

<https://doi.org/10.30758/0555-2648-2020-66-1-66-81>
УДК 551.510.41



ОРИГИНАЛЬНАЯ СТАТЬЯ

ORIGINAL ARTICLE

ВАРИАЦИИ МЕТАНА В АТМОСФЕРЕ АНТАРКТИДЫ В 2009–2017 гг. ПО ДАННЫМ НАЗЕМНЫХ И СПУТНИКОВЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

В.П. УСТИНОВ*, Е.Л. БАРАНОВА, К.Н. ВИШЕРАТИН, М.И. ГРАЧЕВ, А.В. КАЛЬСИН

ФГБУ Научно-производственное объединение «Тайфун», г. Обнинск, Россия

*ustinov@rpatyphoon.ru

Резюме

Представлены результаты систематических измерений (2009–2017 гг.) общего содержания и средней по высоте концентрации метана на ст. Новолазаревская. Рассчитанные значения линейных трендов и параметров внутригодовых колебаний атмосферного метана сопоставлены с данными анализа вариаций приземных концентраций метана на станциях Сёва (Sywa), Халли (Halley Station) и Амундсен-Скотт (Amundsen-Scott South Pole Station), общего содержания метана на станции Арривал-Хайтс (Arrival-Heights), а также спутниковыми данными AIRS. Средние значения и тренд общего содержания метана на ст. Новолазаревская и ст. Арривал-Хайтс хорошо согласуются. Для периода измерений 2009–2014 гг. тренд средней по высоте объемной концентрации метана на ст. Новолазаревская совпадает в пределах погрешности с трендом приземных концентраций метана на станциях Сёва, Халли и Амундсен-Скотт, однако в 2015–2016 гг. согласно данным ст. Новолазаревская, Арривал-Хайтс и спутниковым данным наблюдалось замедление роста концентраций метана. Для вариаций средней по высоте объемной концентрации на ст. Новолазаревская и концентрации метана по данным AIRS, наряду с годовыми колебаниями, характерны значительные полугодовые вариации. Для всех рассмотренных рядов построена статистическая модель, которая аппроксимирует трендовую, годовую и полугодовую составляющие колебаний CH_4 .

Ключевые слова: Антарктида, метан, наземные и спутниковые измерения, общее содержание, спектральный анализ.

Для цитирования: Устинов В.П., Баранова Е.Л., Вишератин К.Н., Грачев М.И., Кальсин А.В. Вариации метана в атмосфере Антарктиды в 2009–2017 гг. по данным наземных и спутниковых измерений // Проблемы Арктики и Антарктики. 2020. Т. 66. Вып. 1. С. 66–81. <https://doi.org/10.30758/0555-2648-2020-66-1-66-81>.

Поступила 13.11.2019

После переработки 21.02.2020

Принята 11.03.2020

VARIATIONS OF METHANE IN THE ANTARCTIC ATMOSPHERE IN 2009–2017 BY GROUND-BASED AND SATELLITE DATA

VLADIMIR P. USTINOV*, EKATERINA L. BARANOVA, KONSTANTIN N. VISHERATIN,
MIKHAIL I. GRACHEV, ANATOLY V. KALSIN

Federal State Budgetary Institution "Research and Production Association "Typhoon"",
Obninsk, Russia

*ustinov@rpatyphoon.ru

Summary

The article presents the results of systematic measurements (2009–2017) of the total column abundances of methane (TC_{CH₄}) and the column-averaged concentration (X_{CH₄}) at the Antarctic station Novolazarevskaya. Solar radiation is recorded in the range 2990–3006 cm⁻¹ using a diffraction spectrometer with 0.2 cm⁻¹ resolution. The inverse task CH₄ total column determining is achieved using the SFIT4 v0.9.4.4 code. The analysis shows that during the measurement period the average TC_{CH₄} was (3.4±0.8)·10¹⁹ molecules/cm² during the measurement period, and the average X_{CH₄} is (1663±34) ppbv. TC_{CH₄} trend is (4.5±2.2)·10¹⁵ molecules/cm²/month, and X_{CH₄} trend is (0.28 ± 0.11) ppbv/month. The average TC_{CH₄} values and trend at Novolazarevskaya are in good agreement with the measurements by the Brucker 120HR instrument at the Arrival Heights station. Seasonal variations of atmospheric methane have the maximum in October–November and the minimum in May–July. The trends of surface methane concentrations at Sywa, the Halley station and the Amundsen-Scott South Pole station are 0.59–0.61 ppbv/month and exceed the trend of the column-averaged concentration at Novolazarevskaya and AIRS trends for the troposphere (0.24–0.32) ppbv/month, due to a decrease in the maximal values of TC_{CH₄} in the period after 2014. The closest agreement of X_{CH₄} variations at Novolazarevskaya with AIRS data is observed at the levels of 150–200 hPa. Significant semiannual harmonics varied with height are characteristic of CH₄ variations according to the AIRS data. The interference of annual and semiannual harmonics leads to the appearance of two maxima in the seasonal variations of methane with relative position to each other varies with height. The statistical model is developed for all the series considered. It approximates the trend, annual and semi-annual components of CH₄ oscillations.

Keywords: Antarctica, ground and satellite data, methane, spectral analysis, total content.

For Citation: Ustinov V.P., Baranova E.L., Visheratin K.N., Grachev M.I., Kalsin A.V. Variations of methane in the Antarctic atmosphere in 2009–2017 by ground-based and satellite data. *Problemy Arktiki i Antarktiki*. Arctic and Antarctic Research. 2020, 66 (1): 66–81. [In Russian]. <https://doi.org/10.30758/0555-2648-2020-66-1-66-81>.

Received 11.13.2019

Revised 02.21.2020

Accepted 03.11.2020

ВВЕДЕНИЕ

Метан — один из важнейших парниковых газов атмосферы — является предметом многочисленных исследований в связи с его значительным вкладом в современное потепление климата. Рост содержания парниковых газов в атмосфере в индустриальную эпоху связан с изменением мощности их источников и стоков, как антропогенных, так и естественных [1–3]. Метан не имеет атмосферного источника, приблизительно равное количество метана поступает в атмосферу от естественных (биогенных) и антропогенных источников с земной поверхности [3–6].

Разрушение молекул CH₄ в тропосфере происходит в реакции с гидроксидом OH (~90 %), а в приземном также в реакции с атомами хлора в приповерхностном слое атмосферы над морем и при поглощении почвенными бактериями [2–4]. В работах последних лет показано, что наблюдаемое потепление и высвобождение гидратов метана может приводить к дополнительным источникам метана в приполярных областях и покрытых льдом территориях Гренландии и Антарктиды [4, 7]. В то же время рост температуры приводит к изменению скорости химических реакций и увеличению вклада реакций с атомами хлора в сток атмосферного метана [4, 8]. В атмосфере Антарктиды наблюдаемые вариации метана и других парниковых газов в первую очередь определяются естественными причинами, что делает Антарктиду уникальным полигоном для исследования газового состава атмосферы.

Мониторинг метана в атмосфере Земли осуществляется различными методами. Локальные приземные концентрации CH_4 определяются на сети международных станций NOAA (www.esrl.noaa.gov) и GAW (<https://gaw.kishou.go.jp/>). Для определения общего содержания и вертикального распределения CH_4 в настоящее время используются различные спутниковые системы наблюдений [9], а также приборы высокого спектрального разрешения на сети наземных станций NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change, <https://www2.acom.ucar.edu/irwg/groups>) и TCCON (Total Carbon Column Observation Network, <https://tcccon-wiki.caltech.edu>). В отличие от локальных измерений приземных концентраций, спектроскопические методы определения общего содержания газов малочувствительны к вариациям газов в приземном слое. Аппаратура и результаты измерений в России общего содержания CH_4 спектроскопическим методом были представлены ранее в публикациях ИФА РАН [10,11], СПбГУ [9,12,13] и НПО «Тайфун» [14]. В 2003 г. НПО «Тайфун» совместно с ААНИИ начали работы по развертыванию аппаратуры и мониторингу на станции Новолазаревская в Антарктиде общего содержания ряда парниковых и других газов. Результаты анализа вариаций общего содержания окиси углерода в атмосфере Антарктиды в 2003–2017 гг. были рассмотрены ранее в [15].

Цель настоящей работы заключается в анализе результатов систематических измерений общего содержания и средней по высоте относительной объемной концентрации метана на российской антарктической станции Новолазаревская и сопоставление с данными других наземных станций, а также со спутниковыми данными.

АППАРАТУРА И АНАЛИЗИРУЕМЫЕ ДАННЫЕ

Наблюдения на станции Новолазаревская (70,78° ю.ш., 11,82° в.д., 120 м над уровнем моря) осуществляются спектрометрическим комплексом аппаратуры [14], состоящим из системы слежения за Солнцем, спектрометра и ЭВМ, обеспечивающей управление комплексом, запись и хранение информации. Спектральное разрешение спектрометра составляет $0,2 \text{ см}^{-1}$. Для определения общего содержания (OC_CH_4) регистрируется солнечное излучение в интервале 2990–3006 см^{-1} , содержащем вращательную линию P2 полосы поглощения метана ν_3 с центром около 3018,92 см^{-1} и ряд линий водяного пара. Измерения проводятся по прямому солнечному излучению при высотах Солнца более 15°. Время записи одного спектра 4,5 мин. Комплекс находится в отдельно стоящем измерительном павильоне, поворотное зеркало следящей системы установлено на крыше. Через отверстие в крыше солнечное излучение попадает на оптическую систему согласования со спектрометром.

Являясь продолжением и развитием предыдущих работ [16], данная работа существенно отличается методикой расчета: для решения обратной задачи определения общего содержания CH_4 , а также мешающих газов (H_2O) был использован пакет программ SFIT4 v0.9.4.4 (The University Corporation for Atmospheric Research, <https://wiki.ucar.edu/display/sfit4/>), разработанный для спектрометров высокого разрешения. Нами была проведена адаптация этого пакета применительно к прибору низкого разрешения МДР-23, установленному на ст. Новолазаревская. Для этого были разработаны программа привязки спектров по частоте и формирования структурированного входного файла, программа определения зенитного угла Солнца, программа формирования и визуализации выходных данных. В качестве атласа спектральных линий был использован атлас HITRAN-2012 [17], априорные профили температуры, давления и профилей газов заимствовались из Whole Atmosphere Community

Climate Model (<https://www2.acom.ucar.edu/gcm/waccm>) и задавались такими же, как и для ст. Сёва. Инструментальная среднеквадратическая погрешность единичных измерений содержания, оцененная по повторяемости результатов в течение дня, составляет 5 %. Для сопоставления с данными, полученными другими методами (измерения в пробах приземного воздуха и спутниковые данные), общее содержание метана в столбе атмосферы (OC_CH_4 , молек/см²) пересчитывалось для сухого воздуха в среднюю по высоте объемную концентрацию X_CH_4 в ppbv (млрд⁻¹). Для этого использовались данные о приземном давлении, а общее содержание водяного пара определялось по линиям водяного пара, содержащимся в регистрируемых спектрах.

Результаты измерений общего содержания метана OC_CH_4 на ст. Арривал-Хайтс (77,82° ю.ш., 166,65° в.д., 184 м над уровнем моря), входящей в сеть станций наблюдения NDACC, были заимствованы из [18]. Измерения на этой станции проводятся спектроскопическим методом с помощью прибора высокого разрешения (0,0035 см⁻¹) Bruker IFS120HR в спектральных интервалах 2613,7–2615,4 см⁻¹, 2835,5–2835,8 см⁻¹, 2921,0–2921,6 см⁻¹. Результаты измерений приземных концентраций метана на ст. Сёва (69,00° ю.ш., 39,58° в.д., 11 м над уровнем моря), Халли (75,605° ю.ш., 26,21° з.д., 10 м над уровнем моря) и Амундсен-Скотт (90° ю.ш., 0° в.д., 2835 м над уровнем моря) заимствовались из [19]. На этих станциях проводится еженедельный забор проб воздуха во флаги с последующим анализом с использованием калибровочных смесей, с погрешностью менее 3 ppbv. Спутниковые данные AIRS (Atmospheric Infrared Sounder, Daytime/Ascending, AIRS3STM-v006, Version 6 Level 2 data) содержатся в базе данных Giovanni [20]. Прибор AIRS на борту спутника AQUA позволяет получать информацию о профилях метана и других газов. Точность определения концентраций метана составляет 1,2–1,5 %, с максимальной чувствительностью вблизи 200 гПа (<https://airs.jpl.nasa.gov>). Данные измерений концентрации метана X_CH_4 прибором AIRS для уровней от 5 до 1000 гПа усреднялись для ячеек 4×4°, охватывающих станции Новолазаревская и Арривал-Хайтс.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ ПО ДАННЫМ НАЗЕМНЫХ СТАНЦИЙ

Вариации метана на ст. Новолазаревская, ст. Арривал-Хайтс и на ст. Сёва (рис. 1) демонстрируют межгодовые изменения общего содержания и приземных концентраций метана в атмосфере Антарктиды. Отметим, что привлеченные для сравнения данные приземных измерений на станциях Халли и Амундсен-Скотт практически не отличаются от данных ст. Сёва и на рис. 1 не показаны. Для станций Новолазаревская и Арривал-Хайтс вариации общего содержания метана, представленные на рис. 1а, не имеют ярко выраженной зависимости от сезона в сравнении с сезонными изменениями приземной концентрации на станции Сёва (рис. 1б), что обусловлено пропусками в измерениях в период полярной ночи.

Расчеты показали, что за период измерений на ст. Новолазаревская среднее OC_CH_4 составило $(3,4 \pm 0,8) \cdot 10^{19}$ молек/см², а средняя по высоте объемная концентрация X_CH_4 — (1663 ± 34) ppbv. За этот же период на станции Арривал-Хайтс среднее OC_CH_4 равно $(3,39 \pm 0,06) \cdot 10^{19}$ молек/см² и хорошо согласуется с нашими данными. Тренды для общих содержаний метана OC_CH_4 на ст. Арривал-Хайтс и ст. Новолазаревская за период 2009–2017 гг. составляют $(5,0 \pm 1,6) \cdot 10^{15}$ молек/(см²·мес⁻¹) и $(4,5 \pm 2,2) \cdot 10^{15}$ молек/(см²·мес⁻¹) соответственно и, в пределах погрешности, совпадают. Приземные концентрации метана на ст. Сёва (CH_4 Сёва) превышают в среднем данные X_CH_4 на ст. Новолазаревская на 95 ppbv. Относительная разность

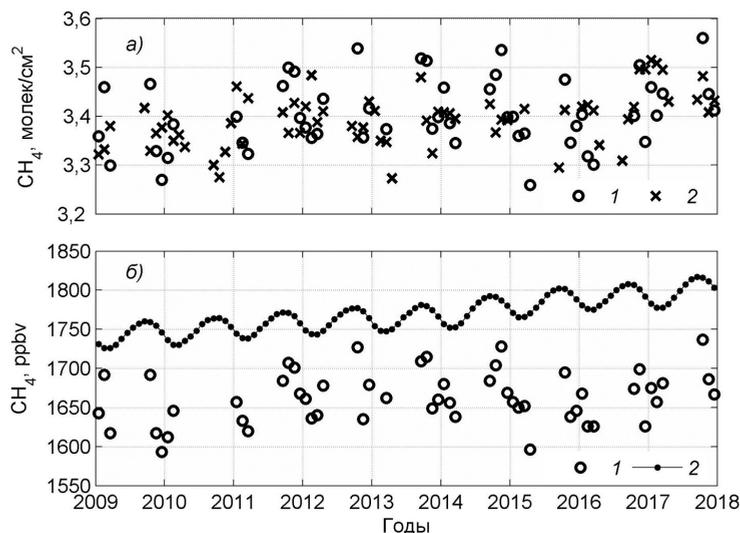


Рис. 1. Вариации метана на ст. Новолазаревская, ст. Арривал-Хайтс и на ст. Сёва.

a — среднемесячные значения общего содержания метана (OC_CH₄) на станциях Новолазаревская (1) и Арривал-Хайтс (2), *б* — среднемесячные средние по высоте концентрации метана (X_CH₄) на станции Новолазаревская (1) и приземные концентрации на станции Сёва (2). Размерность общего содержания метана (*a*) составляет 10¹⁹ молек/см².

Fig. 1. Methane variations at Novolazarevskaya, Arrival Heights and at Sywa.

a — monthly mean total column abundances of methane (TC_CH₄) at Novolazarevskaya stations (1) and Arrival Heights (2), *б* — monthly mean column averaged mixing ratio of methane (X_CH₄) at Novolazarevskaya station (1) and surface concentrations at Sywa station (2). Total column values of methane (*a*) are given in 10¹⁹ molecules/cm²

(CH₄ Сёва – X_CH₄)/CH₄ Сёва составляет в среднем 5 % и совпадает с оценками [21], полученными при сопоставлении приземных концентраций и средних по высоте концентраций метана на ст. Изанья. В работе [22] было проведено сопоставление результатов измерений общего содержания метана за 2005–2014 гг. на 10 станциях NDACC и измерений приземных концентраций в пробах воздуха. Отмечено хорошее согласие межгодовых вариаций и трендов при наличии систематических отклонений в абсолютных значениях. Систематические отклонения между приземными и средними по высоте концентрациями метана были проанализированы в [21, 23] и связаны с используемыми профилями концентрации метана и сезонной изменчивостью высоты тропопаузы.

Для большинства измерительных сезонов во внутригодовом ходе содержания метана на ст. Новолазаревская проявляются два максимума: основной в октябре – ноябре и более слабый в декабре – январе. Так как данные измерений имеют значительные пропуски в течение полярной ночи, для проведения дальнейшего анализа такие пропуски были заполнены по методике [24]. На первом этапе из рядов был вычтен найденный ранее линейный тренд, и с помощью модифицированного Фурье преобразования [25], позволяющего проводить анализ рядов содержащих пропуски, были определены параметры годовой и полугодовой гармоник.

Найденные с помощью спектрального анализа параметры годовой и полугодовой гармоник (амплитуда и фаза) использовались, в качестве первого приближения, для аппроксимации экспериментальных данных. Общее выражение, аппроксими-

рующее тренд, годовую и полугодовую составляющие колебаний CH_4 , имеет следующий вид:

$$Y = A_0 + T \cdot N + A_{12} \cdot \sin(P_{12} + 2\pi \cdot N/12) + A_6 \cdot \sin(P_6 + 2\pi \cdot N/6), \quad (1)$$

где A_{12} и A_6 — амплитуды, P_{12} и P_6 — фазы годовой и полугодовой гармоник (радианы), A_0 — начальное значение тренда, T — тренд, N — порядковый номер месяца, начиная с января 2009 г. по декабрь 2017 г.

Значения параметров выражения (1), найденные итеративным методом наименьших квадратов, приведены в табл. 1.

Таблица 1

Параметры тренда и колебаний CH_4 по данным наземных измерений

Table 1

CH_4 trend and oscillation parameters according to the ground-based data

Измерения	A_0	T	A_{12}	P_{12}	A_6	P_6
ОС_СН ₄ ст. Новолазаревская	3,36	0,00045	0,082	2,6	0,046	4,98
ОС_СН ₄ ст. Арривал-Хайтс	3,32	0,00050	0,056	1,3	0,021	5,08
X_СН ₄ ст. Новолазаревская	1638	0,28	36,7	2,5	22,2	4,88
Приземная концентрация CH_4 ст. Сёва	1736	0,61	16,0	3,2	1,4	2,68

Примечание: К отрицательным значениям фазы добавлено 2π . Жирным шрифтом выделены параметры, значимые при доверительной вероятности 95 %. A_0 — начальное значение тренда в январе 2009 г., T — значение тренда за месяц, A_{12} , A_6 — амплитуды, P_{12} , P_6 — фазы годовой и полугодовой гармоник. Для приземных данных ст. Сёва и X_СН₄ размерность A_0 , A_{12} , A_6 в ppbv, T — в ppbv/мес для X_СН₄ и в 10^{19} молек/см² для ОС_СН₄.

Note: 2π has been added to negative phase values. Parameters that are significant with a confidence level of 95 % are highlighted in bold. A_0 is the initial trend value in January 2009, T is the trend value for the month, A_{12} , A_6 are the amplitudes, P_{12} , P_6 are the phases of the annual and semi-annual harmonics. Syowa surface data and X_СН₄ dimensions A_0 , A_{12} , A_6 are in ppbv, T — in ppbv/month for X_СН₄ and 10^{19} molecules/cm² for TC_СН₄.

На следующем этапе пропуски в рядах данных были заполнены значениями, полученными при расчетах по формуле (1) с параметрами из табл. 1. Аналогичные расчеты были проведены для остальных рассматриваемых рядов. Ряды ОС_СН₄ с заполненными пропусками и результаты спектрального анализа этих рядов для ст. Новолазаревская и ст. Арривал-Хайтс представлены на рис. 2.

По результатам спектрального анализа во всех временных рядах выделяются годовые гармоники, а для ст. Новолазаревская и ст. Арривал-Хайтс также полугодовые вариации и колебания с периодами 20–45 мес., однако длина рядов недостаточна для более детального анализа длиннопериодных вариаций. Сезонный ход X_СН₄ и ОС_СН₄ на ст. Новолазаревская имеет максимум в октябре–ноябре и минимум в мае–июле. В вариациях X_СН₄ и ОС_СН₄ на ст. Новолазаревская и ст. Арривал-Хайтс проявляются достаточно сильные полугодовые колебания, которые формируют второй, более слабый максимум в декабре–январе.

Анализ вариаций источников и стоков метана за 1910–2010 гг. на основе данных о содержании метана в ядрах льда, а также прямых измерений приземных концентраций на станциях Кейп-Грим и Саммит был проведен в работе [4]. Согласно представленным в [4] данным, скорость роста приземной концентрации метана в Антарктиде

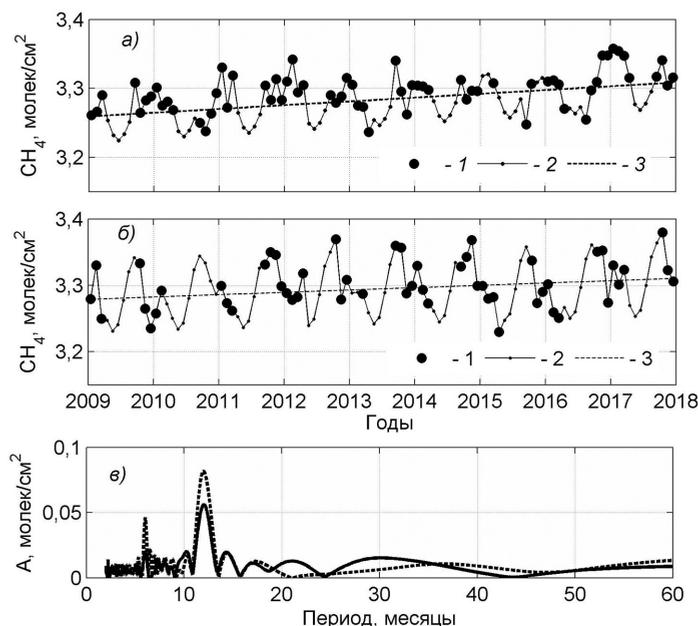


Рис. 2. Ряды OC_CH_4 с заполненными пропусками и результаты спектрального анализа. *a* – временной ряд OC_CH_4 на ст. Арривал-Хайтс: (1) — данные измерений, (2) — расчет по формуле (1), (3) — тренд; *б* — то же для ст. Новолазаревская; *в* — амплитудные спектры для ст. Арривал-Хайтс (сплошная линия) и ст. Новолазаревская (штриховая линия). Размерность всех значений составляет 10^{19} молек/см²

Fig. 2. TC_CH_4 time series with filled gaps and the results of spectral analysis.

a – methane total column time series at Arrival Hights: (1) — measurement data, (2) — calculations according to formula (1), (3) – trend; *б* – the same for Novolazarevskaya; *в* — amplitude spectra for Arrival Hights (solid line) and Novolazarevskaya (dashed line). All values are given in 10^{19} molecules/cm²

в 1910–1950 гг. была умеренной (5,1 ppbv/год). Наиболее быстрый рост (13,6 ppbv/год) наблюдался в 1950–1990 гг., сменившись вновь на умеренный (6,7 ppbv/год) в 1990-е гг. В первой половине 2000-х гг. рост практически отсутствовал, а в 2007–2010 гг. вновь наблюдался умеренный рост (5,7 ppbv/год), что несколько меньше тренда концентрации метана за 2009–2017 гг. на ст. Сёва (7,3 ppbv/год, табл. 1).

Измерения общего содержания метана в Антарктиде немногочисленны. Результаты измерений общего содержания метана на ст. Молодежная в 1977–1978 гг. и ст. Мирный в 1982–1990 гг. с помощью спектрометра с разрешением 0,2–0,3 см⁻¹ были представлены в работе [26]. Погрешность единичного измерения составляла ±(8–10) %, хотя внутримесячные вариации иногда достигали 20 %. За весь период измерений значимый положительный тренд составил 0,5 % (6,7 ppbv/год), что примерно в 2 раза меньше оценок, приведенных в работах [4, 27] для периода, предшествовавшего 1990-м гг. В работе [26] использовались единицы измерений общего содержания атм·см, для нормальных условий 1 атм·см = 2,69·10¹⁹ молек/см². Для перевода общего содержания U в среднюю по высоте концентрацию в [26] применялось соотношение $X_CH_4 = U/H$, где U в атм·см, $H = 7,9$ км.

В работе [16] были рассмотрены результаты измерений общего содержания метана на ст. Новолазаревская за 2003–2006 гг. Усовершенствованная аппаратура

и методика обработки спектров позволили выделить сезонный ход содержания CH_4 максимумом в декабре и минимумом в апреле. Согласно рис. 3, приведенному в [16], на ст. Новолазаревская за период с 2003 по 2006 г. амплитуда вариаций метана значительно увеличилась, причем происходил рост максимальных и падение минимальных значений. Среднее значение содержания метана за период измерений (1,28 атм·см, или $3,44 \cdot 10^{19}$ молек/см²) существенно превышает данные ст. Арривал-Хайт ($3,32 \cdot 10^{19}$ молек/см²) за этот же период. Согласно [16] в 2003–2006 гг. положительный тренд составил 0,2 %, что противоречит имеющимся данным о глобальной тенденции замедления и даже падения концентрации метана в первой половине 2000 гг. Оценки трендов метана для ст. Сёва и ст. Арривал-Хайтс за 2003–2006 гг. дают значения 0,03 %/год и минус 0,46 %/год соответственно. В настоящей работе результаты измерений в 2003–2008 гг. не рассматриваются, т.к. обработка данных измерений за 2003–2008 гг. показала нерегулярные систематические отклонения и значительный разброс в полученных концентрациях, что, вероятно, обусловлено тем, что в этот период аппаратура и методика неоднократно модернизировались [15]. Результаты работы [26] были привлечены авторами [16] также для расчета трендов общего содержания метана за более длительный период 1977–1992 гг. Оценка тренда метана составила 0,8 % в сравнении со значением 0,5 %, полученным в [26] для периода 1977–1990 гг.

СОПОСТАВЛЕНИЕ НАЗЕМНЫХ И СПУТНИКОВЫХ НАБЛЮДЕНИЙ МЕТАНА

Представляет интерес сопоставление данных наземных измерений и информации об изменчивости концентрации метана с высотой и с течением времени по спутниковым данным. В качестве примера на рис. 3 приведены среднемесячные значения концентрации CH_4 по данным AIRS для изобарических уровней 925–30 гПа над ст. Новолазаревская.

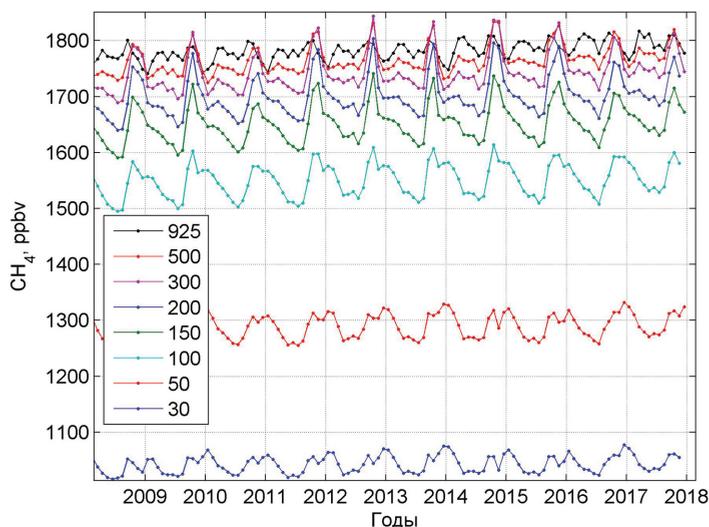


Рис 3. Среднемесячные значения концентрации CH_4 по данным AIRS для уровней 925–30 гПа над ст. Новолазаревская

Fig. 3. AIRS monthly mean values of CH_4 for levels 925–30 hPa above Novolazarevskaya

Для данных AIRS, представленных на рис. 3, характерны заметные полугодовые колебания. Если для нижней тропосферы (ниже 300 гПа) максимумы колебаний в основном наблюдаются в октябре, то вблизи и выше тропопаузы (30–100 гПа) появляются дополнительные максимумы в декабре – январе. Для того чтобы оценить изменчивость с высотой тренда полугодовых и годовых колебаний метана, так же, как и для наземных данных, был проведен спектральный анализ и были рассчитаны входящие в формулу (1) параметры. Зависимости параметров колебаний CH₄ от высоты представлены в табл. 2.

Таблица 2

Параметры тренда и колебаний метана над ст. Новолазаревская по данным AIRS

Table 2

CH₄ trend and oscillation parameters over the station Novolazarevskaya according to AIRS

Уровень, гПа	<i>A0</i>	<i>T</i>	<i>A12</i>	<i>P12</i>	<i>A6</i>	<i>P6</i>
5	352	0,02	3,6	1,5	2,2	0,0
15	711	0,05	9,7	1,6	4	6,1
30	1039	0,08	18	1,1	4	4,6
50	1282	0,13	27	1,6	3	5,0
100	1541	0,18	36	1,2	10	2,6
150	1639	0,26	36	1,9	19	3,5
200	1688	0,28	35	1,5	24	2,4
250	1712	0,31	32	1,6	26	2,4
300	1727	0,34	28	2,3	26	3,5
400	1743	0,33	23	1,9	24	2,5
500	1750	0,32	18	2,0	20	2,5
600	1755	0,30	13	2,6	18	3,6
700	1759	0,29	10	2,1	15	2,7
850	1763	0,29	10	3,4	15	2,9
925	1768	0,28	8	4,2	16	4,1

Примечание: К отрицательным значениям фазы добавлено 2π. Жирным шрифтом выделены параметры, значимые при доверительной вероятности 95 %. 0 — начальное значение тренда в январе 2009 г., *T* — значение тренда за месяц, *A12*, *A6* — амплитуды, *P12*, *P6* — фазы годовой и полугодовой гармоник. Размерности *A0*, *A12*, *A6* в ppbv, *T* — в ppbv/мес, *P12* и *P6* — в радианах.

Note: 2π has been added to negative phase values. In bold parameters that are significant with a confidence level of 95 % are highlighted. *A0* is the initial trend value in January 2009, *T* is the trend value for the month, *A12*, *A6* are the amplitudes, *P12*, *P6* are the phases of the annual and semi-annual harmonics. The dimensions *A0*, *A12* and *A6* are in ppbv, *T* are in ppbv/month, and *P12* and *P6* are in radians.

Из табл. 2 следует, что ниже тропопаузы среднее значение начальной (*A0*) концентрации CH₄ примерно постоянно. Тренд (*T*) достигает максимума на уровне 300–400 гПа (0,34 ppbv/мес) и далее с высотой уменьшается. Заметное изменение с высотой происходит и с амплитудами и фазами годовой и полугодовой гармоник. Амплитуда годовой гармоник (*A12*) достигает максимума на уровнях 100–150 гПа, а полугодовой (*A6*) — на уровнях 250–300 гПа. Значительные амплитуды полугодовой гармоник приводят к интерференции годового и полугодового колебаний и появлению во внутригодовых вариациях метана двух максимумов, положение которых относительно друг друга меняется с высотой. У поверхности Земли мак-

симумы вариаций наблюдаются в апреле – мае и августе – октябре, а минимумы в январе – феврале и июне – июле. С ростом высоты экстремумы наступают позже, и для средней тропосферы (300–600 гПа) задержка составляет около месяца. Более детальное рассмотрение изменчивости фаз гармоник колебаний с высотой показало, что вблизи поверхности Земли максимумы A_{12} приходятся на июль, на уровнях 600–700 гПа смещаются на сентябрь – октябрь и на уровнях выше 400–500 гПа приходятся в среднем на декабрь, т.е. с ростом высоты происходит задержка фазы годового колебания. Таким образом, вариации годовой гармоник у поверхности Земли находятся примерно в противофазе с вариациями в верхней тропосфере и нижней стратосфере. Фаза полугодовой гармоник достаточно стабильна для высот 100–925 гПа, с максимумами в апреле – мае и октябре – ноябре (минимумы в январе – феврале и июле – августе).

Сопоставление X_{CH_4} по данным ст. Новолазаревская и данных AIRS показало, что достаточно хорошее согласие как для амплитуды, так и для фазы вариаций метана наблюдается для области максимальной чувствительности AIRS на уровне 150–200 гПа (рис. 4). Близки или совпадают величины тренда, амплитуды годовой и полугодовой гармоник (см. табл. 1 и 2). В нижних слоях тропосферы (850–925 гПа) сезонный ход концентрации CH_4 по данным AIRS примерно соответствует данным приземных измерений на ст. Сёва (см. рис. 4).

Вместе с тем следует отметить, что, в отличие от данных AIRS, в вариациях метана в приземном слое на ст. Сёва отсутствуют значительные полугодовые вариации, что, вероятно, связано с фильтрацией результатов приземных измерений метана в пробах воздуха [17]. Кроме того, имеется различие в значениях трендов. Тренд ст. Сёва и тренды приземных концентраций метана на других рассмотренных

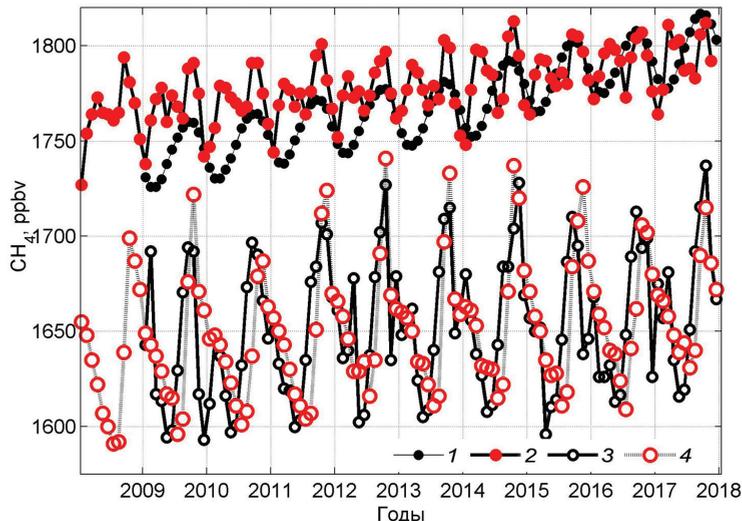


Рис. 4. Вариации приземных концентраций CH_4 на ст. Сёва (1) и средней по высоте концентрации X_{CH_4} на ст. Новолазаревская (3) и концентраций CH_4 по данным AIRS на уровне 850 гПа (2) и 150 гПа (4)

Fig. 4. Variations of surface CH_4 concentration at Sywa (1), column average concentration X_{CH_4} at Novolazarevskaya (3) and CH_4 concentrations according to AIRS at 850 hPa (2) and 150 hPa (4)

станциях, Халли и Амундсен-Скотт, практически совпадают (0,59–0,61) ppbv/мес и значительно превосходят тренды AIRS для нижней тропосферы и тренд средней по высоте объемной концентрации метана на ст. Новолазаревская. Указанное расхождение связано с тем, что имеются различия во временном ходе концентраций метана после 2014 г. Если приземные концентрации метана в 2009–2017 гг. на ст. Сёва приблизительно равномерно росли, то на ст. Новолазаревская и Арривал-Хайтс в 2015–2016 гг. наблюдалось уменьшение общего содержания метана, причем в первую очередь максимальных величин. Следует отметить, что по данным AIRS начиная с 2015 г. для уровней 150–600 гПа рост максимальных значений CH_4 также замедлился и даже начал уменьшаться, в то время как тенденция роста минимальных значений сохранилась (см. рис. 3). Расчеты трендов за отдельные периоды измерений показали, что тренд X_{CH_4} на ст. Новолазаревская за 2009–2014 гг. (0,6±0,1) ppbv/мес совпадает с трендом приземных концентраций на ст. Сёва, а увеличение анализируемого периода (2009–2015, 2009–2016 гг. и т.д.) приводит к уменьшению величины тренда.

Причины, по которым наблюдаемое по данным ст. Новолазаревская, ст. Арривал-Хайтс и спутниковым данным замедление роста CH_4 в 2015–2016 гг. не наблюдалось для данных приземных измерений на ст. Сёва, неясны. Отметим, что общая тенденция связана с падением максимальных общих содержаний метана в период антарктической весны, т.е. после разрушения циркумполярного вихря. Для дальнейшего анализа необходимо более детально рассмотреть происходившие в этот период процессы в нижней стратосфере — верхней тропосфере и, в частности, вариации высоты тропопаузы и температуры.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ результатов измерений OS_{CH_4} в 2009–2017 гг. показал, что на ст. Новолазаревская за период измерений среднее OS_{CH_4} составило $(3,4 \pm 0,8) \cdot 10^{19}$ молек/см², а средняя по высоте объемная концентрация X_{CH_4} — (1663 ± 34) ppbv. Тренд OS_{CH_4} равен $(4,5 \pm 2,2) \cdot 10^{15}$ молек/(см²·мес⁻¹), тренд X_{CH_4} $(0,28 \pm 0,11)$ ppbv/мес. Средние значения и тренд OS_{CH_4} на ст. Новолазаревская хорошо согласуются с данными измерений на ст. Арривал-Хайтс, а тренд средней по высоте объемной концентрации метана X_{CH_4} — с данными AIRS для уровней 150–925 гПа. Тренды приземных концентраций метана на станциях Сёва, Халли и Амундсен-Скотт для периода измерений с 2009 по 2014 г. совпадают в пределах погрешности с трендом X_{CH_4} на ст. Новолазаревская. В 2015–2016 гг. по данным ст. Новолазаревская, Арривал-Хайтс и спутниковым данным наблюдалось замедление роста и некоторое уменьшение максимальных величин общего содержания и концентраций метана.

Сезонный ход OS_{CH_4} и X_{CH_4} на ст. Новолазаревская имеет максимум в октябре–ноябре и минимум в мае–июле, причем в вариациях метана проявляются значительные полугодовые колебания. Для вариаций концентраций CH_4 по данным AIRS наряду с годовыми колебаниями также характерны значительные полугодовые вариации, амплитуда и фаза которых меняется с высотой, что приводит к интерференции годового и полугодового колебаний и появлению во внутригодовых вариациях метана двух максимумов, положение которых относительно друг друга меняется с высотой. Для всех рассмотренных рядов построены статистические модели, аппроксимирующие тренд, годовую и полугодовую составляющие колебаний CH_4 .

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Благодарности. Авторы выражают благодарность В.Ф. Радионову за помощь в организации работ в Антарктиде. Авторы признательны коллективам ученых, предоставивших доступ к базам данных: Giovanni online data system, Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center, Network for the Detection of Atmospheric Composition Change, NOAA Global Monitoring Division, Earth System Research Laboratory, а также двум анонимным рецензентам, замечания которых позволили значительно улучшить рукопись статьи.

Competing interests. The authors have no competing interests.

Acknowledgments. The authors are grateful to V.F. Radionov for assistance in the arrangement of activities in Antarctica. The authors are grateful to the research teams that provided the access to the following databases: Giovanni online data system, Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center, Network for the Detection of Atmospheric Composition Change, NOAA Global Monitoring Division, Earth System Research Laboratory, as well as to the anonymous reviewers whose comments allowed to improve significantly the content of this paper.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кондратьев К.Я., Крапивин В.Ф. Моделирование глобального круговорота углерода М.: Физматлит, 2004. 336 с.
2. Семенов С.М., Говор И.Л., Уварова Н.Е. Роль метана в современном изменении климата. М., 2018. 106 с.
3. Saumois M., Bousquet P., Poulter B., Peregon A., Ciais P., Canadell J.G., Dlugokencky E.J., Etiope G., Bastviken D., Houweling S., Janssens-Maenhout G., Tubiello F.N., Castaldi S., Jackson R.B., Alexe M., Arora V.K., Beerling D.J., Bergamaschi P., Blake D.R., Brailsford G., Brovkin V., Bruhwiler L., Crevoisier C., Crill P., Covey K., Curry C., Frankenberg C., Gedney N., Höglund-Isaksson L., Ishizawa M., Ito A., Joos F., Kim H.-S., Kleinen T., Krummel P., Lamarque J.-F., Langenfelds R., Locatelli R., Machida T., Maksyutov S., McDonald K.C., Marshall J., Melton J.R., Morino I., Naik V., O'Doherty S., Parmentier F.-J.W., Patra P.K., Peng C., Peng S., Peters G.P., Pison I., Prigent C., Prinn R., Ramonet M., Riley W.J., Saito M., Santini M., Schroeder R., Simpson I.J., Spahni R., Steele P., Takizawa A., Thornton B.F., Tian H., Tohjima Y., Viovy N., Voulgarakis A., van Weele M., van der Werf G.R., Weiss R., Wiedinmyer C., Wilton D.J., Wiltshire A., Worthy D., Wunch D., Xu X., Yoshida Y., Zhang B., Zhang Z., Zhu Q. The global methane budget 2000–2012 // *Earth System Science Data*. 2016. V. 8 (2). P. 697–751. <https://doi.org/10.5194/essd-8-697-2016>.
4. Ghosh A., Patra P.K., Ishijima K., Umezawa T., Ito A., Etheridge D.M., Sugawara S., Kawamura K., Miller J.B., Dlugokencky E.J., Krummel P.B., Fraser P.J., Steele L.P., Langenfelds R.L., Trudinger C.M., White J.W.C., Vaughn B., Saeki T., Aoki S., Nakazawa T. Variations in global methane sources and sinks during 1910–2010 // *Atmos. Chem. Phys.* 2015. V. 15. P. 2595–2612.
5. Zhu R., Liu Y., Ma E., Sun J. Nutrient compositions and potential greenhouse gas production in penguin guano, ornithogenic soils and seal colony soils in coastal Antarctica // *Antarctic Science*. 2009. V. 21 (5). P. 427–438. <https://doi.org/10.1017/s0954102009990204>.
6. Bates T.S., Kelly K.C., Johnson J.E., Gammon R.H. A reevaluation of the open ocean source of methane to the atmosphere // *JGR: Atmospheres*. 1996. V. 101. P. 6953–6961.
7. Lamarche-Gagnon G., Wadham J.L., Lollar B.S., Arndt S., Fietzek P., Beaton A.D., Tedstone A.J., Telling J., Bagshaw E.A., Hawkings J.R., Kohler T.J., Zarsky J.D., Mowlem M.C., Anesio A.M., Stibal M. Greenland melt drives continuous export of methane from the ice-sheet bed // *Nature*. 2019. V. 565 (7737). P. 73–77. doi: 10.1038/s41586-018-0800-0.

8. Allan W., Lowe D.C., Gomez A.J., Struthers H., Brailsford G.W. Interannual variation of ^{13}C in tropospheric methane: Implications for a possible atomic chlorine sink in the marine boundary layer // *J. Geophys. Res.* 2005. V. 110. D11306, doi:10.1029/2004JD005650.
9. Тимофеев Ю.М. Исследования атмосферы методом прозрачности. СПб.: Наука, 2016. 368 с.
10. Дворяшина Е.В., Дианов-Клоков В.И. Результаты спектроскопических измерений содержания метана в атмосфере Северного полушария (1974–1984 гг.) // *Известия АН СССР. Физика атмосферы и океана.* 1986. Т. 22. № 1. С. 87–89.
11. Ракитин В.С., Штабкин Ю.А., Еланский Е.Ф., Панкратова Н.В., Скороход А.И., Гречко Е.И., Сафронов А.Н. Результаты сопоставления спутниковых измерений общего содержания CO , CH_4 и CO_2 с наземными спектроскопическими данными // *Оптика атмосферы и океана.* 2015. Т. 28. № 9. С. 816–824.
12. Макарова М.В., Поберовский А.В., Тимофеев Ю.М. Спектроскопические измерения общего содержания метана в районе Санкт-Петербурга // *Известия РАН. Физика атмосферы и океана.* 2001. Т. 37. № 1. С. 67–73.
13. Макарова М.В., Кирнер О., Тимофеев Ю.М., Поберовский А.В., Имхасин Х.Х., Осипов С.И., Макаров Б.К. Годовой ход и долговременный тренд содержания атмосферного метана в районе Санкт-Петербурга // *Известия РАН. Физика атмосферы и океана.* 2015. Т. 51. № 4. С. 493–501.
14. Кашин Ф.В., Арефьев В.Н., Вишератин К.Н., Каменоградский Н.Е., Семенов В.К., Сияяков В.П. Результаты экспериментальных исследований радиационно-активных составляющих атмосферы в центре Евразии // *Известия РАН. Физика атмосферы и океана.* 2000. Т. 36. № 4. С. 463–492.
15. Устинов В.П., Баранова Е.Л., Вишератин К.Н., Грачев М.И., Кальсин А.В. Вариации окиси углерода в атмосфере Антарктиды по данным наземных и спутниковых измерений // *Исследования Земли из космоса.* 2019. № 2. С. 97–106.
16. Кашин Ф.В., Радионов В.Ф., Гречко Е.И. Вариации общего содержания окиси углерода и метана в Антарктической атмосфере // *Известия РАН. Физика атмосферы и океана.* 2007. Т. 43. № 4. С. 96–102.
17. Rothman L.S., Gordon I.E., Babikov I.E., Barbe A., Benner C.D., Bernath P.F., Birk M., Bizzocchi L., Boudon V., Brown L.R., Campargue A., Chance K., Cohen E.A., Coudert L.H., Devi V.M., Drouin B.J., Fayt A., Flaud J.-M., Gamache R.R., Harrison J.J., Hartmann J.-M., Hill C., Hodges J.T., Jacquemart D., Jolly A., Lamouroux J., Le Roy R.J., Li G., Long D.A., Lyulin O.M., Mackie C.J., Massie S.T., Mikhailenko S., Müller S.P., Naumenko O.V., Nikitin A.V., Orphal J., Perevalov V., Perrin A., Polovtseva E.R., Richard C., Smith M.A.H., Starikova E., Sung K., Tashkun S., Tennyson J., Toon G.C., Tyuterev V.I.G., Wagner G. The HITRAN 2012 molecular spectroscopic database // *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.* 2013. V. 130. P. 4–50. doi:10.1016/j.jqsrt.2013.07.002.2013.
18. Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC). URL: <ftp://ftp.epc.noaa.gov/ndacc/station/arrival/hdf/fir/> (дата обращения 21.01.2020).
19. Dlugokencky E.J., Lang P.M., Crotwell A.M., Masarie K.A. Atmospheric methane dry air mole fractions from the NOAA Earth System Research Laboratory. 2012. URL: ftp://aftp.cmdl.noaa.gov/data/trace_gases/cn4/flask/surface (дата обращения 21.01.2020).
20. Acker J. G., Leptoukh G. Online Analysis Enhances Use of NASA Earth Science Data // *Eos, Trans. AGU.* 2007. V. 88. № 2. P. 14–17. URL: <https://giovanni.gsfc.nasa.gov/giovanni/> (дата обращения 21.01.2020).
21. Sepulveda E., Schneider M., Hase F., Garcia O.E., Gomez-Pelaez A., Dohe S., Blumenstock T., Guerra J.C. Long-term validation of tropospheric column-averaged CH_4 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.
22. Bader W., Bovy B., Conway S., Strong K., Smale D., Turner A.J., Blumenstock T., Boone C., Collaud Coen M., Coulon A., Garcia O., Griffith D.W.T., Hase F., Hausmann P., Jones N., Krummel P.,

Murata I., Morino I., Nakajima H., O'Doherty S., Paton-Walsh C., Robinson J., Sandrin R., Schneider M., Servais C., Sussmann R., Mahieu E. The recent increase of atmospheric methane from 10 years of ground-based NDACC FTIR observations since 2005 // *Atmos. Chem. Phys.* 2017. V. 17. P. 2255–2277. <https://doi.org/10.5194/acp-17-2255-2017>.

23. Sepulveda E., Schneider M., Hase F., Barthlott S., Dubravica D., Garcia O.E., Gomez-Pelaez A., Gonzalez Y., Guerra J.C., Gisi M., Kohlhepp R., Dohe S., Blumenstock T., Strong K., Weaver D., Palm M., Sadeghi A., Deutscher N.M., Warneke T., Notholt, J. Jones N., Griffith D. W.T., Smale D., Brailsford G.W., Robinson J., Meinhardt F., Steinbacher M., Aalto T., Worthy D. Tropospheric CH₄ signals as observed by NDACC FTIR at globally distributed sites and comparison to GAW surface in situ measurements // *Atmospheric Measurement Techniques*. 2014. V. 7 (7). P. 2337–2360.

24. Visheratin K.N., Nerushev A.F., Orozaliev M.D., Zheng Xiangdong, Sun Shumen, Liu Li. Temporal variability of total ozone in the Asian region inferred from ground-based and satellite measurement data // *Proc. of the Academy of Sciences. Physics of the atmosphere and the ocean*. 2017. V. 53. №. 9. P. 894–903. doi: 10.1134/S000143381709033X.

25. Scargle J.D. Studies in astronomical time series analysis. Statistical aspects of spectral analysis of unevenly spaced data // *The Astrophysical Journal*. 1982. V. 263. P. 835–853.

26. Yurganov L.N., Radionov V.F. Variations in the total column abundances of atmospheric carbon monoxide and methane in the polar regions // *Antarc. Sci.* 1991. V. 3. P. 443–449.

27. Khalil M.A.K., Rasmussen R.A. Atmospheric methane: recent global trends // *Environmental Science and Technology*. 1990. V. 24. P. 549–553.

REFERENCES

1. Kondrat'ev K.Ia., Krapivin V.F. *Modelirovanie global'nogo krugovorota ugleroda*. Modeling the global carbon cycle. Moscow: Fizmatlit, 2004: 336 p. [In Russian].

2. Semenov S.M., Govor I.L., Uvarova N.E. *Rol' metana v sovremennom izmenenii klimata*. The role of methane in the modern climate change. Moscow: 2018: 106 p. [In Russian].

3. Saunio M., Bousquet P., Poulter B., Pregon A., Ciais P., Canadell J.G., Dlugokencky E.J., Etiope G., Bastviken D., Houweling S., Janssens-Maenhout G., Tubiello F.N., Castaldi S., Jackson R.B., Alexe M., Arora V.K., Beerling D.J., Bergamaschi P., Blake D.R., Brailsford G., Brovkin V., Bruhwiler L., Crevoisier C., Crill P., Covey K., Curry C., Frankenberg C., Gedney N., Höglund-Isaksson L., Ishizawa M., Ito A., Joos F., Kim H.-S., Kleinen T., Krummel P., Lamarque J.-F., Langenfelds R., Locatelli R., Machida T., Maksyutov S., McDonald K.C., Marshall J., Melton J.R., Morino I., Naik V., O'Doherty S., Parmentier F.-J.W., Patra P.K., Peng C., Peng S., Peters G.P., Pison I., Prigent C., Prinn R., Ramonet M., Riley W.J., Saito M., Santini M., Schroeder R., Simpson I.J., Spahni R., Steele P., Takizawa A., Thornton B.F., Tian H., Tohjima Y., Viovy N., Voulgarakis A., van Weele M., van der Werf G.R., Weiss R., Wiedinmyer C., Wilton D.J., Wiltshire A., Worthy D., Wunch D., Xu X., Yoshida Y., Zhang B., Zhang Z., Zhu Q. The global methane budget 2000–2012. *Earth System Science Data*. 2016, 8 (2): 697–751. <https://doi.org/10.5194/essd-8-697-2016>.

4. Ghosh A., Patra P.K., Ishijima K., Umezawa T., Ito A., Etheridge D.M., Sugawara S., Kawamura K., Miller J.B., Dlugokencky E.J., Krummel P.B., Fraser P.J., Steele L.P., Langenfelds R.L., Trudinger C.M., White J.W.C., Vaughn B., Saeki T., Aoki S., Nakazawa T. Variations in global methane sources and sinks during 1910–2010. *Atmos. Chem. Phys.* 2015, 15: 2595–2612. www.atmos-chem-phys.net/15/2595/2015/.

5. Zhu R., Liu Y., Ma E., Sun J. Nutrient compositions and potential greenhouse gas production in penguin guano, ornithogenic soils and seal colony soils in coastal Antarctica. *Antarctic Science*. 2009, 21 (5): 427–438. <https://doi.org/10.1017/s0954102009990204>.

6. Bates T.S., Kelly K.C., Johnson J.E. and Gammon R.H. A reevaluation of the open ocean source of methane to the atmosphere. *JGR: Atmospheres*. 1996, 101: 6953 – 6961.

7. Lamarche-Gagnon G., Wadham J.L., Lollar B.S., Arndt S., Fietzek P., Beaton A.D., Tedstone A.J., Telling J., Bagshaw E.A., Hawkings J.R., Kohler T.J., Zarsky J.D., Mowlem M.C., Anesio A. M., Stibal M. Greenland melt drives continuous export of methane from the ice-sheet bed. *Nature*. 2019, 565 (7737): 73–77. doi: 10.1038/s41586-018-0800-0.

8. Allan W., Lowe D.C., Gomez A.J., Struthers H., Brailsford G.W. Interannual variation of ^{13}C in tropospheric methane: Implications for a possible atomic chlorine sink in the marine boundary layer. *J. Geophys. Res.* 2005, 110: D11306, doi:10.1029/2004JD005650.

9. Timofeev Iu.M. *Issledovaniia atmosfery metodom prozrachnosti*. Study of atmosphere by a transparency method. Saint-Petersburg: Nauka, 2016: 368 p. [In Russian].

10. Dvoriashina E.V., Dianov-Klokov V.I. The results of spectroscopic measurements of the methane content in the atmosphere of the northern hemisphere (1974–1984). *Izvestiia Akademii Nauk. Fizika atmosfery i okeana*. Proc. of the Academy of Sciences. Physics of the atmosphere and the ocean. 1986, 22 (1): 87–89. [In Russian].

11. Rakitin V.S., Shtabkin Iu.A., Elanskii E.F., Pankratova N.V., Skorokhod A.I., Grechko E.I., Safronov A.N. Results of comparison of satellite and ground-based spectroscopic CO , CH_4 and CO_2 columns measurements. *Optika atmosfery i okeana*. Optics of the atmosphere and the ocean. 2015, 28 (9): 816–824. [In Russian].

12. Makarova M.V., Poberovskii A.V., Timofeev Iu.M. Spectroscopic measurements of the total methane content in the St. Petersburg region. *Izvestiia Akademii Nauk. Fizika atmosfery i okeana*. Proc. of the Academy of Sciences. Physics of the atmosphere and the ocean. 2001, 37 (1): 67–73. [In Russian].

13. Makarova M.V., Kirner O., Timofeev Iu.M., Poberovskii A.V., Imkhasin Kh.Kh., Osipov S.I., Makarov B.K. The annual course and long-term trend of atmospheric methane content in the St. Petersburg region. *Izvestiia Akademii Nauk. Fizika atmosfery i okeana*. Proc. of the Academy of Sciences. Physics of the atmosphere and the ocean. 2015, 51 (4): 493–501. [In Russian].

14. Kashin F. V., Aref'ev V. N., Visheratin K. N., Kamenogradskii N. E., Semenov V. K., Siniakov V. P. The results of experimental studies of radiation-active components of the atmosphere in the center of Eurasia. *Izvestiia Akademii Nauk. Fizika atmosfery i okeana*. Proc. of the Academy of Sciences. Physics of the atmosphere and the ocean. 2000, 36 (4): 463–492. [In Russian].

15. Ustinov V.P., Baranova E.L., Visheratin K.N., Grachev M.I., Kal'sin A.V. Variations of carbon monoxide in the atmosphere of Antarctica according to ground-based and satellite measurements. *Issledovaniya Zemli iz kosmosa*. Exploration of the Earth from space. 2019, 2: 97–106. [In Russian].

16. Kashin F.V., Radionov V.F., Grechko E.I. Variations in total carbon monoxide and methane in the Antarctic atmosphere. *Izvestiia Akademii Nauk. Fizika atmosfery i okeana*. Proc. of the Academy of Sciences. Physics of the atmosphere and the ocean. 2007, 43 (4): 96–102. [In Russian].

17. Rothman L.S., Gordon I.E., Babikov I.E., Barbe A., Benner C.D., Bernath P.F., Birk M., Bizzocchi L., Boudon V., Brown L.R., Campargue A., Chance K., Cohen E.A., Coudert L.H., Devi V.M., Drouin B.J., Fayt A., Flaud J.-M., Gamache R.R., Harrison J.J., Hartmann J.-M., Hill C., Hodges J.T., Jacquemart D., Jolly A., Lamouroux J., Le Roy R.J., Li G., Long D.A., Lyulin O.M., Mackie C.J., Massie S.T., Mikhailenko S., Müller S.P., Naumenko O.V., Nikitin A.V., Orphal J., Perevalov V., Perrin A., Polovtseva E.R., Richard C., Smith M.A.H., Starikova E., Sung K., Tashkun., Tennyson J., Toon G.C., Tyuterev V.G., Wagner G. The HITRAN 2012 molecular spectroscopic database. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*. 2013, 130: 4–50. doi:10.1016/j.jqsrt.2013.07.002.2013.

18. Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC). Available at: <ftp://ftp.cpc.ncep.noaa.gov/ndacc/station/arrival/hdf/ftir/> (accessed 21.01.2020).

19. Dlugokencky E.J., Lang P.M., Crotwell A.M., Masarie K.A. Atmospheric Methane Dry Air Mole Fractions from the NOAA Earth System Research Laboratory. 2012. Available at: ftp://aftp.cmdl.noaa.gov/data/trace_gases/cn4/flask/surface (accessed 21.01.2020).

20. Acker J.G., Leptoukh G. Online Analysis Enhances Use of NASA Earth Science Data. *Eos, Trans. AGU*. 2007, 88 (2): 14–17. Available at: <https://giovanni.gsfc.nasa.gov/giovanni/> (accessed 21.01.2020).

21. Sepulveda E., Schneider M., Hase F., Garcia O.E., Gomez-Pelaez A., Dohe S., Blumenstock T., Guerra J.C. Long-term validation of tropospheric column-averaged CH₄ mole fractions obtained by mid-infrared ground-based FTIR spectrometry. *Atmos. Meas. Tech.* 2012, 5: 1425–1441. doi:10.5194/amt-5-1425-2012.
22. Bader W., Bovy B., Conway S., Strong K., Smale D., Turner A.J., Blumenstock T., Boone C., Collaud Coen M., Coulon A., Garcia O., Griffith D.W.T., Hase F., Hausmann P., Jones N., Krummel P., Murata I., Morino I., Nakajima H., O'Doherty S., Paton-Walsh C., Robinson J., Sandrin R., Schneider M., Servais C., Sussmann R., Mahieu E. The recent increase of atmospheric methane from 10 years of ground-based NDACC FTIR observations since 2005. *Atmos. Chem. Phys.* 2017, 17: 2255–2277. <https://doi.org/10.5194/acp-17-2255-2017>.
23. Sepulveda E., Schneider M., Hase F., Barthlott S., Dubravica D., Garcia O.E., Gomez-Pelaez A., Gonzalez Y., Guerra J.C., Gisi M., Kohlhepp R., Dohe S., Blumenstock T., Strong K., Weaver D., Palm M., Sadeghi A., Deutscher N.M., Warneke T., Notholt, J. Jones N., Griffith D. W.T., Smale D., Brailsford G.W., Robinson J., Meinhardt F., Steinbacher M., Aalto T., Worthy D. Tropospheric CH₄ signals as observed by NDACC FTIR at globally distributed sites and comparison to GAW surface in situ measurements. *Atmospheric Measurement Techniques.* 2014, 7 (7): 2337–2360.
24. Visheratin K.N., Nerushev A.F., Orozaliyev M.D., Zheng Xiangdong, Sun Shumen, Liu Li. Temporal variability of total ozone in the Asian region inferred from ground-based and satellite measurement data. *Izvestiia Akademii Nauk. Fizika atmosfery i okeana.* Proc. of the Academy of Sciences. Physics of the atmosphere and the ocean. 2017, 53, 9: 894–903. doi: 10.1134/S000143381709033X.
25. Scargle J.D. Studies in astronomical time series analysis. Statistical aspects of spectral analysis of unevenly spaced data. *The Astrophysical Journal.* 1982, 263: 835–853.
26. Yurganov L.N., Radionov V.F. Variations in the total column abundances of atmospheric carbon monoxide and methane in the polar regions. *Antarctic Sci.* 1991, 3: 443–449.
27. Khalil M.A.K., Rasmussen R.A. Atmospheric methane: recent global trends. *Environmental Science and Technology.* 1990, 24: 549–553.