

УДК 551.510.4

## АНАЛИЗ ИЗМЕНЧИВОСТИ СОДЕРЖАНИЯ АТМОСФЕРНОГО МЕТАНА В РАЙОНЕ САНКТ-ПЕТЕРБУРГА ПО ДАННЫМ НАЗЕМНЫХ ИЗМЕРЕНИЙ И МОДЕЛИРОВАНИЯ

© 2015 г. М. В. Макарова\*, О. Кирнер\*\*, Ю. М. Тимофеев\*, А. В. Поберовский\*, Х. Х. Имхасин\*, С. И. Осипов\*, Б. К. Макаров\*

\*Санкт-Петербургский государственный университет  
198504 Санкт-Петербург, Петергоф, Ульяновская ул., 1  
E-mail: zaits@troll.phys.spbu.ru

\*\*Технологический институт Карлсруэ  
Кайзерштрассе 12, 76131 Карлсруэ, Германия  
E-mail: ole.kirner@kit.edu

Поступила в редакцию 10.01.2014 г., после обработки 04.06.2014 г.

Представлен совместный анализ результатов Фурье-спектрометрических измерений  $\text{CH}_4$  и расчетов модели ЕМАС для станции Петергоф (СПбГУ) за 2009–2012 гг. Систематические рассогласования между наблюдениями и моделью составляют 1.3% и 0.3% соответственно величин для общего содержания и средней по столбу концентрации  $\text{CH}_4$ . Высокая корреляция для экспериментального и модельного массивов общего содержания ( $r = 0.8$ ) показывает, что ЕМАС воспроизводит изменчивость общего содержания  $\text{CH}_4$  в атмосфере за счет метеорологических процессов. На основе данных моделирования проведен анализ влияния метеорологических условий, характерных для Фурье-спектрометрических наблюдений, на получаемые оценки среднего значения общего содержания и средней концентрации  $\text{CH}_4$ . Показана возможность существования систематических сдвигов (до ~0.4%) экспериментальных оценок среднего значения относительно “истинного”. Этот факт необходимо учитывать при сравнениях климатологических или модельных данных с результатами Фурье-спектрометрических измерений в особенности для станций с относительно небольшим количеством дней наблюдений.

**Ключевые слова:** атмосферный метан, атмосферная ИК Фурье-спектрометрия, транспортно-фотохимические модели атмосферы.

DOI: 10.7868/S0002351515010083

### ВВЕДЕНИЕ

Метан является одним из важнейших парниковых газов в атмосфере Земли. Это обусловлено особенностями строения его молекулы и спектральными диапазонами, где расположены полосы поглощения  $\text{CH}_4$ . Поскольку метан является долгоживущим газом и его временные изменения в атмосфере относительно невелики, системы наблюдений (как наземные, так и спутниковые) должны обладать высокой измерительной точностью [1–3].

Основную информацию об атмосферном метане в настоящее время получают по данным глобальных наземных сетей GAW/NOAA (WMO Global Atmosphere Watch) [11, 12], NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) [13] и TCCON (Total Carbon Column Observing

Network) [14], а также благодаря спутниковым программам измерений SCIAMACHY [15], AIRS [16], IASI [17], TES [18], GOSAT [19].

В нашей стране важное значение в исследованиях метана сыграли наземные измерения его общего содержания по спектрам солнечного излучения с низким спектральным разрешением, которые осуществлялись в последние 20–40 лет в ИФА РАН [20], ИЭМ [21] и СПбГУ [22].

С 2009 г. на станции атмосферного мониторинга СПбГУ [23] при помощи Фурье-спектрометра высокого спектрального разрешения Bruker IFS 125 HR ведутся комплексные измерения важнейших климатически и химически активных малых газовых составляющих атмосферы [24–26]. С этого же 2009 г. действует Атмосферная Фурье-станция УрФУ, расположенная в Коуровской аст-

рономической обсерватории [27], входящая в международную сеть измерений TCCON.

Необходимо также упомянуть усилия ИОА СО РАН, где на сети сибирских станций осуществляются измерения концентраций метана на башнях [28]. ГГО им. Воейкова проводит регулярные измерения приземных концентраций  $\text{CH}_4$  на нескольких станциях сети Росгидромета [29]. Долговременными рядами измерений приземной концентрации метана обладает МГУ [30]. Усилиями ИФА РАН осуществляется проект TROICA [31], в рамках которого передвижная обсерватория курсирует по железным дорогам России, обеспечивая широтные и долготные разрезы различных характеристик атмосферы и в том числе приземных концентраций метана.

Настоящая работа посвящена анализу временных изменений  $\text{CH}_4$  в атмосфере для станции Петергоф за 2009–2013 гг. по данным измерений и результатов модели ЕМАС [32].

## МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЙ И МОДЕЛИРОВАНИЯ

### Фурье-спектрометрические измерения общего содержания $\text{CH}_4$

Фурье-спектрометрические измерения проводятся в Петергофе ( $59.88^\circ \text{N}$ ,  $29.82^\circ \text{E}$ , 20 м над уровнем моря), примерно в 35 километрах к юго-западу от центра Санкт-Петербурга. Регистрация интерферограмм проводится в условиях безоблачного неба или при наличии достаточных для проведения регистрации спектров разрывов в облачности. Обычно измерения ведутся при разности оптического пути 180 см, что соответствует спектральному разрешению  $0.005 \text{ см}^{-1}$ . Стабильность работы Фурье-спектрометра, а также его характеристики контролируются по измерениям кюветы с  $\text{HBr}$ , обрабатываемым программой LINEFIT [33].

Интерпретация высокоразрешенных спектров прямого солнечного излучения (определение общего содержания газов в атмосфере) осуществляется при помощи программного обеспечения SFIT2 v 3.92 [34], разработанного для сети NDACC. В качестве метеорологической информации, необходимой при обработке спектров, используются данные радиозондирования ГГО в пос. Воейково [35]. Априорными профилями концентраций газов в атмосфере служили профили, рассчитанные при помощи климатической модели WACCM (Whole Atmosphere Community Climate Model) [36] для измерительной станции в Петергофе.

При восстановлении общего содержания  $\text{CH}_4$  в столбе атмосферы мы придерживались стратегии, которая описана в работе [2]. При этом использовались три спектральных микроокна: 2613.7–2615.4,

2835.5–2835.8 и  $2921.0\text{--}2921.6 \text{ см}^{-1}$ . Случайные относительные погрешности единичного измерения общего содержания  $\text{CH}_4$  не превышали 0.5%. Более подробно с методикой определения общего содержания  $\text{CH}_4$  можно познакомиться в работах [2, 37].

### Средства моделирования

Значения общего содержания и средней по столбу концентрации  $\text{CH}_4$  за 2009–2012 гг. рассчитывались моделью ЕМАС (ECHAM/MESy Atmospheric Chemistry model), разработанной в Институте химии им. Макса Планка [32]. ЕМАС является комбинацией модели общей циркуляции атмосферы ECHAM5 [38] и различных подмоделей, которые объединены интерфейсом MESy (Modular Earth Submodel System) [39]. ЕМАС моделирует химические и динамические процессы от тропосферы до мезосферы (39 слоев по вертикали) с горизонтальным разрешением  $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ . Генерируемый ЕМАС массив значений общего содержания метана и средней по столбу концентрации  $\text{CH}_4$  представляет собой временные ряды с одиннадцатичасовым шагом.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты наземных Фурье-спектрометрических (FTIR) измерений метана во всей толще атмосферы (2009–2013 гг.) в сравнении с расчетами модели ЕМАС (2009–2012 гг.) представлены на рис. 1 и 2. Рисунок 1 демонстрирует среднедневные значения общего содержания (ТС), а рис. 2 – средние по столбу атмосферы концентрации (МФ) метана.

Величина МФ получена путем деления общего содержания ТС метана на полное количество молекул в сухой атмосфере. Переход от общего содержания к величине средней концентрации позволяет исключить влияние вариаций давления на вариации метана. При расчетах МФ были использованы: для измерений – данные метеорологического зондирования станции Воейково; для ЕМАС – данные собственного метеоблока модели. Отметим, что в настоящее время эта характеристика (МФ) широко используется в моделировании, а также в космических и наземных системах дистанционных измерений (например, для приборов SCIAMACHY, GOSAT, на сети TCCON) [15, 19, 14].

Результаты моделирования за 2009–2012 гг. были согласованы по дате и времени с FTIR-измерениями путем интерполяции данных ЕМАС. Всего в 2009–2012 гг. для сравнения с моделью имеются 233 среднедневных значения ТС и МФ  $\text{CH}_4$ . На рис. 1 и 2 внизу представлена разница

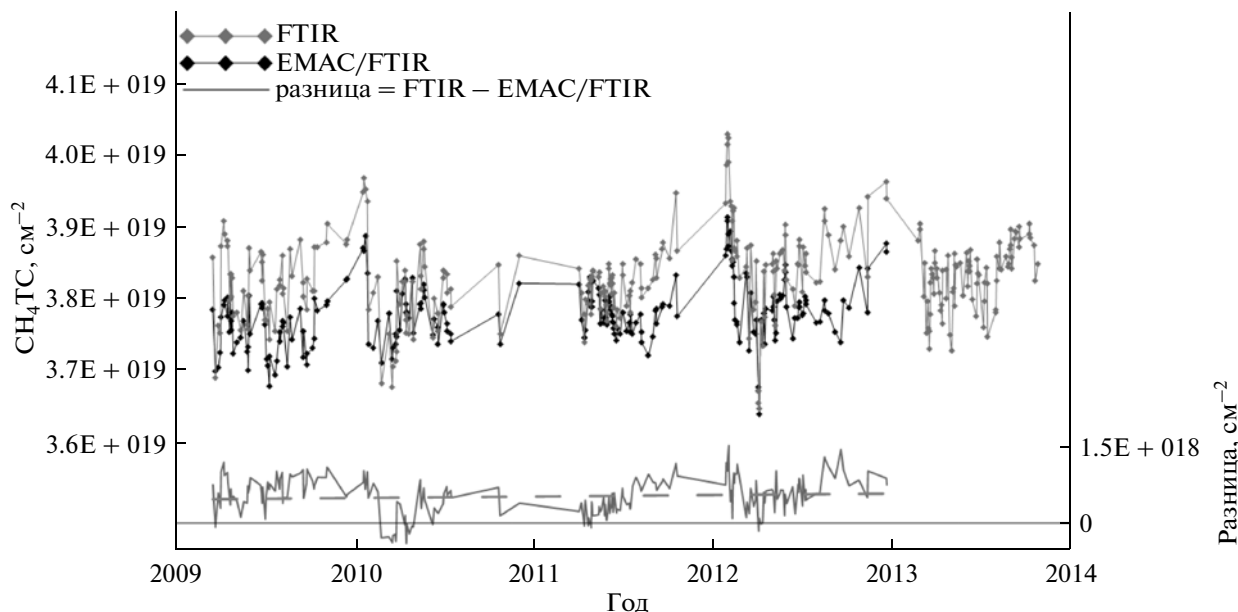


Рис. 1. Измеренные и смоделированные средние значения общего содержания (ТС) метана, а также разница между ними.

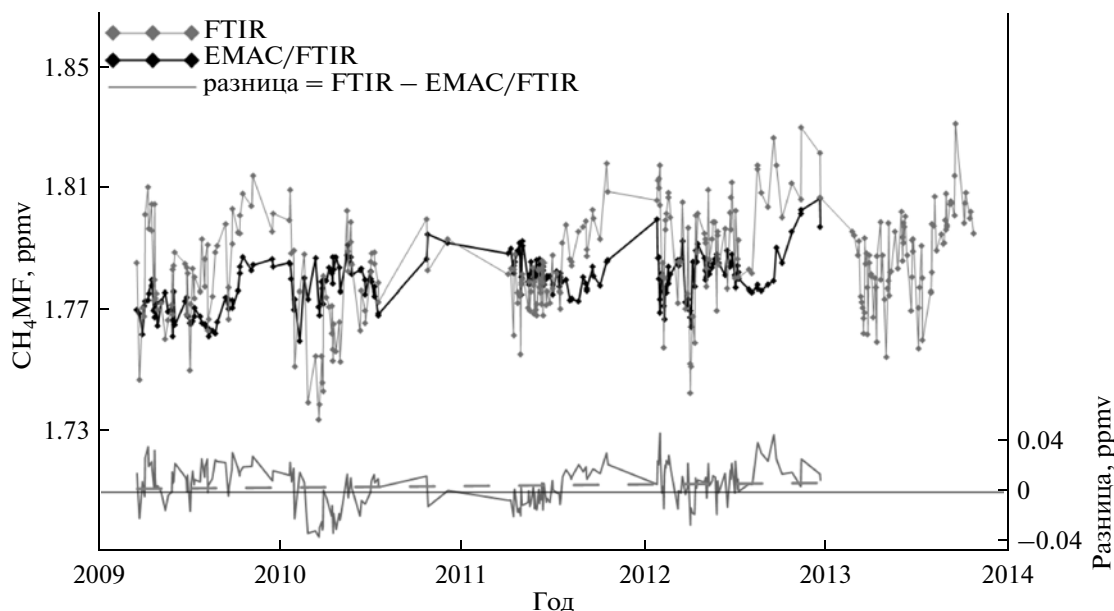


Рис. 2. Измеренные и смоделированные средние значения средней по столбу атмосферы концентрации (MF) метана, а также разница между ними.

между FTIR измерениями и моделью. Пунктирной линией – среднее значение этой разницы.

Начиная с рис. 1, 2 и далее для анализируемых массивов данных будут использоваться следующие обозначения:

FTIR – данные, полученные при помощи наземных Фурье-спектрометрических измерений;

EMAC – полный временной ряд, генерируемый моделью EMAC;

EMAC/FTIR – выборка из результатов моделирования, согласованная по дате и времени с FTIR измерениями.

Экспериментальные данные, приведенные на рис. 1 и 2, рассматриваются нами в качестве среднесуточных ТС и MF метана, поскольку каждое значение – результат осреднения нескольких измерений  $CH_4$ , полученных в течение дня. Исключение составляют обычно зимние измерения, ко-

**Таблица 1.** Основные статистические характеристики для массивов общего содержания метана FTIR, ЕМАС/FTIR и ЕМАС за 2009–2012 гг.

ТС	Среднее, $\times 10^{19} \text{ см}^{-2}$	Медиана, $\times 10^{19} \text{ см}^{-2}$	$\sigma$ , $\times 10^{19} \text{ см}^{-2}$	Минимум, $\times 10^{19} \text{ см}^{-2}$	Максимум, $\times 10^{19} \text{ см}^{-2}$	$\mu_a$	$\mu_e$
FTIR	$3.827 \pm 0.004$	$3.827 \pm 0.004$	0.06 (1.6%)	3.644 (02.04.2012)	4.027 (29.01.2012)	0.2	1.2
ЕМАС (все дни)	$3.761 \pm 0.001$	$3.757 \pm 0.001$	0.05 (1.3%)	3.627 (05.01.2012)	3.912 (28.01.2012)	0.3	0.2
ЕМАС/FTIR (дни измерений)	$3.777 \pm 0.003$	$3.777 \pm 0.003$	0.04 (1.2%)	3.636 (02.04.2012)	3.912 (28.01.2012)	0.3	0.9
Разница (FTIR-ЕМАС/FTIR)	$0.05 \pm 0.002$ (1.3%)	$0.05 \pm 0.002$ (1.3%)	0.04 (1%)	-0.04 (-1.0%)	0.15 (3.9%)	-0.1	-0.2

**Таблица 2.** Основные статистические характеристики для массивов средней по столбу концентрации метана FTIR, ЕМАС/FTIR и ЕМАС за 2009–2012 гг.

MF	Среднее, ppmv	Медиана, ppmv	$\sigma$ , ppmv	Минимум, ppmv	Максимум, ppmv	$\mu_a$	$\mu_e$
FTIR	$1.7842 \pm 0.001$	$1.7837 \pm 0.001$	0.017 (1.0%)	1.7340 (16.03.2010)	1.8301 (10.11.2012)	-0.2	0.0
ЕМАС (все дни)	$1.7826 \pm 0.0003$	$1.7820 \pm 0.0003$	0.010 (0.6%)	1.7537 (29.01.2009)	1.8133 (19.12.2010)	0.2	-0.3
ЕМАС/FTIR (дни измерений)	$1.7792 \pm 0.0005$	$1.7799 \pm 0.0005$	0.008 (0.5%)	1.7599 (02.08.2010)	1.8067 (17.12.2012)	0.1	0.2
Разница (FTIR-ЕМАС/FTIR)	$0.005 \pm 0.001$ (0.3%)	$0.006 \pm 0.001$ (0.3%)	0.016 (0.9%)	-0.037 (-2%)	0.048 (3%)	-0.2	-0.2

гда короткий световой день и метеоусловия не позволяют проводить серии наблюдений. Дневная изменчивость ТС и MF метана, оцененная по нашим измерениям, в среднем составляет  $\sigma \sim 0.3\%$  (СКО).

Отметим, что ранее в работе [37] проводилось сравнение результатов спутникового зондирования аппаратурой GOSAT и наших данных MF метана. Было показано, что систематическая разница между этими двумя измерительными системами составляет  $\sim 3$  ppb (0.2%).

Для массивов общего содержания метана FTIR, ЕМАС/FTIR и ЕМАС в табл. 1 приведены основные статистические характеристики: среднее значение и медиана (с погрешностями), среднеквадратическое отклонение ( $\sigma$ ), экстремальные значения, коэффициенты асимметрии  $\mu_a$  и эксцесса  $\mu_e$ . Поскольку данные моделирования ограничены концом 2012 г., все результаты табл. 1 также относятся к периоду 2009–2012 гг. (данные измерений, полученные в 2013 г., здесь не учитывались). Таблица 2 аналогична по структуре и смыслу табл. 1, содержит те же статистические характеристики, только для MF  $\text{CH}_4$ .

В качестве наглядной иллюстрации статистических данных, приведенных в табл. 1 и 2, на рис. 3–4 даны гистограммы частоты повторяемости значений ТС (рис. 3) и MF (рис. 4) для всех рядов, анализируемых в указанных таблицах (кроме разницы между измерениями и моделью FTIR-ЕМАС/FTIR).

### Общее содержание $\text{CH}_4$

Рассмотрим статистические характеристики ряда ЕМАС/FTIR ТС в сравнении с FTIR ТС (см. табл. 1, рис. 1 и 3). Видно, что данные измерений систематически выше ( $\sim 1.3\%$ ) результатов моделирования. Действительно, разница между экспериментом и моделью статистически значима и положительна для всех сезонов, за исключением весны (табл. 1, рис. 1, нижняя часть).

Изменчивость экспериментальных данных ТС на  $\sim 0.4\%$  выше, чем для модели (см. значения  $\sigma$  в табл. 1). Значения  $\mu_a$ ,  $\mu_e$ , а также соотношение медианы и среднего значения для ЕМАС/FTIR ТС и FTIR говорят о том, что функции распределения для обоих массивов схожи по форме и симметричны (см. рис. 3).

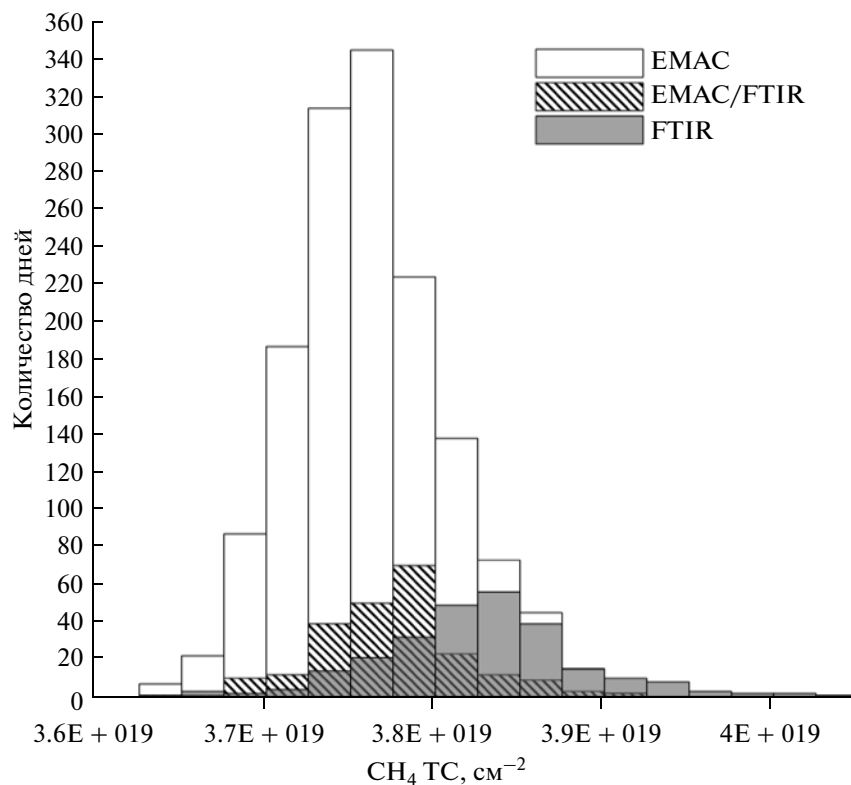


Рис. 3. Гистограммы частоты повторяемости для экспериментального и модельных массивов общего содержания CH<sub>4</sub>.

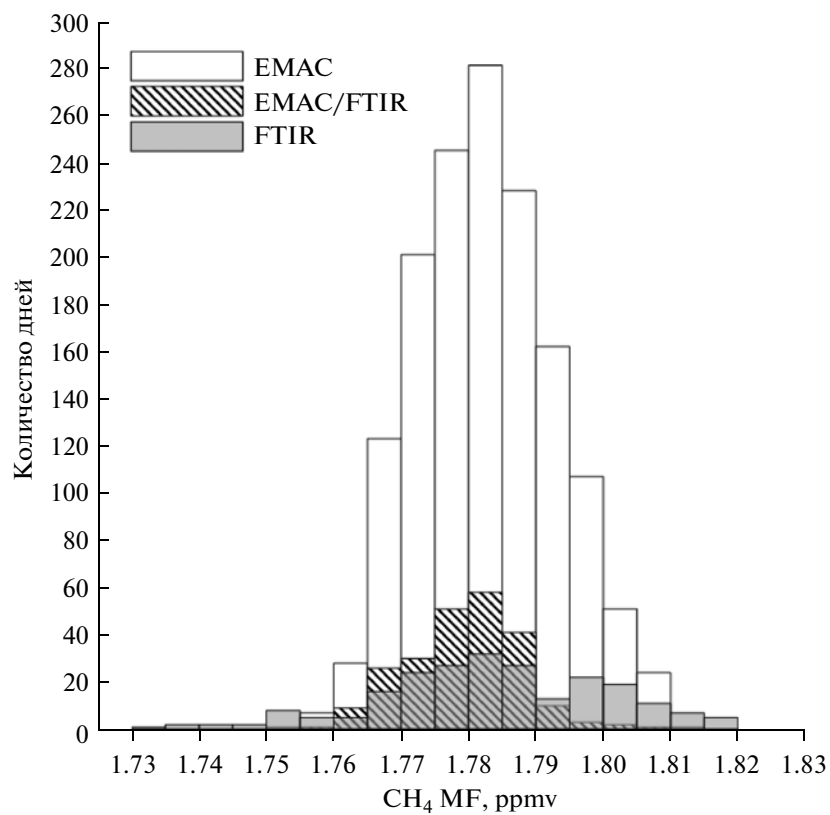


Рис. 4. Гистограммы частоты повторяемости для экспериментального и модельных массивов средней по столбу атмосферы концентрации CH<sub>4</sub>.

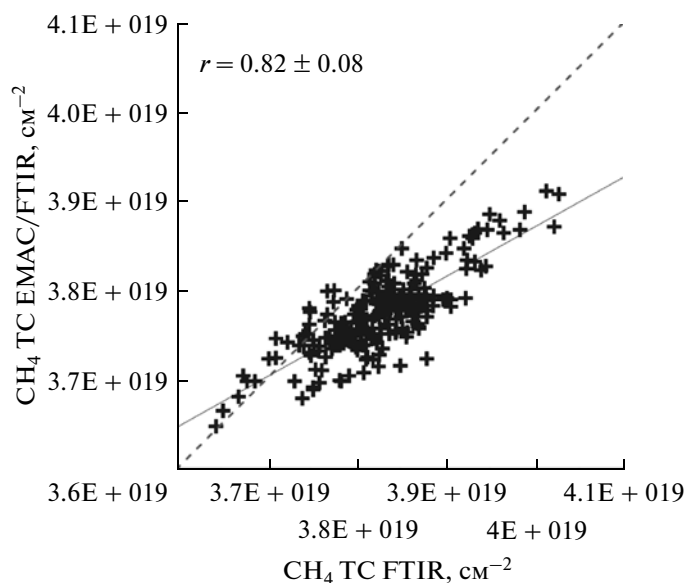


Рис. 5. Диаграмма рассеяния для массивов EMAC/FTIR TC и FTIR TC.

Согласие временных вариаций ТС в обоих ансамблях хорошо прослеживается на рис. 1. Коэффициент корреляции  $r$ , рассчитанный для EMAC/FTIR TC и FTIR TC за 2009–2012 гг., статистически значим (с вероятностью 95%) и составляет  $r = 0.82 \pm 0.08$ , соответствующая диаграмма рассеяния приведена на рис. 5. Модель воспроизводит периоды минимумов и максимумов ТС, зарегистрированные наблюдениями: даты минимальных значений для рядов EMAC/FTIR TC и FTIR TC совпадают, а максимумы приходятся на соседние дни (см. табл. 1).

#### Средние по столбу атмосферы концентрации $\text{CH}_4$

Таблица 2 показывает, что для массивов средних по столбу атмосферы концентраций FTIR MF, EMAC/FTIR MF и EMAC MF (табл. 2, рис. 2 и 4) коэффициенты  $\mu_a$  и  $\mu_e$  имеют небольшие значения, и, таким образом, распределения, представленные на рис. 4, можно считать симметричными, близкими к нормальному. Отметим, что для ряда измерений FTIR MF имеет место бимодальность: моды 1.780 и 1.795 ppmv.

Как и для общего содержания, данные измерений MF лежат в среднем на 0.3% (статистически значимый результат) выше результатов моделирования, исключение составляет только первая половина года (см. рис. 2).

В отличие от общего содержания, временные вариации FTIR MF и EMAC/FTIR MF зачастую не совпадают (рис. 2). Минимумы FTIR MF и EMAC/FTIR MF приходятся на разные сезоны: март и август соответственно (табл. 2). Это подтвер-

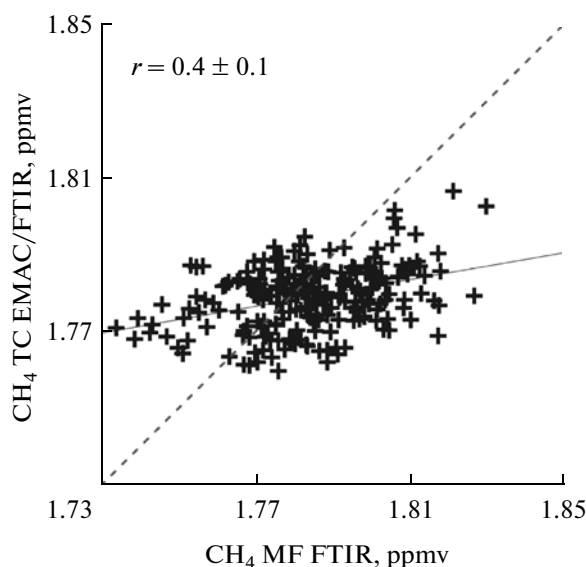


Рис. 6. Диаграмма рассеяния для массивов EMAC/FTIR MF и FTIR MF.

ждается более низким, чем для ТС, коэффициентом корреляции  $r = 0.4 \pm 0.1$  (статистически значим при уровне доверительной вероятности 95%). Диаграмма рассеяния для рядов EMAC/FTIR MF и FTIR MF проиллюстрирована на рис. 6.

В работе [40] проведено сравнение результатов моделирования (транспортно-фотохимическая модель АСТМ [41]) MF  $\text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  и  $\text{CH}_4$  с данными измерений на сети станций TCCON. Обращает на себя внимание тот факт, что если корреляции между рядами наблюдений и моделью для  $\text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  достаточно высоки –  $r$  изменяется в пределах 0.69–0.97, то для MF  $\text{CH}_4$  таких высоких значений  $r$  достигнуто не было: для станций в широтном поясе  $45^\circ$ – $68^\circ$  N коэффициент корреляции колеблется от 0.24 до 0.57 и в среднем по семи станциям составляет 0.41. Несмотря на то, что в [40] использована другая модель, опубликованные результаты хорошо совпадают с нашими. В качестве основной причины относительно слабой воспроизводимости моделями результатов наблюдений MF  $\text{CH}_4$  предполагается недостаточное знание источников метана (поскольку в разных моделях часто используются одни и те же базы данных) и поведения основного стока  $\text{CH}_4$  – радикала гидроксила OH [40].

Для станции Петергоф при переходе от единиц ТС к MF уменьшились значения следующих величин (см. табл. 1 и 2):

– среднего значения разницы между FTIR и EMAC/FTIR на 1%. Это обусловлено тем, что приземное давление EMAC в среднем на 1% ниже наблюдений (вероятно, из-за крупного размера пикселя модели –  $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ );

– изменчивости ( $\sigma$ ) экспериментальных и модельных значений на  $\sim 0.6\text{--}0.7\%$  (из-за исключения влияния вариаций атмосферного давления атмосферы при переходе от ТС к MF).

Используя величину  $(1 - r^2)$ , где  $r^2$  – коэффициент детерминации, можно оценить относительный вклад вариаций давления (плотности) в полную дисперсию рядов ТС. Он составляет:

– для рядов FTIR MF и FTIR ТС –  $36\%$  ( $(1 - r^2) = 0.36$ );

– для EMAC/FTIR MF и EMAC/FTIR ТС –  $74\%$ ;

– для EMAC MF и EMAC ТС –  $80\%$ .

Таким образом, количество дисперсии ТС, определяемой вариациями атмосферного давления, для модельных рядов примерно в два раза выше по сравнению с экспериментальными данными.

Полученная нами оценка для FTIR ТС близка к результатам работы [8], где показано, что  $\sim 40\%$  изменчивости ТС метана может быть объяснено вариациями атмосферного давления, далее по убыванию вклада следуют: годовой ход (учет сезонности источников и стоков метана) – до  $\sim 18\%$ , стратосферные аномалии –  $\sim 2\text{--}10\%$ , приход загрязненных воздушных масс – менее  $5\%$ .

#### Оценка влияния метеорологических условий при Фурье-спектрометрических измерениях на средние значения ТС и MF $\text{CH}_4$

Анализ результатов модели EMAC позволяет нам оценить, насколько хорошо Фурье-спектрометрические измерения, осуществляемые только при безоблачном небе или достаточных разрывах облачности, отражают реальные средние значения ТС и MF  $\text{CH}_4$  в атмосфере.

Для величин общего содержания и средней по столбу концентрации проведем сравнение полного модельного массива EMAC с выборочным EMAC/FTIR. При этом полный массив EMAC будем считать “эталонным” или “истинным”, а выборочный – аналогом FTIR-измерений.

Результаты такого сравнения (для 2009–2012 гг.) показали:

– среднее значение ТС  $\text{CH}_4$ , оцененное по выборочному ряду EMAC/FTIR ТС, на  $(0.4 \pm 0.2)\%$  выше “истинного” среднего значения (см. табл. 1. и рис. 4). Эта разница статистически значима с вероятностью  $95\%$ . Отметим, что, поскольку значения  $\mu$  для EMAC ТС и EMAC/FTIR ТС равны, то разница в средних значениях обусловлена сдвигом всего распределения EMAC/FTIR ТС вправо (это видно на рис. 3);

– среднее значение MF  $\text{CH}_4$ , оцененное по выборочному ряду EMAC/FTIR MF в среднем на  $(0.2 \pm 0.06)\%$  ниже “истинных”, вычисленных по полному массиву EMAC MF (см. табл. 2). Полу-

ченная разница также статистически значима с вероятностью  $95\%$ .

На широтах, где расположена станция наблюдений, основной причиной таких сдвигов является относительно небольшое количество солнечных дней, которым часто сопутствует антициклонная активность. Рост атмосферного давления приводит к увеличению значений общего содержания  $\text{CH}_4$ . Действительно, сравнение средних уровней приземного атмосферного давления для массивов EMAC и EMAC/FTIR, показало, что для выборочного массива давление в среднем на  $0.6\%$  выше, чем для полного. С другой стороны, для антициклонов характерны нисходящие и растекающиеся по горизонтали потоки воздуха [42]. Они несут из верхних слоев тропосферы воздух с меньшей концентрацией метана и могут служить причиной полученного нами отрицательного сдвига для MF  $\text{CH}_4$ .

Таким образом, при сравнении средних уровней ТС и MF  $\text{CH}_4$  по результатам Фурье-спектрометрических измерений, например, с климатологическими или модельными данными для северо-запада России, необходимо учитывать возможность существования систематических сдвигов.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Совместный анализ экспериментальных данных и результатов моделирования метана в атмосфере для станции Петергоф показал:

1. Данные Фурье-спектрометрических измерений общего содержания (ТС) метана систематически выше результатов моделирования, эта разница для 2009–2012 гг. составляет  $1.3\%$ .

Изменчивость экспериментальных данных ТС выше, чем модельных: среднеквадратические вариации равны  $1.6\%$  и  $1.2\%$  соответственно.

2. Значения средней по столбу концентрации (MF)  $\text{CH}_4$  по данным наблюдений на  $0.3\%$  выше, чем для модели EMAC. Уменьшение систематической разницы между данными измерений и моделью для MF на  $1\%$  по сравнению с ТС обусловлено тем, что данные модели по приземному давлению в среднем на  $1\%$  ниже измерений.

Изменчивость экспериментальных и модельных значений MF  $\text{CH}_4$  составляют  $1\%$  и  $0.5\%$  соответственно, что на  $\sim 0.6\text{--}0.7\%$  меньше, чем для общего содержания.

3. Коэффициенты корреляции, рассчитанные для экспериментальных и модельных данных ТС и MF за 2009–2012 гг., статистически значимы с вероятностью  $95\%$  и составляют  $0.82 \pm 0.08$  и  $0.4 \pm 0.1$  соответственно. Это показывает, что:

– модель EMAC хорошо воспроизводит влияние метеорологических процессов на наблюдаемые изменения ТС  $\text{CH}_4$  в атмосфере;

– механизмы формирования MF CH<sub>4</sub> (например, источники и стоки метана) в настоящее время известны с недостаточной точностью.

4. Оценки относительного вклада вариаций давления в полную дисперсию экспериментального (FTIR TC) и модельного (EMAC/FTIR TC) рядов отличаются в два раза и составляют: 36% и 74% соответственно.

5. На основе анализа данных модели EMAC за 2009–2012 гг. было получено:

– среднее значение ряда EMAC/FTIR TC (дни спектрометрических измерений) на 0.4% выше “истинного” среднего, рассчитанного для полного модельного массива EMAC TC;

– среднее значение ряда EMAC/FTIR MF на 0.2% ниже “истинного” среднего, вычисленного по полному массиву EMAC MF.

Основная причина – относительно небольшое количество солнечных дней (дней измерений), которым сопутствуют антициклональные атмосферные условия.

Экспериментальные исследования выполнены при частичной поддержке грантов: РФФИ (№№ 15-05-04583, 14-05-00897) и СПбГУ (11.0.44.2010). Обработка и анализ данных осуществлялись при финансировании Российского научного фонда (№ 14-17-00096). Измерения проведены на оборудовании Ресурсного центра СПбГУ “Геомодель”.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. WMO World Data Centre for Greenhouse Gases: <http://ds.data.jma.go.jp/gmd/wdcgg/introduction.html>.
2. *Sussmann R., Forster F., Rettinger M., Jones N.* Strategy for high-accuracy-and-precision retrieval of atmospheric methane from the mid-infrared FTIR network // *Atmos. Meas. Tech.* 2011. V. 4. P. 1943–1964, doi:10.5194/amt-4-1943-2011.
3. *Yoshida Y., Ota Y., Eguchi N. et al.* Retrieval algorithm for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> column abundances from short-wavelength infrared spectra observations by the Greenhouse gases observing satellite // *Atmos. Meas. Tech.* 2011. V. 4. P. 717–734, doi:10.5194/amt-4-717-2011.
4. *Forster P., Ramaswamy V., Artaxo P., Bernsten T. et al.* Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing, Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), 2007. <http://www.ipcc.ch/pdf/assessment-report/ar4/wg1/ar4-wg1-chapter2.pdf>
5. *Линзбург А.С., Виноградова А.А., Федорова Е.И.* Некоторые особенности сезонного хода содержания метана в атмосфере Северной Евразии // *Изв. РАН. Физика атмосферы и океана.* 2011. Т. 47. № 1. С. 50–63.
6. *Dlugokencky E.J., Houweling S., Bruhwiler L. et al.* Atmospheric methane levels off: Temporary pause or a new steady-state? // *Geophys. Res. Lett.* 2003. V. 30. P. 1992–1995, doi: 10.1029/2003GL018126.
7. *Sussmann R., Forster F., Rettinger M., Bousquet P.* Renewed methane increase for five years (2007–2011) observed by solar FTIR spectrometry // *Atmos. Chem. Phys.* 2012. V. 12. P. 4885–4891, doi: 10.5194/acp-12-4885-2012.
8. *Angelbratt J., Mellqvist J., Blumenstock T. et al.* A new method to detect long term trends of methane (CH<sub>4</sub>) and nitrous oxide (N<sub>2</sub>O) total columns measured within the NDACC ground-based high resolution solar FTIR network // *Atmos. Chem. Phys.* 2011. V. 11. P. 6167–6183, doi: 10.5194/acp-11-6167-2011.
9. *Dlugokencky E.J., Bruhwiler L., White J.W.C. et al.* Observational constraints on recent increases in the atmospheric CH<sub>4</sub> burden // *Geophys. Res. Lett.* 2009. V. 36. L18803, doi: 10.1029/2009GL039780.
10. *Rigby M., Prinn R.G., Fraser P.J. et al.* Renewed growth of atmospheric methane // *Geophys. Res. Lett.* 2008. V. 35. L22805, doi: 10.1029/2008GL036037.
11. WMO GAW [http://www.wmo.int/pages/prog/arep/gaw/gaw\\_home\\_en.html](http://www.wmo.int/pages/prog/arep/gaw/gaw_home_en.html)
12. ESRL's Global Monitoring Division: <http://www.esrl.noaa.gov/gmd/>
13. NDACC: <http://www.ndsc.ncep.noaa.gov/>
14. TCCON: <https://tcon-wiki.caltech.edu/>
15. SCIAMACHY: <https://earth.esa.int/instruments/sciamachy/>
16. AIRS: <http://airs.jpl.nasa.gov/>
17. IASI: <http://smc.cnes.fr/IASI/>
18. TES: <http://tes.jpl.nasa.gov/>
19. GOSAT: [http://www.gosat.nies.go.jp/index\\_e.html](http://www.gosat.nies.go.jp/index_e.html)
20. *Dianov-Klokov V.I., Yurganov L.N., Grechko E.I., Dzholala A.V.* Spectroscopic measurements of atmospheric carbon monoxide and methane. 1: latitudinal distribution // *J. Atmos. Chem.* 1989. V. 8. P. 139–151.
21. *Кашин Ф.В., Арефьев В.Н., Баранов Ю.И.* Измерения содержания метана в приземном слое и толще атмосферы // *Изв. РАН. Физика атмосферы и океана.* 2004. Т. 40. № 3. С. 356–361.
22. *Макарова М.В., Поберовский А.В., Вишератин К.Н., Поляков А.В.* Временная изменчивость общего содержания метана в атмосфере вблизи Санкт-Петербурга // *Изв. РАН. Физика атмосферы и океана.* 2009. Т. 45. № 6. С. 774–781.
23. Ресурсный центр СПбГУ “Геомодель”: <http://geomodel.spbu.ru/>
24. *Поляков А.В., Тимофеев Ю.М., Поберовский А.В.* Наземные измерения общего содержания хлористого водорода в атмосфере вблизи Санкт-Петербурга // *Изв. РАН. Физика атмосферы и океана.* 2013. Т. 49. № 4. С. 447–455.
25. *Ракитин А.В., Поберовский А.В., Тимофеев Ю.М. и др.* Вариации среднего по высоте отношения смеси CO<sub>2</sub> вблизи Санкт-Петербурга // *Изв. РАН. Физика атмосферы и океана.* 2013. Т. 49. № 3. С. 298–303.
26. *Поберовский А.В., Макарова М.В., Ракитин А.В. и др.* Изменчивость общих содержаний климатически активных газов по наземным спектроскопическим измерениям с высоким разрешением // *ДАН.* 2010. Т. 432. № 2. С. 257–259.
27. Атмосферная Фурье-станция УрФУ: <http://wsi-biso.ru/index.php>
28. *Sasakawa M., Shimoyama K., Machida T. et al.* Continuous measurements of methane from a tower network over Siberia // *Tellus.* 2010. V. 62B. № 5. P. 403–416, doi: 10.1111/j.1600-0889.2010.00494.x.
29. *Решетников А.И., Зинченко А.В., Парамонова Н.Н. и др.* Результаты мониторинга основных парниковых газов на арктических станциях Росгидромета //



- Тр. Главной геофизической обсерватории им. А.И. Воейкова. 2011. № 564. С. 223–240.
30. Виноградова А.А., Федорова Е.И., Беликов И.Б. и др. Временные изменения концентраций углекислого газа и метана в городских условиях // Изв. РАН. Физика атмосферы и океана. 2007. Т. 43. № 5. С. 651–663.
  31. Международный проект TROICA: <http://ifaran.ru/troica/index.html>
  32. Jöckel P., Tost H., Pozzer A. et al. The atmospheric chemistry general circulation model ECHAM5/MESSy1: consistent simulation of ozone from the surface to the mesosphere // Atmos. Chem. Phys. 2006. V. 6. P. 5067–5104, doi:10.5194/acp-6-5067-2006.
  33. Hase F., Blumenstock T., Paton-Walsh C. Analysis of the instrumental line shape of high-resolution Fourier transform IR spectrometers with gas cell measurements and new retrieval software // Appl. Optics. 1999. V. 38. P. 3417–3422.
  34. Hase F., Hannigan J.W., Coffey M.T. et al. Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution ground-based FTIR measurements // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. 2004. V. 87. P. 25–52.
  35. Upper air sounding: <http://weather.uwyo.edu/upper-air/sounding.html>
  36. Garcia R.R., Marsh D.R., Kinnison D.E. et al. Simulation of secular trends in the middle atmosphere, 1950–2003 // J. Geophys. Res. 2007. V. 112. D09301, doi: 10.1029/2006JD007485.
  37. Gavrilov N.M., Makarova M.V., Poberovskii A.V., Timofeyev Yu.M. Comparisons of CH<sub>4</sub> satellite GOSAT and ground-based FTIR measurements near Saint-Petersburg (59.9° N, 29.8° E) // Atmos. Meas. Tech. Discuss. 2013. V. 6. P. 7041–7062, doi: 10.5194/amtd-6-7041-2013.
  38. Roeckner E., Brokopf R., Esch M. et al. Sensitivity of simulated climate to horizontal and vertical resolution in the ECHAM5 atmosphere model // J. Climate. 2006. V. 19. P. 3771–3791.
  39. Jöckel P., Sander R., Kerkweg A. et al. Technical Note: The Modular Earth Submodel System (MESSy) – a new approach towards Earth System Modeling // Atmos. Chem. Phys. 2005. V. 5. P. 433–444, doi: 10.5194/acp-5-433-2005.
  40. Saito R., Patra P.K., Deutscher N. et al. Technical Note: Latitude-time variations of atmospheric column-average dry air mole fractions of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O // Atmos. Chem. Phys. 2012. V. 12. P. 7767–7777, doi: 10.5194/acp-12-7767-2012.
  41. Patra P.K., Houweling S., Krol M. et al. TransCom model simulations of CH<sub>4</sub> and related species: linking transport, surface flux and chemical loss with CH<sub>4</sub> variability in the troposphere and lower stratosphere // Atmos. Chem. Phys. 2011. V. 11. P. 12813–12837, doi: 10.5194/acp-11-12813-2011.
  42. Зверев А.С. Синоптическая метеорология. Л.: Гидрометеоиздат. 1977. 711 с.

## Analysis of Variations in Atmospheric Methane Content in the St. Petersburg Area from Data of Ground-Based Measurements and Simulations

M. V. Makarova<sup>a</sup>, O. Kirner<sup>b</sup>, Yu. M. Timofeev<sup>a</sup>, A. B. Poberovskii<sup>a</sup>, Kh. Kh. Imkhasin<sup>a</sup>, S. I. Osipov<sup>a</sup>, and B. K. Makarov<sup>a</sup>

<sup>a</sup> St. Petersburg State University, Ul'yanovskaya ul. 1, St. Petersburg, 198504 Russia  
e-mail: [zaitis@troll.phys.spbu.ru](mailto:zaitis@troll.phys.spbu.ru)

<sup>b</sup> Karlsruhe Institute of Technology, Kaiserstrasse 12, Karlsruhe, 76131 Germany  
e-mail: [ole.kirner@kit.edu](mailto:ole.kirner@kit.edu)

Received January 10, 2014; in final form, June 4, 2014

**Abstract**—We present a joint analysis of data obtained by Fourier spectrometer measurements of CH<sub>4</sub> and EMAC model calculations for Petergof station (St. Petersburg State University) in 2009–2012. The systematic errors between observed and calculated data are 1.3% and 0.3% for the values of total content and atmospheric column-mean concentration of methane, respectively. The high correlation for experimental and model data of the total content ( $r = 0.8$ ) indicates that EMAC reproduces the total variability of the methane total content in the atmosphere due to meteorological processes. Using model data, we have analyzed the effect of meteorological conditions typical for Fourier-spectrometer observations on the resulting estimates of the average total content and average concentration of CH<sub>4</sub>. We have shown that there can be systematic shifts (up to ~0.4%) in the experimental estimates for the average value relative to the “true” value. This fact should be taken into account in comparing the climatological or model data with the results of Fourier spectrometer measurements, especially for stations with a relatively small number of observation days.

**Keywords:** atmospheric methane, atmospheric IR Fourier spectrometry, photochemical transport models.