

УДК 551.510.4

ГОДОВОЙ ХОД И ДОЛГОВРЕМЕННЫЙ ТРЕНД СОДЕРЖАНИЯ АТМОСФЕРНОГО МЕТАНА В РАЙОНЕ САНКТ-ПЕТЕРБУРГА

© 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 доработки 13.03.2014 г.

Статья посвящена анализу годового хода и долгосрочного тренда метана в атмосфере для станции Петергоф (СПбГУ) по данным Фурье-спектрометрических измерений и результатов расчетов модели ЕМАС. Получено, что амплитуда годового хода общего содержания CH_4 для экспериментального и модельного массивов данных составляет 2.1% и 1.5% соответственно. Для средней по столбу атмосферы концентрации CH_4 амплитуды годового хода меньше, чем для общего содержания, и равны для экспериментальных данных – 1.1%, для модели – 0.6%. Результаты локальных круглосуточных измерений приземных концентраций CH_4 показали, что в 2013 г. средние по столбу атмосферы концентрации CH_4 и амплитуды суточного хода локальной концентрации CH_4 имели единую динамику сезонных изменений. Анализ, проведенный с использованием результатов моделирования выявил, что атмосферные условия, характерные для дней Фурье-спектрометрических измерений, могут приводить к увеличению амплитуды годового хода общего содержания CH_4 в два с половиной раза, по сравнению с “истинной”. Фурье-спектрометрические измерения и результаты расчетов модели ЕМАС показали рост CH_4 в атмосфере за 2009–2012 гг. со скоростью ~0.2% в год. Добавление данных измерений за 2013 г. приводит к уменьшению значения тренда до ~0.13% в год.

Ключевые слова: тренды метана, годовой ход, метан, Фурье-спектрометрия, локальные измерения, транспортно-фотохимическое моделирование.

DOI: 10.7868/S0002351515040082

ВВЕДЕНИЕ

Метан является третьим по важности после водяного пара и углекислого газа парниковым газом. С начала индустриальной эпохи концентрация метана удвоилась [1]. Несмотря на то, что начиная с 80-х годов XX века, исследования атмосферного CH_4 ведутся достаточно активно, его источники до сих пор известны с недостаточной точностью, а современные изменения содержания метана в атмосфере демонстрируют особенности, требующие дополнительного изучения [2]. Если в начале XXI века наблюдались практически нулевые значения тренда метана в атмосфере [3], то в 2006 г. рост CH_4 резко возобновился [4]. Причем для периода 2007–2009 гг. содержание CH_4 в Северном полушарии увеличивалось со скоростью ~1% в год [5]. Увеличение зафиксировано как по результатам измерений приземных концентраций [6], так и общего содержания метана во всей толще атмосферы [4]. Основными

предположениями, выдвигаемыми в качестве причин наблюдающейся изменчивости тренда метана, являются влияние эмиссий болотных комплексов, которые зависят от температуры и количества осадков, рост антропогенных выбросов, выделение CH_4 при таянии вечной мерзлоты и высвобождение метана в атмосферу из запасов метангидратов Северного Ледовитого океана [2, 4, 7]. Однако причины, вызвавшие рост метана с 2006 г., точно не установлены и в настоящее время активно обсуждаются научным сообществом [2, 4–7].

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ И МОДЕЛЬНЫЕ ДАННЫЕ

В данной работе исследование годового хода и долгосрочного тренда метана в атмосфере проводится по данным наблюдений на станции атмосферного мониторинга СПбГУ в Петергофе и

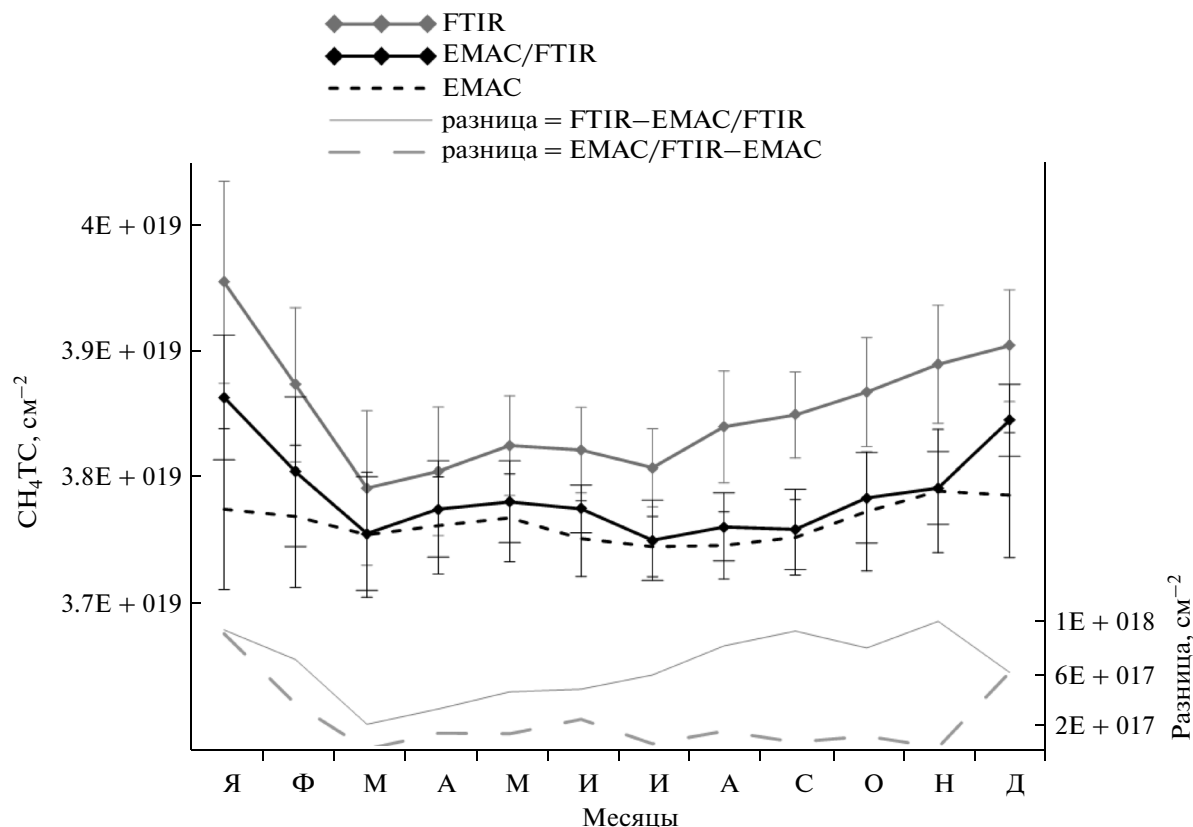


Рис. 1. Средний годовой ход общего содержания CH_4 за 2009–2012 гг. по данным Фурье-спектрометрии и модели EMAC, а также разница между средними годовыми ходами: (FTIR–EMAC/FTIR) и (EMAC/FTIR–EMAC).

расчетов модели EMAC (2009–2012 гг.) [9]. К анализу привлечены как результаты Фурье-спектрометрических измерений за 2009–2013 гг. (см., например, работу [8]), так и данные локального мониторинга метана в атмосфере за 2013 г. Для круглосуточных измерений концентрации CH_4 используется газоанализатор Los Gatos Research GGA – 24г-EP. Погрешность измерений данной аппаратуры составляет (0.3–1) ppbv в зависимости от времени накопления (100–5 с).

ГОДОВОЙ ХОД ОБЩЕГО СОДЕРЖАНИЯ И СРЕДНЕЙ ПО СТОЛБУ КОНЦЕНТРАЦИИ МЕТАНА

В настоящей работе для анализируемых массивов данных используются следующие обозначения:

ТС – общее содержание CH_4 во всей толще атмосферы;

MF – средняя по столбу атмосферы концентрация CH_4 , полученная путем деления общего содержания ТС метана на полное количество молекул в сухой атмосфере;

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.

На рис. 1 и 2 приведен средний годовой ход величин ТС и MF CH_4 за 2009–2012 гг., построенный по экспериментальным и модельным данным (рис. 1 и 2). Также приведена разница между средними годовыми ходами: (FTIR–EMAC/FTIR) и (EMAC/FTIR – EMAC).

Общее содержание CH_4 . Годовые изменения общего содержания CH_4 , полученные как по экспериментальным данным FTIR ТС, так и по выборочному модельному массиву EMAC/FTIR ТС, имеют схожий вид: два локальных минимума в марте и в июле и максимумы – январский и майский. Амплитуда годового хода общего содержания CH_4 для массивов FTIR ТС и EMAC/FTIR ТС составляет 2.1% и 1.5% соответственно.

Разница между этими годовыми ходами (FTIR ТС–EMAC/FTIR ТС), представленная на рис. 1, изменяется в пределах от 0.5% (март) до 2.6% (ноябрь) и имеет выраженную сезонность, возрастая в осеннее время (сентябрь–ноябрь) Предполага-

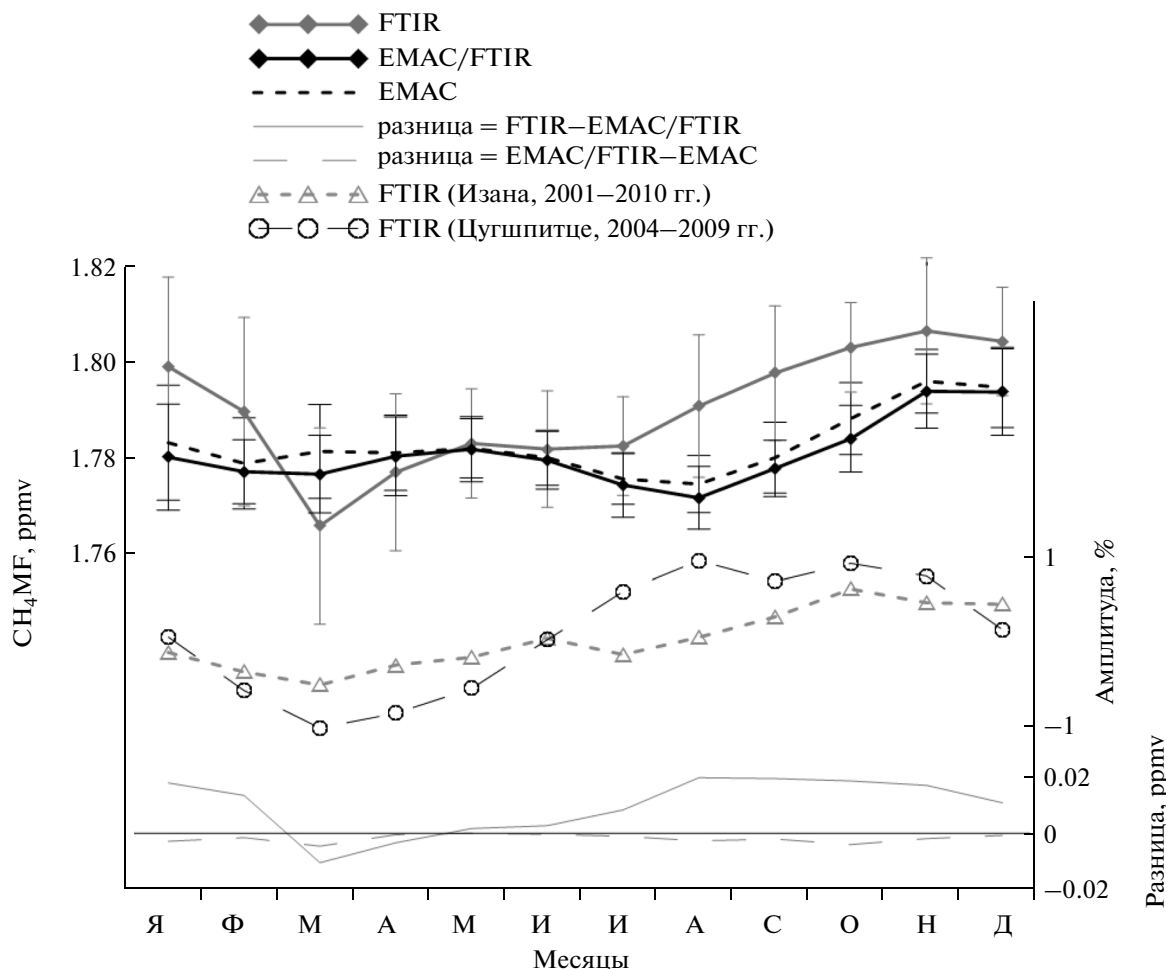


Рис. 2. Средний годовой ход средней по столбу атмосферы концентрации CH_4 за 2009–2012 гг. по данным Фурье-спектрометрии и модели EMAC, а также разница между средними годовыми ходами: (FTIR–EMAC/FTIR) и (EMAC/FTIR–EMAC).

ется, что это обусловлено недоучетом естественных источников метана в модели EMAC [10].

Ранее опубликованные результаты наших измерений с использованием классического спектрометра низкого разрешения СИКС (солнечный ИК-спектрометр) [11], показали, что для периода 1991–2007 гг. средний годовой ход с амплитудой ~3% имел максимум в декабре–январе и минимум в июне–августе, что отличается от годового хода по данным Фурье-спектрометрии (2009–2012 гг.). Однако годовые изменения для отдельных лет могут различаться как по характеру, так и по амплитуде. Например, по измерениям СИКС в 2006 г. наблюдался максимум в феврале и два минимума в апреле и сентябре [11], что схоже с сезонными изменениями FTIR TC (рис. 1). В 1998 и 2002 гг. была зафиксирована аномально высокая амплитуда годового хода, которая примерно в два раза превышала среднюю [11].

Средние по столбу атмосферы концентрации CH_4 . Из рис. 1 и 2 видно, что при переходе от общего содержания TC CH_4 к величинам средней по столбу концентрации MF CH_4 годовой ход изменяется.

Для данных FTIR MF мартовский минимум годового хода стал более выраженным, летний минимум практически исчез; максимум наблюдается в ноябре вместо января (как для TC CH_4). На рис. 3 для сравнения даны графики, соответствующие годовым изменениям FTIR MF за 2013 г. и 2009–2012 гг. Так, например, в 2013 г. весенний минимум наблюдался в течение двух месяцев – марта и апреля, в июле было зарегистрировано уменьшение CH_4 до уровня весеннего минимума. Максимумы отмечались в мае–июне и сентябре.

Выборочный массив EMAC/FTIR MF сохранил экстремумы в марте, августе и мае, а зимний максимум также переместился с января на ноябрь. Амплитуды годового хода MF CH_4 меньше,

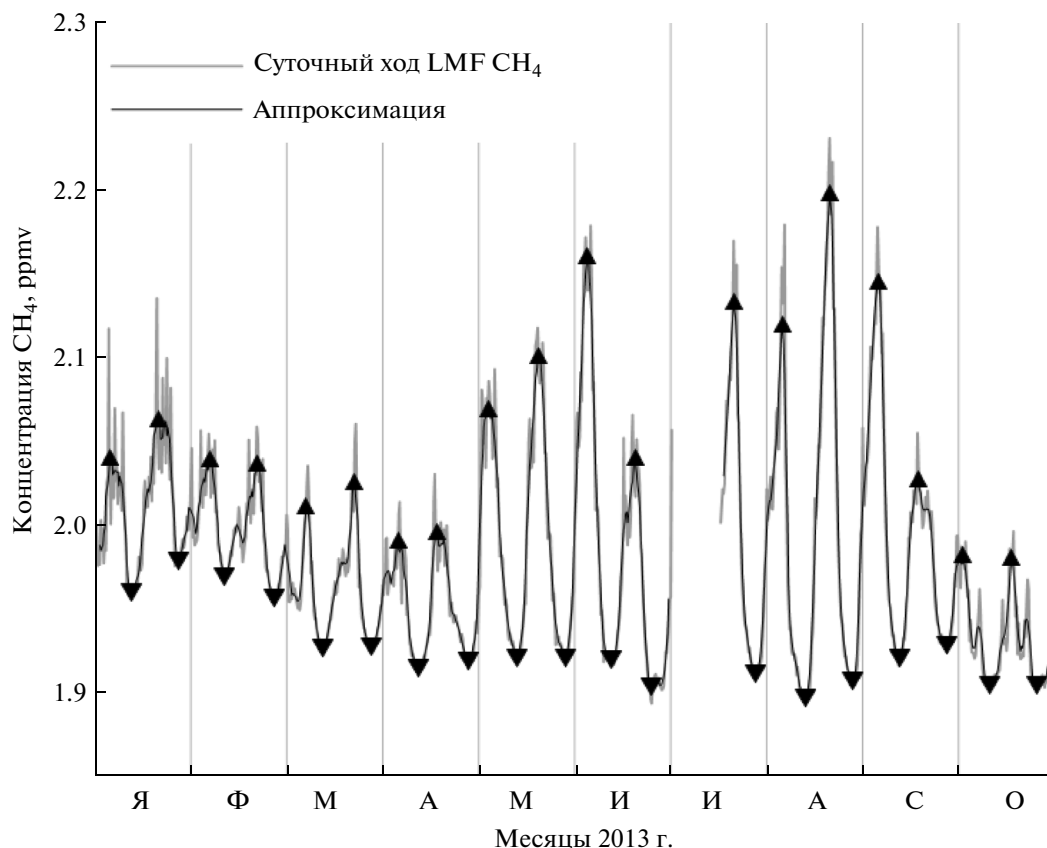


Рис. 3. Годовые изменения CH_4 : FTIR MF (2013 г., Петергоф); минимальные приземные концентрации (2013 г., Петергоф); приземные концентрации (Baltic Sea, 2002–2009 гг.); суточный максимум приземных концентраций (2013 г., Петергоф); средний годовой ход FTIR MF (2009–2012 г., Петергоф).

чем для ТС CH_4 , соответствующие значения приведены в третьем столбце табл. 1.

Сопоставим наши оценки с результатами, опубликованными в работах [12, 13], где анализировался годовой ход MF CH_4 для станций Цугшпитце и Изана (табл. 1). С увеличением широты приблизительно на $\sim 30^\circ$ амплитуда сезонных колебаний MF CH_4 возрастает примерно на 0.5%. Полученные нами модельные оценки амплитуды годового хода характерны скорее для субтропической станции Изана, чем для станции Петергоф.

Годовые изменения на станциях Изана и Цугшпитце, выраженные в процентах от среднего MF CH_4 , даны на рис. 2 (правая верхняя ось Y). Для субтропической станции Изана годовой ход заимствован из рис. 12 работы [13], а для среднеширотной станции Цугшпитце – из рис. 11 статьи [12].

Из рис. 2 видно, что годовые изменения для станций Петергоф и Изана, несмотря на разницу в амплитудах, ближе по характеру, чем годовые изменения для Петергофа и Цугшпитце. Отметим, что для всех трех пунктов измерений наблюдается

Таблица 1. Данные о географическом положении, периодах измерений и значениях амплитуд сезонного хода для станций Изана, Цугшпитце и Петергоф

Данные	Изана (TCCON), 28° 18' N, 16° 29' W, 2370 м. над уровнем моря	Цугшпитце (NDACC), 47.42° N, 10.98° E, 2964 м над уровнем моря	Петергоф, 59.88° N, 29.82° E, 20 м над уровнем моря		
	Анализируемый период	2001–2010	2004–2009	2009–2012	
Анализируемый ряд	FTIR MF	FTIR MF	FTIR MF	EMAC/FTIRMF	EMAC MF
Амплитуда годового хода, %	0.6	0.94	1.1	0.6	0.6

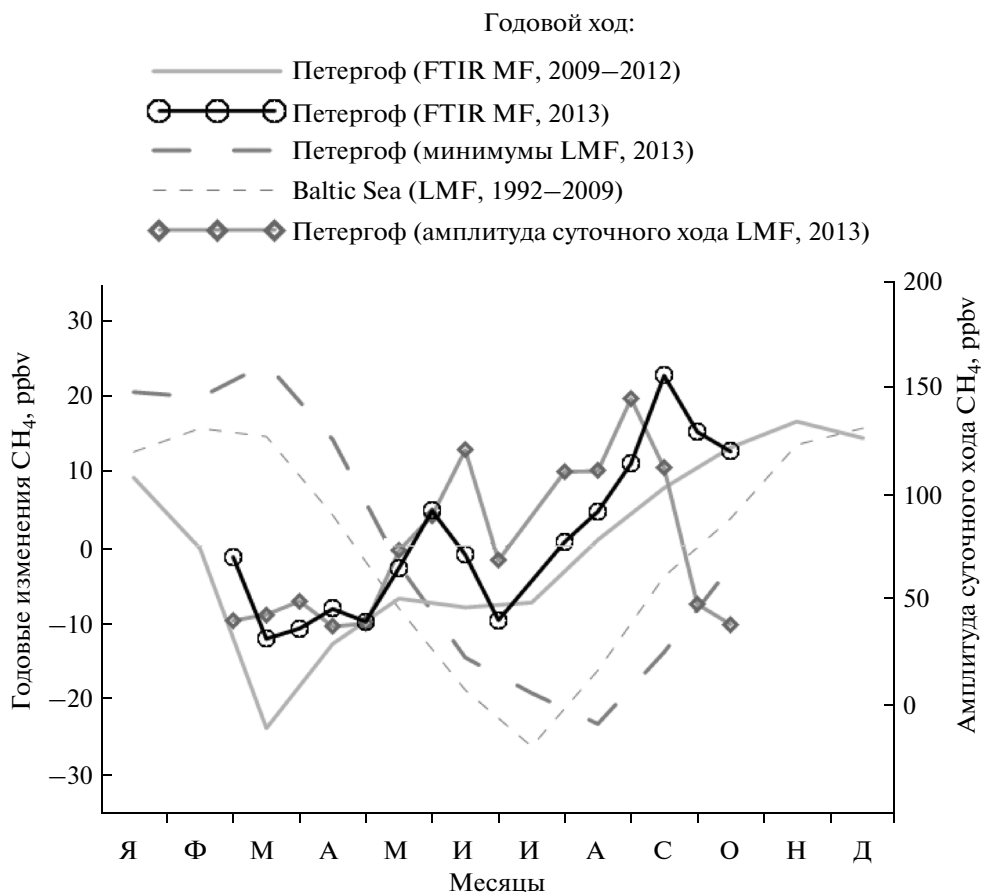


Рис. 4. Суточный ход концентрации метана (2013 г., Петергоф).

четко выраженный мартовский минимум, при этом положение максимумов индивидуально для каждой станции: август – Цугшпитце; октябрь – Изана; ноябрь – Петергоф. Некоторые различия годового хода в осенне-зимний период могут быть связаны с недостаточностью статистики измерений в холодный сезон для нашей станции.

В работе [13] вид сезонного хода FTIR MF, полученного на станции Изана, объясняется в основном годовыми колебаниями высоты тропопаузы. Действительно, анализ данных метеозондирования на станции Воейково (59.95°N , 30.70°E , ВМО № 26063) [14], проведенный нами, подтвердил, что высота тропопаузы обычно имеет минимум в феврале–марте, а максимум – в октябре–ноябре (это совпадает с минимумом и максимумом годового хода MF CH_4).

Однако кроме высоты тропопаузы за формирование годового хода MF CH_4 отвечает еще ряд факторов [10, 12, 15, 16]: сезонные изменения источников и стоков, стратосферные процессы (помимо уже упомянутой высоты тропопаузы), тропосферно-стратосферный обмен. При этом, как минимум, два фактора (высота тропопаузы и ин-

тенсивность эмиссии метана) имеют близкие положения экстремумов – зима–начало весны и вторая половина лета–осень [17].

Несмотря на то, что станция в Петергофе не относится к высокоширотным, при анализе зимних и весенних результатов измерений CH_4 необходимо учитывать процессы в полярной стратосфере. Зимой циркумполярный вихрь может смещаться и на некоторое время захватывать также и широты $\sim 60^\circ \text{N}$ – это показал совместный анализ результатов измерений TC HCl и данных о потенциальной завихренности для нашей станции [18]. Кроме того, как отмечено в работе [19], в стратосфере средних широт (обычно выше 50°N) в течение двух месяцев после распада циркумполярного вихря могут сохраняться области с остатками воздуха вихря. Поскольку для зимней полярной стратосферы характерны низкие содержания CH_4 [20], это может привести к большей изменчивости зимних и весенних значений MF CH_4 , регистрируемых на станции Петергоф, по сравнению, например, с субтропическими станциями типа Изаны ($\sim 28^\circ \text{N}$). Для конкретных количественных оценок влияния циркумполярного вихря на TC и MF CH_4

требуется анализ стратосферной части содержания метана с привлечением дополнительной информации [21, 22], однако формат настоящей работы этого не предполагает.

Если экспериментальной информацией об основном стоке метана — концентрации ОН — мы не обладаем (известно лишь, что максимум концентрации ОН в тропосфере обычно приходится на июнь—июль), то мы можем попытаться качественно оценить изменения интенсивности эмиссии метана для нашего региона от месяца к месяцу, используя данные локальных измерений приземной концентрации (LMF) CH_4 , имеющиеся для станции Петергоф с января по октябрь 2013 г.

На рис. 3 представлены суточные вариации LMF CH_4 , осредненные по полумесячному интервалу (т.е. для каждого месяца на рис. 3 приведены два суточных хода). В первой половине июля 2013 г. данные отсутствуют, поскольку измерения не проводились. Известно, что минимальные дневные значения приземной концентрации CH_4 зависят в большей степени от активности процессов перемешивания и высоты погранслоя, а не от интенсивности источников метана [15]. В ночное время относительно слабые вертикальные движения и наличие инверсий вызывают накопление в нижней тропосфере метана, выделяемого источниками [23].

Сравним годовые изменения трех величин за 2013 г. (рис. 4): FTIR MF CH_4 , минимальных (абсолютных месячных минимумы) приземных концентраций LMF CH_4 , а также амплитуду суточного хода приземных концентраций CH_4 (половина разницы между экстремумами аппроксимирующей функции, они отмечены треугольными символами на рис. 3).

Минимальные значения LMF можно рассматривать в качестве характеристики регионального фона для станции Петергоф. Для имеющихся десяти месяцев наблюдений в 2013 г. они показали характерные для приземных концентраций изменения, близкие к среднему годовому ходу (1992–2009 гг.) для станции Baltic Sea (ближайшая к нам станция NOAA/CMDL, 55.35° N, 17.22° E, 3 м над уровнем моря) [24]. Из рис. 4 видно, что сезонные вариации FTIR MF CH_4 и минимальных LMF находятся в противофазе, в то время как амплитуда суточного хода показывает единую динамику изменений с FTIR MF CH_4 [10]. Например, в конце июня — начале июля 2013 г. наблюдался минимум FTIR MF, более глубокий по сравнению со средним годовым ходом 2009–2012 г. Он совпал как с периодом максимума ОН, так и с “провалом” суточного хода LMF.

Оценка влияния метеорологических условий при Фурье-спектрометрических измерениях на годовую ход ТС и MF CH_4

Используем результаты моделирования для оценки влияния метеорологических условий на средний (за 2009–2012 гг.) годовую ход CH_4 , получаемый по данным Фурье-спектрометрических измерений. Будем считать, что для полного модельного массива ЕМАС мы получаем “истинный” годовую ход метана в атмосфере, а для выборочного ЕМАС/FTIR — “измеренный”.

Общее содержание. Анализ показал, что средняя амплитуда годового хода ЕМАС/FTIR ТС в два с половиной раза выше соответствующей оценки для ЕМАС ТС (0.6%). Видно (см. нижнюю часть рис. 1), что разница среднемесячных значений (ЕМАС/FTIR ТС–ЕМАС ТС) положительна в течение всего года. Наиболее существенные отличия “измеренного” годового хода от “истинного” имеют место в период с декабря по февраль, при этом максимальное значение разницы (ЕМАС/FTIR ТС–ЕМАС ТС) достигает ~2.3% в январе. Если положение минимумов до и после выборки дат Фурье-наблюдений сохранилось, то максимум с ноября переместился на январь (см. рис. 1).

Средняя по столбу атмосферы концентрация. Годовые изменения, полученные по массивам ЕМАС MF и ЕМАС/FTIR MF (см. рис. 2), совпадают по амплитуде и характеру, единственное отличие состоит в отсутствии мартовского минимума для ЕМАС MF. В отличие от общего содержания, среднемесячные значения выборочного массива ЕМАС/FTIR MF лежат ниже, чем для полного ЕМАС MF. Их разность (ЕМАС/FTIR MF–ЕМАС MF) не имеет четко выраженной сезонности.

Полученный результат показывает, что влияние метеорологических условий особенно сильно проявляется в зимнее время, когда световой день короток и количество солнечных дней со стабильной атмосферой мало. Полученные нами отличия объясняются тем, что большая часть Фурье-спектрометрических измерений прямого солнечного излучения приходится на периоды антициклональной устойчивой погоды (высокое давление и нисходящие, растекающиеся по горизонтали потоки воздуха).

ДОЛГОВРЕМЕННЫЕ ИЗМЕНЕНИЯ ТС CH_4

Оценка долговременных изменений метана для 2009–2012 гг. проводилась по шести массивам: FTIR ТС, ЕМАС/FTIR ТС, ЕМАС ТС и FTIR MF, ЕМАС/FTIR MF, ЕМАС MF. Для полных модельных рядов ЕМАС брался весь массив данных за 2009–2012 гг. Для FTIR и ЕМАС/FTIR использовались данные только тех месяцев, где Фурье-спектрометрические измерения есть в те-

Таблица 2. Оценки долговременных изменений ТС и MF за 2009–2012 гг.

Долговременное измерение	Общее содержание (ТС)			Средняя по столбу атмосферы концентрация (MF)		
	FTIR	EMAC/FTIR	EMAC	FTIR	EMAC/FTIR	EMAC
Массив						
Линейный тренд, % в год	0.18 ± 0.18	0.21 ± 0.12	0.20 ± 0.05	0.18 ± 0.12	0.21 ± 0.05	0.24 ± 0.02

Таблица 3. Данные о трендах MF CH₄ для станций Петергоф, Гармиш и Цугшпитце

Станция	Гармиш	Цугшпитце	Петергоф	
Период измерений	2006–2011		2009–2012	2009–2013
Тренд, ppbv в год	5.1 ± 0.9	4.8 ± 1.0	3.2 ± 2.1	2.3 ± 1.4

чение всех четырех лет (для исключения влияния сезонных изменений CH₄) – это период с марта по июль включительно и октябрь. Отметим, что различные методы оценки долговременного тренда дают практически совпадающие результаты [5].

Полученные нами значения линейного тренда и соответствующие доверительные интервалы (95%) даны в табл. 2. Видно, что экспериментальные и модельные оценки тренда метана для периода 2009–2012 гг. хорошо совпадают (~0.2% в год). Значимыми (согласно критерию Стьюдента, доверительная вероятность 95%) можно считать оценки долговременных изменений ТС CH₄ для всех массивов, кроме FTIR ТС. Отметим, что, в отличие от общего содержания (FTIR ТС), оценки линейного тренда для средних по столбу атмосферы концентраций метана (FTIR MF) являются статистически значимыми при том же значении доверительной вероятности. Это связано с большей изменчивостью значений FTIR ТС, по сравнению с FTIR MF.

При включении в анализ данных FTIR-измерений за 2013 г., значения тренда (2009–2013 гг.) уменьшаются до (0.13 ± 0.11)% в год для ТС и (0.13 ± 0.08)% в год для MF. Это позволяет предположить, что период резкого роста содержания метана в атмосфере, начавшийся в 2006 г. и зарегистрированный различными измерительными системами [4–7], закончился.

В табл. 3 сведены данные о трендах MF CH₄ (в единицах ppbv) для трех пунктов FTIR-измерений: Петергоф, Гармиш (TCCON, 47.48° N, 11.06° E, 743 м над уровнем моря) и Цугшпитце [4]. С учетом неполного совпадения периодов измерений и отличия в географическом положении, можно считать, что значения трендов MF CH₄ для всех трех станций имеют близкие значения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

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

1. Годовые изменения общего содержания (ТС) CH₄ имеют два локальных минимума (в марте и в июле) и январский максимум. Амплитуда годового хода ТС CH₄ для этих массивов данных составляет 2.1% и 1.5% соответственно. Разница между экспериментальным и модельным годовым ходом имеет выраженную сезонность, что, вероятно, обусловлено недоучетом в модели EMAC эмиссии метана из естественных источников.

2. Для средней по столбу атмосферы концентрации (MF) CH₄ максимум годового хода наблюдается в ноябре, при этом амплитуды годового хода MF CH₄ меньше, чем для ТС CH₄, и составляют для экспериментальных данных – 1.1%, для модели – 0.6%.

3. В 2013 г. сезонные вариации средней по столбу атмосферы концентрации CH₄ и амплитуды суточного хода локальной приземной концентрации CH₄ имели единую динамику изменений.

4. Анализ, проведенный с использованием результатов модели EMAC, показал, что атмосферные условия, характерные для дней Фурье-спектрометрических измерений, могут влиять на получаемые характеристики годового хода:

– средняя амплитуда годового хода общего содержания CH₄ для выборочного массива (даты спектрометрических измерений) EMAC/FTIR ТС в два с половиной раза выше, чем для полного модельного массива EMAC ТС. Разница (EMAC/FTIR ТС – EMAC ТС) положительна для всех месяцев и достигает максимума (~2.3%) в январе. Положение экстремумов годового хода ТС CH₄ не изменяется.

– годовой ход, оцененный по выборочному ряду EMAC/FTIR MF, лежит ниже годового хода

EMAC MF, при этом амплитуды и характер годового хода для обоих массивов в целом сохраняются.

5. Данные Фурье-спектрометрических измерений и результаты расчетов модели EMAC показывают рост содержания метана в атмосфере со скоростью около 0.2% в год (2009–2012 гг.). Включение данных измерений за 2013 г. приводит к уменьшению тренда до ~0.13% в год.

Экспериментальные исследования выполнены при частичной поддержке гранта РФФИ (№ 14-05-00897). Обработка и анализ данных осуществлялись при финансировании Российского научного фонда (№ 14-07-00096).

Измерения осуществлялись на научном оборудовании Ресурсного центра СПбГУ “Геомодель”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Forster P., Ramaswamy V., Artaxo P. 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>
2. Гинзбург 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.
3. 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.
4. 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.
5. Angelbratt J., Mellqvist J., Blumenstock T. et al. A new method to detect long term trends of methane (CH₄) and nitrous oxide (N₂O) 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.
6. Dlugokencky E.J., Bruhwiler L., White J.W.C. et al. Observational constraints on recent increases in the atmospheric CH₄ burden // Geophys. Res. Lett. 2009. V. 36. L18803, doi:10.1029/2009GL039780.
7. 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.
8. Gavrilov N.M., Makarova M.V., Poberovskii A.V., Timofeyev Yu.M. Comparisons of CH₄ 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.
9. Jöckel P., Tost H., Pozzer A., Brühl C. et al. The atmospheric chemistry general circulation model ECHAM5/MESSty1: 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.
10. Patra P.K., Houweling S., Krol M. et al. TransCom model simulations of CH₄ and related species: linking transport, surface flux and chemical loss with CH₄ variability in the troposphere and lower stratosphere // Atmos. Chem. Phys. 2011. V. 11. P. 12813–12837, doi:10.5194/acp-11-12813-2011.
11. 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.
12. 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.
13. Sepúlveda E., Schneider M., Hase F. et al. Long-term validation of tropospheric column-averaged CH₄ mole fractions obtained by mid-infrared ground-based FTIR spectrometry // Atmos. Meas. Tech. 2012. V. 5. P. 1425–1441, doi:10.5194/amt-5-1425-2012.
14. Данные метеозондирования: <http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>
15. Saito R., Patra P.K., Deutscher N. et al. Technical Note: Latitude-time variations of atmospheric column-average dry air mole fractions of CO₂, CH₄ and N₂O // Atmos. Chem. Phys. 2012. V. 12. P. 7767–7777, doi:10.5194/acp-12-7767-2012.
16. Patra P.K., Takigawa M., Ishijima K. et al. Growth Rate, Seasonal, Synoptic, Diurnal Variations and Budget of Methane in the Lower Atmosphere // J. Meteorol. Soc. 2009. V. 87. № 4. P. 635–663, doi:10.2151/jmsj.87.635
17. Chen Y., Prinn R.G. Atmospheric modeling of high-and low-frequency methane observations: Importance of interannually varying transport // J. Geophys. Res. 2005. V. 110. D10303, doi:10.1029/2004JD005542.
18. 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.
19. Konopka P., Groß J.-U., Bausch S. et al. Dynamics and chemistry of vortex remnants in late Arctic spring 1997 and 2000: Simulations with the Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) // Atmos. Chem. Phys. 2003. V. 3. P. 839–849, doi:10.5194/acp-3-839-2003.
20. Lahoz W.A., Geer A.J., Orsolini Y.J. Northern Hemisphere stratospheric summer from MIPAS observations // Quart. J. Roy. Meteorol. Soc. 2007. V. 133. № 622. P. 197–211. doi: 10.1002/qj.24.
21. Washenfelder R.A., Wennberg P.O., Toon G.C. Tropospheric methane retrieved from ground-based near-IR solar absorption spectra // Geophys. Res. Lett. 2003. V. 30. № 23, 2226, doi:10.1029/2003GL017969.
22. Luo M., Cicerone R.J., Russell III J.M. Analysis of Halogen Occultation Experiment HF versus CH₄ correlation plots: Chemistry and transport implications // J. Geophys. Res. 1995. V. 100. № D7. P. 13927–13937, doi: 10.1029/95JD00621.
23. 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.
24. GLOBALVIEW-CH₄: Cooperative Atmospheric Data Integration Project – Methane. <http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/globalview/>

Annual Cycle and Long-Term Trend of the Methane Content in the Atmosphere over the St. Petersburg Region

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

^a St. Petersburg State University, Ul'yanovskaya ul. 1, Petergof, 198504 Russia

e-mail: zaits@troll.phys.spbu.ru

^b Karlsruhe Institute of Technology, Kaiserstrasse 12, 76131 Germany

e-mail: ole.kirner@kit.edu

Received January 10, 2014; in final form, March 13, 2014

Abstract—The annual cycle and long-term trend of the methane content in the atmosphere over the Petergof station (St. Petersburg State University) are analyzed on the basis of data obtained from Fourier-transform infrared spectrometry and EMAC-model calculations. The amplitude of the annual cycle of the total content of CH₄ amounts to 2.1% and 1.5% according to experimental and model data, respectively. For the atmospheric column-averaged mole fraction of CH₄, the amplitude of its annual cycle is smaller than that for its total content and amounts to 1.1% and 0.6% according to experimental and model data, respectively. The results of local continuous measurements of surface CH₄ concentrations showed that, in 2013, the atmospheric column-averaged mole fractions of CH₄ and the amplitudes of diurnal variations in its local concentration were characterized by the same dynamics of seasonal variations. An analysis made on the basis of simulation results showed that atmospheric conditions (under which Fourier-transform spectrometer measurements were performed) could increase the amplitude of the annual cycle of the total content of CH₄ 2.5 times when compared to the true one. The results of Fourier-transform spectrometry and EMAC-model calculations showed that, during 2009–2012, the atmospheric concentration of CH₄ increased at a rate of ~0.2% per year. If measurement data obtained in 2013 are added, this rate decreases to ~0.13% per year.

Keywords: methane trends, annual cycle, methane, Fourier-transform spectrometry, local measurements, transport-photochemical simulation