 排放于 6 月中旬逐渐上升,这和当地晚稻移栽时间一致.对此,胡安永等[30]在太湖流域的观测实验数据也说明该时段稻田 CH_4 排放主要是有机物料在移栽后淹水环境下迅速分解,产生强烈的“早期碳激发效应”,为土壤产甲烷菌提供了丰富的碳源底物,促使排放活动提早活跃.在 7~8 月,由于长三角地区迎来全年中的高温雨季,水稻进入生长旺盛的分蘖-孕穗期,高温能促使产甲烷菌的活性增强,持续的降水以及田间淹水管理措施形成了严格的厌氧环境,此时 CH_4 排放达到峰值(1182.9±128.0)mg $CH_4/(m^2·d)$,这也与鲍远航等[12]的观测结果相近,即实地多站点观测数据高度一致地显示此

阶段的排放通量峰值为 0.451μmol/(m^2s) (623mg CH_4/(m^2·d)),且分蘖期占全年 CH_4 排放总量的 81.6%的研究结论一致,本研究在整个 7~8 月同样占主要比例.而对于 7~8 月后验的 SF 比先验上升了 50%,说明先验排放清单低估了排放强度,这是由于低估了不同生育期稻田 CH_4 排放显著的时间变化特征及气象因子的影响;此外,也可能是由于低估了秸秆还田 CH_4 排放增加值,排放清单若不纳入秸秆变量则会系统性低估峰值.

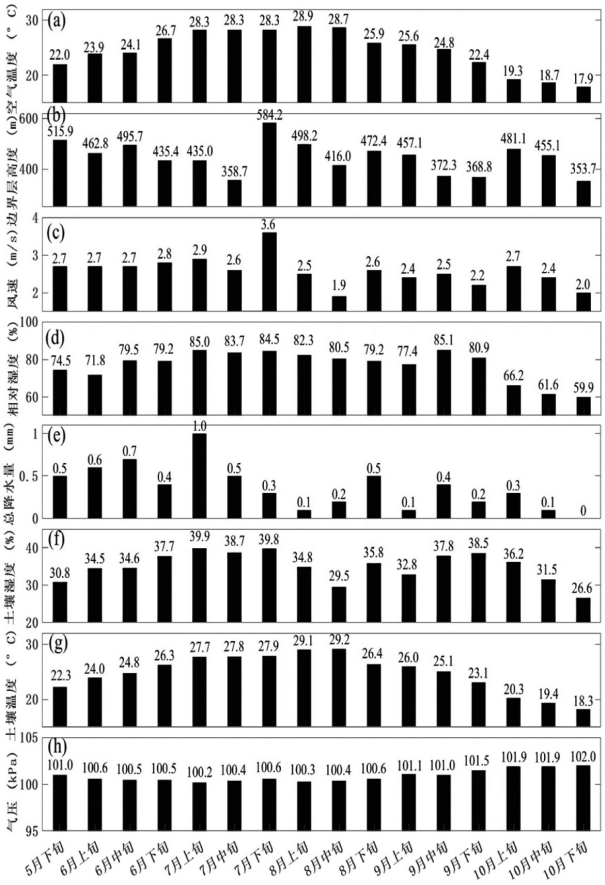


图 6　研究时段各气象因子 10d 平均值

Fig.6　10-day averaged meteorological variables during the study period

(a)空气温度,(b)边界层高度,(c)风速,(d)相对湿度,(e)总降水量,(f)土壤湿度,(g)土壤温度,(h)气压

长三角地区 2018 年拥有耕地 1855.23 万 hm^2,稻田 CH_4 总排放量达 176.9 万 t,平均排放因子为 348.54kg/hm^2,该地区以单季稻田排放贡献最大,CH_4 排放的主要集中在 4~8 月,其中江苏、安徽两省共计占比超 70%[31].鲍远航等[12]同样发现太湖流域稻麦轮作区稻季 CH_4 排放总量为 28.95g/m^2(约 289.5kg/hm^2),当水稻进入 9~10 月抽穗−成熟期时,水稻生理活动减弱,稻田开始排水烤田,因土壤氧化 CH_4 排放骤降,研究发现成熟期的排放贡献仅占全年的 2.2%.Huang 等[20]通过对 2018 年长三角地区的观测和模拟排放分析,同样发现先验排放清单低估了长三角地区稻田的生长季排放量.

由于目前还未有城市或者区域尺度稻田 CH_4 通量的观测研究,本文基于文献调研,选取了在江苏省已开展且数据公开的 4 项站点尺度稻田 CH_4 通量观测结果[9,32-34],并与本研究的反演结果进行对比(图 7).其中由于前人的不同观测试验的水稻种植日期不同,且开展观测的年份跨越长达 20a,因此时间序列采用水稻移栽后为第 1d.此外,考虑到江苏省和泰州市不同区域水稻种植时间不同,通过查阅当地文献,统一采用 2023 年 7 月 1 日为移栽日期.从观测结果可以看出不同稻田 CH_4 通量时间变化和数值大小不同,总体上移栽后逐步上升,且峰值出现的时间不同,基本为移栽后的 25~50d,峰值达到 200~1400mg/(m^2·d);之后逐渐下降,且以上 4 项观测结果之间的对比表明其总排放量的差距也超过了 6 倍.这主要是稻田通量受到人为水肥管理措施、土壤生物物理属性、水稻品种和气象因子共同影响,而以上因子在时空上呈现出巨大的差异性[13-16].这也是导致从农田(或站点)尺度上推到区域(或全国)尺度时,出现差异和估算不确定性的主要原因.而先验排放清单没有出现以上明显的时间变化和峰值,最高 CH_4 通量小于 400mg/(m^2·d),这和真实情况完全不相符.

通过浓度订正后的 CH_4 通量结果表明,无论是泰州市还是江苏省,在移栽后 40~50d 出现了峰值,且达到了(966±104.6),(1182.9±128.0)mg/(m^2·d),反演后在排放高峰的结果是反演前的 3.3 倍,之后逐渐下降,且在移栽 110d 后降低到最低约 50mg/(m^2·d),这和前人基于单站点观测的时间趋势结果高度相符,展示出了本研究所采用的大气反演算法的可靠性.虽然排放高峰在出现时间上滞后了 5~10d,且即便 4 个观测站点之间的 CH_4 排放高峰也相差超过 20d,这主要是江苏省内在区域尺度上的移栽时间差异、水肥管理措施和气象因子导致的.本研究基于 CH_4 浓度观测对 10d 时间平均和区域尺度上稻田 CH_4 通量具有有效约束和反演,且反演结果未来可用于长三角地区 CH_4 浓度的准确模拟,该方法更可用于全国其它

区域水稻 CH_4 排放的反演研究.基于站点 CH_4 通量观测的结果在排放总量上必将和区域平均值产生一定差异,这主要是不同稻田的施肥量、秸秆腐解类别、人为水肥时间管理及主要包括温度和降水在内的气象要素呈现极高的空间异质性;即便同一稻田在相隔 2a 的 CH_4 排放时间变化和总量也将出现显著误差[14,30].因此,这是本研究和前人在站点尺度观测差异的主要原因.

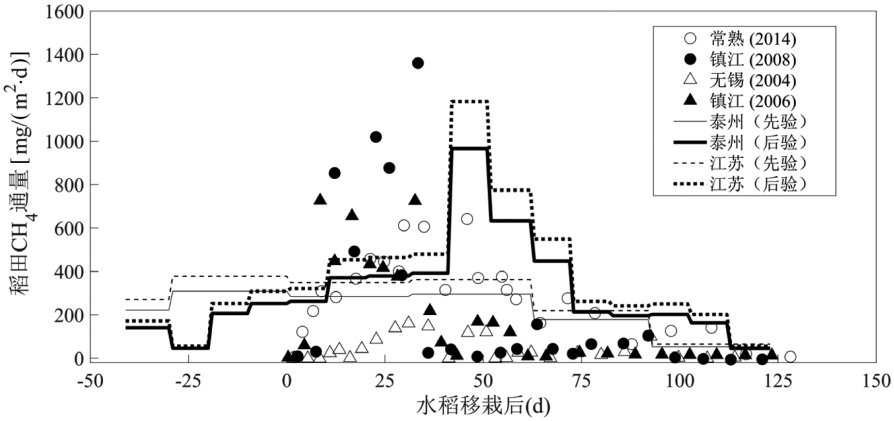


图 7 本研究先验、后验稻田 CH_4 通量与前人在长三角的观测结果的对比,其中横坐标的数值代表移栽后(前)的天数

Fig.7 Comparison between *prior* and *posterior* CH_4 fluxes from rice paddies in this study and previous observations in the Yangtze River Delta, where the date indicates days after rice transplanting

当前无论基于站点观测的空间尺度上推或基于排放清单的自下而上方法估算的区域尺度稻田 CH_4 排放量不确定性都超过 50%,本研究基于大气 CH_4 浓度观测的后验反演结果显示排放量分别为(307.3±40.5),(376.7±49.7)mg $CH_4/(m^2·d)$,标准偏差占总排放量的比值表明其不确定性约 10%,显著降低了江苏省稻田 CH_4 排放量的估算不确定性.由于观测数据的限制,本研究只选用 1 个位于江苏省中部的大气 CH_4 观测站点,虽然通过浓度贡献源区的模拟表明其能代表泰州市和江苏省(尤其是中部和南部区域)CH_4 排放量,但在江苏省其它地区的观测将提供更具时间和空间代表性的评估与验证.后期建议区域内不同城市环境监测站和气象局通过合作的形式,进行优势互补与共同发展,把各自的 CH_4 观测数据进行资源整合与共享,这将极大促进具有高空间分辨率且包含不同区域 CH_4 排放量的有效约束和反演[3].而耦合多站点大气 CH_4 浓度的观测数据,则是未来开展城市和更大区域尺度 CH_4 排放量精细化反演的必然发展趋势.

3 结论

3.1 先验排放清单中稻田 CH_4 通量没有显著月变化且不存在排放峰值,这与反演结果和前人观测结果不符,需要结合浓度观测进行反演和校正.

3.2 基于高塔浓度观测的反演结果表明,无论是泰州市还是江苏省,在移栽后 40~50d(约 8 月中旬)出现了 CH_4 排放的峰值,达到(966.6±104.6)和(1182.9±128.0) $mg/(m^2·d)$,反演后的 CH_4 排放高峰是反演前的(3.27±0.35)倍,之后逐渐下降.

3.3 从 5 月下旬~10 月下旬,泰州市和江苏省稻田 CH_4 的平均后验通量分别为(307.3±40.5)和(376.7±49.7)mg $CH_4/(m^2·d)$,是先验清单的(1.37±0.18)倍,以上结果表明先验排放清单无论在时间变化还是总量上都存在明显偏差.反演得到的后验校正系数可为未来在长三角评估区域尺度稻田 CH_4 排放总量及时间变化特征提供数据支撑,以及为在长三角开展大气 CH_4 浓度的准确模拟提供排放源的订正.

参考文献:

[1] Forster P, Storelvmo T, Armour K et al. The Earths energy budget, climate feedbacks, and climate sensitivity [C]. AGU Fall Meeting Abstracts, 2021,2021:U13B-07.

[2] Cai B, Lou Z, Wang J, et al. CH_4mitigation potentials from China landfills and related environmental co-benefits [J]. Science Advances, 2018,4(7):eaar8400.

[3] 胡 诚,张俊清,刘慧丽,等.城市尺度温室气体排放反演研究进展及发展趋势 [J]. 中国环境科学, 2024,44(12):7036-7045.
Hu C, Zhang J Q, Liu H L, et al. Review of the greenhouse gas emission inversion approaches at city scale and future development trends [J]. China Environmental Science, 2024,44(12):7036-7045.

[4] Peng S, Piao S, Bousquet P, et al. Inventory of anthropogenic methane

emissions in mainland China from 1980 to 2010 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016,16(22):14545−14562.

[5] Pison I, Berchet A, Saunois M, et al. How a European network may help with estimating methane emissions on the French national scale [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018,18(5):3779−3798.

[6] Xu L, Lin X, Amen J, et al. Impact of changes in barometric pressure on landfill methane emission [J]. Global Biogeochemical Cycles, 2014, 28(7):679−695.

[7] Spokas K A, Bogner J, Corcoran M. Modeling landfill CH_4emissions: CALMIM international field validation, using CALMIM to simulate management strategies, current and future climate scenarios [J]. Elem Sci Anth, 2021,9(1):00050.

[8] Li X, Lü F, Liao N, et al. Greenhouse gas emissions of municipal solid waste in Shanghai over the past 30years: Dependent on the dynamic waste characteristics and treatment technologies [J]. Resources, Conservation and Recycling, 2024,201:107321.

[9] Zhang Z S, Cao C G, Guo L J, et al. Emissions of $CH_4$and $CO_2$from paddy fields as affected by tillage practices and crop residues in central China [J]. Paddy and water environment, 2016,14(1):85−92.

[10] 吴　双,杨蔚桐,盛扬悦,等.稻田灌溉河流CH_4和N_2O排放特征及影响因素 [J]. 环境科学, 2021,42(21):6014−6024.
Wu S, Yang W., Sheng Y., et al. Characteristics and influencing factors of $CH_4$and N_2O emissions from paddy field irrigation rivers [J]. Environmental Science, 2021,42(21):6014−6024.

[11] 于贵瑞,任　伟,陈　智,等.中国陆地生态系统碳氮水通量协同观测系统的建设及其科学研究(英文) [J]. 地理学报:英文版, 2016,26(7):803−826.
Yu G, Ren W, Chen Z, et al. Construction and scientific applications of a carbon, nitrogen and water fluxes collaborative observation system in China's terrestrial ecosystems [J]. Journal of Geographical Sciences, 2016,26(7):803−826.

[12] 鲍远航,徐昔保,陈　晔.太湖流域农田稻季 CH_4 通量特征及影响因子 [J]. 生态学报, 2020,40(21):7690−7698.
Bao Y. Xu X, Chen Y. Characteristics and influencing factors of CH_4 fluxes during rice−growing season in farmland of Taihu Basin [J]. Acta Ecologica Sinica, 2020,40(21):7690−7698.

[13] Yuan W, Liang M, Gao Y, et al. China's greenhouse gas budget during 2000~2023 [J]. National Science Review, 2025,12(4):nwaf069.

[14] 张文宣,于海洋,张广斌,等.水稻品种对 CH_4 产生、排放及 $\delta^{13}CH_4$ 的影响 [J]. 生态环境学报, 2015,24(2):196−203.
Zhang W, Yu H, Zhang G, et al. Effects of rice varieties on CH_4 production, emission and $\delta^{13}CH_4$ [J]. Ecology and Environmental Sciences, 2015,24(2):196−203.

[15] Zhang Y, Fang S, Chen J, et al. Observed changes in China's methane emissions linked to policy drivers [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2022,119(41):e2202742119.

[16] Shen L, Jacob D J, Gautam R, et al. National quantifications of methane emissions from fuel exploitation using high resolution inversions of satellite observations [J]. Nature Communications, 2023, 14(1):4948.

[17] Chen Z, Jacob D, Nesser H, et al. Methane emissions from China: a high−resolution inversion of TROPOMI satellite observations [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2022,2022:1−31.

[18] Hu C, Xiao W, Griffis T J, et al. Estimation of Anthropogenic CH_4 and CO_2 Emissions in Taiyuan‐Jinzhong Region: One of the World's Largest Emission Hotspots [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2023,128(8):e2022JD037915.

[19] Hu C, Zhang J, Qi B, et al. Global warming will largely increase waste treatment CH_4 emissions in Chinese megacities: insight from the first city−scale CH_4 concentration observation network in Hangzhou, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2023,23(7):4501−4520.

[20] Huang W, Griffis T J, Hu C, et al. Seasonal variations of CH_4 emissions in the Yangtze River Delta region of China are driven by agricultural activities [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 2021, 38(9):1537−1551.

[21] 黄满堂,王体健,赵雄飞,等.2015 年中国地区大气甲烷排放估计及空间分布 [J]. 环境科学学报, 2019,39(5):1371−1380.
Huang M, Wang T, Zhao X, et al. Estimates and spatial distribution of atmospheric methane emissions in China in 2015 [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019,39(5):1371−1380.

[22] Zhang Y, Jiang Y, Tai A P K, et al. Contribution of rice variety renewal and agronomic innovations to yield improvement and greenhouse gas mitigation in China [J]. Environmental Research Letters, 2019,14(11):114020.

[23] Lan X K W, Thoning E J. Dlugokencky: Trends in globally−averaged CH_4, N_2O, and SF_6determined from NOAA Global Monitoring Laboratory measurements [DB/OL]. Version 2025−06,1069.

[24] Hu C, Griffis T J, Liu S, et al. Anthropogenic methane emission and its partitioning for the Yangtze River Delta region of China [J]. Journal of Geophysical Research: Biogeosciences, 2019,124(5):1148−1170.

[25] Treat C C, Natali S M, Ernakovich J, et al. A pan-Arctic synthesis of CH_4 and CO_2 production from anoxic soil incubations [J]. Global Change Biology, 2015,21(7):2787−2803.

[26] Sargent M, Barrera Y, Nehrkorn T, et al. Anthropogenic and biogenic CO_2 fluxes in the Boston urban region [J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2018,115(29):7491−7496.

[27] He J, Naik V, Horowitz L W, et al. Investigation of the global methane budget over 1980~2017 using GFDL−AM4.1 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020,20(2):805−827.

[28] Cao C, Lee X, Liu S, et al. Urban heat islands in China enhanced by haze pollution [J]. Nature communications, 2016,7(1):12509.

[29] Zhang J, Ji D, Hu C, et al. Multiple−model based simulation of urban atmospheric methane concentration and the attributions to its seasonal variations: A case study in Hangzhou megacity, China [J]. Environmental Pollution, 2024,361:124781.

[30] 胡安永,孙　星,刘　勤.太湖地区不同轮作模式对稻田温室气体(CH_4 和 N_2O)排放的影响 [J]. 应用生态学报, 2016,27(1):99−106.
Hu A, Sun X, Liu Q. Effects of different crop rotation systems on paddy field greenhouse gas (CH_4 and N_2O) emissions in the Taihu region [J]. Chinese Journal of Applied Ecology, 2016,27(1):99−106.

[31] 葛瑞阳,王双双,张　妍,等.长三角地区农作物温室气体排放特征研究 [J]. 南京信息工程大学学报, 2024,16(3):428−436.
Ge R, Wang S, Zhang Y, et al., Characteristics of agricultural greenhouse gas emissions in the Yangtze River Delta [J]. Journal of Nanjing University of Information Science & Technology, 2024,16(3):428−436.

[32] Xia L, Xia Y, Ma S, et al. Greenhouse gas emissions and reactive nitrogen releases from rice production with simultaneous incorporation of wheat straw and nitrogen fertilizer [J]. Biogeosciences, 2016,13(15): 4569−4579.

[33] Li X, Ma J, Yao Y, et al. Methane and nitrous oxide emissions from irrigated lowland rice paddies after wheat straw application and midseason aeration [J]. Nutrient cycling in agroecosystems, 2014, 100(1):65−76.

[34] Ma J, Xu H, Yagi K, et al. Methane emission from paddy soils as affected by wheat straw returning mode [J]. Plant and Soil, 2008, 313(1):167−174.

作者简介：杨文武(1979−),男,江苏泰兴人,正高级工程师,硕士,从事环境监测与持久性有机污染物监测与研究.发表论文 13 篇.395758716@qq.com.