



Doctoral Thesis

Global warming by increased methane release and global cooling by stratospheric sulphur injections Consequences for the stratosphere

Author(s):

Kenzelmann, Patricia

Publication Date:

2009

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-005836690> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Diss. ETH No. 18241

Global warming by increased methane release and global cooling by stratospheric sulphur injections - Consequences for the stratosphere

A dissertation submitted to
ETH ZURICH

for the degree of
DOCTOR OF SCIENCE

presented by
PATRICIA KENZELMANN

Dipl. Env. ETH Zurich
born 17 January 1980
citizen of Zeneggen (VS)

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Thomas Peter, examiner
Dr. Eugene Rozanov, co-examiner
Dr. Stephan Füglistaler, co-examiner

Zurich 2009

Abstract

The stratospheric ozone layer is crucial in protecting the Earth's surface against harmful erythemal UV radiation, supports the tropospheric oxidation capacity through stratosphere-troposphere exchange, and affects through its heating the atmospheric dynamics on the synoptic scale. Numerous anthropogenic and natural forcings affect the stratospheric ozone layer on different time-scales. The largest impact refers to the rising halogen concentrations throughout the 20th century. Due to successful political sanctions halogen emissions could be vastly decreased. However, a full recovery of the ozone layer is not expected until the middle of the 21st century, depending on the development of other forcings. Both stratospheric cooling due to emissions of greenhouse gases and increases in stratospheric water vapour as observed in the last decades contribute to further ozone (O₃) depletion in the polar regions due to enhanced formation of polar stratospheric clouds (PSC). In contrast, in middle and low latitudes the stratospheric cooling is expected to slow O₃ depleting reactions and hence to lead to an enhancement of the ozone layer. Furthermore, large volcanic eruptions lead to substantial O₃ depletion due to the increase of stratospheric sulphate aerosols. Chemistry climate models (CCM) are indispensable tools to study the radiative, dynamic and chemical interactions in the stratosphere. In this thesis the continuous forcing of increasing methane (CH₄) concentrations – the second most important anthropogenic greenhouse gas – and the impact of volcanic or anthropogenic stratospheric aerosol increase on the stratosphere are analysed by means of the CCM SOCOL.

CH₄ concentrations have more than doubled since pre-industrial times. Using SOCOL steady state experiments with pre-industrial, present-day and potential future methane concentrations are carried out to investigate the linearity of the chemical and dynamical effects of CH₄ increase on the stratosphere. The oxidation of CH₄ leads to an increase of stratospheric water vapour, which further increases the radiative forcing at the surface and affects the ozone layer. While stratospheric water vapour due to CH₄ oxidation is linearly increasing with CH₄ concentration, the effects on the ozone layer show non-linear behaviour. This is due to several mechanisms: the reaction of CH₄ with chlorine radicals decreases the concentration of reactive chlorines and enhances middle stratospheric O₃ concentrations; however, at very high CH₄ concentrations the resulting O₃ increase is slowed due to the high concentrations of hydroxyl radicals; at high latitudes the CH₄ induced H₂O increase leads to pronounced O₃ destruction during spring caused by enhanced PSC formation. Conversely, the influence of rising CH₄ concentrations on stratospheric dynamics is small, at least when applying past or potential future changes of CH₄ concentrations, i.e. between 0.7 and 2.7 ppmv CH₄. Time slice simulations of 75 years by SOCOL with these mixing ratios indicate that the meridional gradient of radiative heating rates caused by CH₄-induced chemical changes represent a too small radiative forcing to induce statistically significant changes in stratospheric dynamics.

Ensemble simulations utilising 100 year transient runs with SOCOL including all important climate forcings of the 20th century suggest that the CH₄ lifetime varied by more than 10% during the last century. In the last decade CH₄ lifetime decreased due to higher tropospheric concentrations of water vapour and O₃, caused as a combined effect of a warming and more humid climate and a persistent poor, emission-related global air quality. This decrease in CH₄ lifetime may have contributed to the stagnation of atmospheric CH₄ concentrations observed in

the past decade. The growth rates of CH_4 remain not well understood due to high uncertainties in CH_4 source and sink terms. Since 2007 CH_4 concentrations appear to be rising again, but statistical significance of this latest development is still unclear.

If the anthropogenically emitted greenhouse gases will continue to rise in an uncontrolled manner, just as they have done in the past decades, we will have to face environmental and socio-economic problems of presently still inconceivable dimensions. Therefore significant emission reductions must be initiated very soon. As potential support measures, that might extend the grace period for politically prudent reactions, various ideas for geoengineering are currently being discussed. One such measure could be established through an artificial increase in stratospheric aerosol concentrations in order to change the atmosphere's radiation balance. This is motivated by observations of strong volcanic eruptions injecting sulphate aerosols into the stratosphere leading to enhanced reflection of incoming shortwave radiation and thus resulting in tropospheric cooling. However, such a geoengineering measure is presently still a largely unexplored idea that could lead to dangerous side effects. Therefore it is of utmost importance to analyse and model all presently conceivable relevant aspects and through such research to discover presently still unknown side effects. To this end, the first question to answer is, how good are our models in modelling volcanic eruptions on atmosphere and climate?

Large volcanic eruptions introduce a strong forcing on stratospheric chemistry and dynamics. For instance the eruption of Mt. Pinatubo in 1991 emitted roughly 20 Mt of SO_2 into the stratosphere, which introduced a global cooling at the surface. At the same time the stratospheric aerosols absorb longwave radiation and heat the lower stratosphere. So far this heating is overestimated in state-of-the-art CCMs. In this thesis the Mt. Pinatubo eruption is modelled with the AER 2D aerosol model and SOCOL. The simulations refer to injections of 14–26 Mt SO_2 into the lower tropical stratosphere. The calculated optical properties and the surface area density of the aerosols serve as input for SOCOL. Extensive comparisons with observations reveal high uncertainties in the whole modelling process. Only a few measurements are available in the tropics in the first months after the eruption, which is a region, where the models show largest uncertainties.

This lets us conclude that current models do not allow to sufficiently quantify the consequences of geoengineering on aerosol radiative and chemical processes, utilising enhanced stratospheric aerosols. However, the models can help to sharpen our perception of possible feedback processes. Sensitivity runs with AER and SOCOL reveal, that with continuous emissions of SO_2 in the tropical lower stratosphere sulphate aerosols tend to grow to larger sizes than observed after volcanic eruptions. The growth of aerosol particles depends on non-linear processes: the more sulphur is emitted, the faster the particles grow. Large aerosol particles scatter less efficiently and absorb more strongly than smaller particles. Therefore, regarding geoengineering experiments, larger amounts of sulphur would be needed than previously thought: first due to the smaller albedo effect, and second because the residence time of sulphate aerosols is reduced, due to enhanced sedimentation. Another drawback of generating large particles is the danger that these particles sediment and heat the tropical tropopause, which might lead to an increase in stratospheric water vapour and influences the radiative and chemical properties of the entire stratosphere. Furthermore, the ozone layer would be affected substantially. Especially at high latitudes and in the area of the main aerosol cloud the potential O_3 loss is alarming.

Zusammenfassung

Die Ozonschicht in der Stratosphäre besitzt die lebenswichtige Eigenschaft, dass sie uns vor schädlicher UV-Strahlung schützt. Ausserdem unterstützt sie die Oxidationskapazität der Troposphäre durch Stratosphären-Troposphären-Transport und beeinflusst durch Heizung die Dynamik der Stratosphäre. Die Ozonschicht wird durch diverse natürliche und anthropogene Faktoren auf verschiedenen Zeitskalen beeinflusst. Im 20. Jahrhundert hatte der erhöhte Ausstoss von Halogenen zu den grössten Veränderungen geführt. Dank erfolgreichen politischen Massnahmen konnten die Emissionen stark reduziert werden, mit einer gänzlichen Erholung der Ozonschicht kann jedoch erst in etwa einem halben Jahrhundert gerechnet werden. Sowohl die Abkühlung der Stratosphäre, durch verstärkte Treibhausgasemissionen, als auch die Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfs (H_2O), die in den letzten Dekaden beobachtet wurde, beeinflusst die Stratosphäre und die Ozonschicht. Die dadurch vermehrte Bildung von polaren Stratosphärenwolken (PSCs) führen zu verstärktem Ozonabbau in hohen Breiten. Demgegenüber werden in den mittleren und niedrigen Breiten die O_3 Abbauzyklen durch die Abkühlung der Treibhausgase verlangsamt, was zu einer Zunahme der O_3 Konzentrationen in diesen Regionen führt. Die Ozonschicht wird zusätzlich durch starke Vulkanausbrüche beeinflusst, denn die verstärkte Bildung von stratosphärischen Schwefelaerosolen führen zu einem Abbau der Ozonschicht. Globale Klima-Chemie-Modelle (engl. chemistry climate models, CCMs) sind sehr gut geeignet, um chemische, dynamische und strahlungsrelevante Einflüsse und Rückkopplungen in der Stratosphäre zu untersuchen. In dieser Arbeit werden mit Hilfe des CCMs SOCOL zwei verschiedene Einflüsse auf die Chemie und die Dynamik der Stratosphäre untersucht: einerseits der Einfluss der Zunahme von Methan (CH_4) – dem zweit wichtigsten anthropogenen Treibhausgas – und andererseits der Einfluss von erhöhten stratosphärischen Schwefelaerosolkonzentrationen, wie sie nach Vulkanausbrüchen beobachtet werden.

Seit vorindustrieller Zeit haben sich die CH_4 -Konzentrationen mehr als verdoppelt. In dieser Arbeit werden mit SOCOL sogenannte Zeitscheiben Experimente mit vorindustriellen, heutigen, und möglichen zukünftigen CH_4 -Konzentrationen gerechnet. Die Oxidation von CH_4 führt zu einer Zunahme von stratosphärischem Wasserdampf, wodurch der Treibhauseffekt verstärkt wird und die Ozonschicht beeinflusst wird. Der Anstieg von stratosphärischem H_2O ist linear zum Anstieg von CH_4 , hingegen die Ozonschicht wird durch einen Anstieg von CH_4 nicht linear beeinflusst. Die Nichtlinearität kommt durch verschiedene Mechanismen zu Stande. Die Reaktion von CH_4 mit Chlorradikalen führt in der mittleren Stratosphäre zu einer Zunahme von O_3 . Jedoch verliert diese Reaktion an Bedeutung bei sehr hohen CH_4 -Konzentrationen durch die erhöhten Hydroxyl (OH)-Konzentrationen. Ausserdem hat die Zunahme von CH_4 in den hohen Breiten im Frühling eine erhöhte PSC-Bildung und dadurch einen verstärkten O_3 Abbau zur Folge. Hingegen die stratosphärische Dynamik wird durch den Anstieg von vorindustriellen zu möglichen zukünftigen CH_4 -Konzentrationen (0.7–2.7 ppmv) nicht stark beeinflusst. Mit SOCOL gerechnete Zeitscheiben Experimente über 75 Jahre zeigen, dass die Veränderung der meridionalen Gradienten in den stratosphärischen Heizraten, die durch chemische Einflüsse des CH_4 Anstiegs ausgelöst wurden, einen zu kleinen Einfluss darstellen um die stratosphärische Dynamik statistisch signifikant zu verändern.

Transiente Modellsimulationen des gesamten 20. Jahrhunderts mit SOCOL zeigen, dass in

dieser Zeitperiode die Lebensdauer von CH_4 um 10 % variierte. In der ersten Hälfte des Jahrhunderts stieg die Lebensdauer, da steigende Kohlenmonoxid (CO) und CH_4 -Konzentrationen eine Abnahme in den OH -Konzentrationen bewirkten. Seit den 60er-Jahren hat die Lebensdauer von CH_4 jedoch abgenommen, trotz des weiteren CH_4 und CO Anstiegs in dieser Zeit. Denn die wärmere und dadurch feuchtere Troposphäre, sowie die verstärkte Emission von O_3 bildenden Vorläufersubstanzen, haben zu einer Zunahme in troposphärischem O_3 und H_2O geführt. Diese Abnahme der Lebensdauer könnte auch zu einer Abflachung der CH_4 -Wachstumsrate in den letzten Dekaden beigetragen haben. Die Änderungen in den CH_4 -Wachstumsraten sind wegen den grossen Unsicherheiten in der Quantifizierung der CH_4 -Quell- und Senkterme heute noch schlecht verstanden. Nach einem Stagnieren der CH_4 -Konzentrationen in den letzten Jahren scheinen die Konzentrationen seit 2007 wieder zu steigen, die statistische Signifikanz dieser Entwicklung wird sich aber erst in Zukunft zeigen.

Falls die Treibhausgase in Zukunft weiter unkontrolliert ansteigen wie in den letzten Dekaden, werden wir schon in wenigen Jahrzehnten mit beträchtlichen Umwelt- und sozioökonomischen Problemen konfrontiert werden. Es müssen sofort substantielle Reduktionen der Treibhausgase erfolgen, damit gravierende klimatische Folgen verhindert werden können. Befürchtungen, dass die Reduktionen nicht erreicht werden können oder nicht genügen werden, führen nun verstärkt zu Diskussionen, ob die Erdoberfläche durch andere – sogenannte geotechnische – Massnahmen gekühlt werden könnte. Beispielsweise könnten, wie bei einem Vulkanausbruch, die stratosphärischen Schwefelaerosolkonzentrationen erhöht werden. Die Schwefelaerosole reflektieren einen Teil der Sonneneinstrahlung und führen dadurch zu einer Abkühlung an der Erdoberfläche. Ein solches geotechnisches Experiment könnte jedoch zahlreiche negative Nebeneffekte auslösen. Deshalb ist es äusserst wichtig, alle relevanten Prozesse zu analysieren und auf bisher noch unbekannte Nebeneffekte zu untersuchen. Als Erstes muss die Frage beantwortet werden, wie gut unsere Modelle die klimatischen Folgen von Vulkanausbrüchen abbilden können.

Starke Vulkanausbrüche haben einen grossen Einfluss auf die Stratosphäre. Durch den Ausbruch des Mt. Pinatubo im Juni 1991 wurden rund 20 Mt SO_2 in die Stratosphäre emittiert, was durch den damit verbundenen enormen Anstieg der stratosphärischen Aerosole zu einer Abkühlung der Erdoberfläche von 0.5 K führte. Schwefelaerosole absorbieren zudem langwellige Strahlung und erwärmen so die unteren Stratosphäre. Diese Erwärmung wird durch die meisten CCMs überschätzt. In dieser Arbeit wird mit dem AER 2D-Aerosolmodell und SOCOL die Mt. Pinatubo-Eruption simuliert. Aufgrund lückenhafter Beobachtungsdaten über den Tropen und Modelldefiziten ist die Auswirkung auf die Temperatur mit grossen Unsicherheiten behaftet. Die Effekte eines solchen geotechnischen Experiments können daher zurzeit nicht befriedigend quantifiziert werden. Modellsimulationen helfen jedoch Rückkoppelungen und Linearitäten einzelner involvierter Prozesse besser zu verstehen. Sensitivitätsexperimente mit SOCOL und dem AER-Modell zeigen, dass mit kontinuierlichen SO_2 Emissionen in die untere tropische Stratosphäre, die gebildeten Sulfataerosole stärker anwachsen, als dies nach Vulkanausbrüchen beobachtet wurde. Grössere Partikel streuen weniger effizient kurzwellige Strahlung als kleinere Partikel, was dazu führt, dass grössere Mengen an Schwefel gebraucht werden, als bisher gedacht wurde. Da einerseits der Albedoeffekt der Aerosole schwächer ist und andererseits viel Masse durch Sedimentation und Auswaschung verloren geht. Eine weitere Gefahr entsteht, wenn die Aerosole in die Tropopausenregion sedimentieren und diese erwärmen. Dies hätte eine deutlich feuchtere Stratosphäre zur Folge, was die Chemie und die Dynamik der gesamten Stratosphäre beeinflussen würde. Insbesondere in hohen Breiten und in Gebieten mit besonders starken Aerosolkonzentrationen müsste für einen solchen geotechnischen Eingriff mit einem starken O_3 Abbau gerechnet werden.