

DISS. ETH No. 21765

Modeling Stratospheric Aerosols Using a Coupled Aerosol-Chemistry-Climate Model

A THESIS SUBMITTED TO ATTAIN THE DEGREE OF
DOCTOR OF SCIENCES OF ETH ZURICH
(DR. SC. ETH ZURICH)

PRESENTED BY

JIANXIONG SHENG

MSC MÉCANIQUE DES FLUIDES, UNIVERSITÉ PARIS VI

BORN ON 8 OCTOBER 1980

CITIZEN OF CHINA

ACCEPTED ON THE RECOMMENDATION OF

PROF. DR. THOMAS PETER, EXAMINER

DR. EUGENE ROZANOV, DR. MIAN CHIN, CO-EXAMINERS

2014

Abstract

The presence of the stratospheric aerosol layer, also known as the Junge layer, was first discovered in the early 1960s. This aerosol layer contains mainly binary $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ solution droplets, which scatter solar radiation, absorb the outwelling infrared radiation, and thus affect the atmospheric circulation and global climate. It also hosts heterogeneous chemistry in the stratosphere, which leads to nitrogen deactivation and chlorine activation with implications for subsequent ozone depletion, and the level of UV irradiance at the surface.

However, there are significant uncertainties in our understanding of the Junge layer, from the question which sulfur-containing gases besides carbonyl sulfide contribute to the maintenance of the layer, via the difficulties in properly describing the temporal evolution of particle size distributions and geographic spreading of aerosols after major volcanic eruptions, all the way to the radiative impacts on global climate. Substantial improvements in current modeling approaches are required to advance our quantitative understanding of the stratospheric aerosol layer and its interaction with atmospheric radiative, dynamical and chemical processes. In response to this challenge, this work has developed the coupled aerosol-chemistry-climate model SOCOL-AER, which is based on the size-bin resolving aerosol model AER and the chemistry-climate model (CCM) SOCOL. This new and in its capabilities unprecedented aerosol-CCM interactively includes all relevant aerosol microphysics, chemistry, transport, sedimentation and aerosol radiative feedbacks. By using this novel model, further aims of this thesis are the quantification of the relative contributions of anthropogenic and natural sulfur emissions to the Junge layer, and to investigate the evolution of particle size distributions after the eruption of Mt. Pinatubo, which serves as a natural analogue of for geoengineering measures involving stratospheric sulfur injections.

Simulations of the global atmospheric sulfur budget and of the sensitivity with respect to various sulfur emission scenarios have been conducted using SOCOL-AER. The model successfully reproduces all of main features of stratospheric aerosols under non-volcanic conditions, including seasonal cycle of aerosol extinctions compared to SAGE II and HALOE, and particle size distribution compared to in situ stratospheric aerosol measurements at Laramie, Wyoming. Only at the upper edge of the Junge layer does the model show a systematic underestimation of the tapering extinction ratios, likely due to meteoritic material which has not been implemented in the model. The calculated stratospheric aerosol burden is about 109 gigagram sulfur under volcanically quiescent conditions, showing excellent agreement with SAGE II. The validated model is used for sensitivity studies concerning anthropogenic SO_2

emissions in China and India. These emissions may influence stratospheric aerosols more pronouncedly compared to emission changes in Western Europe or the US. This indicates that deep convection in the Western Pacific region may enable tropospheric sulfur emissions in the tropics, particularly during the summertime, to enter the stratosphere. However, even vastly enhanced tropospheric emissions from these regions in the future are predicted to contribute less than 8% to the background stratospheric aerosol burden. More importantly, even small eruptive volcanoes can contribute significantly to the background stratospheric aerosol burden. Calculations with SOCOL-AER suggest that volcanic contributions to the global stratospheric aerosol burden from medium-sized eruptions, such as that of Nabro in 2011, may lead to a doubling of background levels under quiescent conditions.

This work approaches another major uncertainty, namely the vertical distribution of initial sulfur injections during major volcanic eruptions. To this end, more than 300 atmospheric simulations of the Pinatubo eruption have been performed using the AER 2-D sulfate aerosol model in order to optimize the initial sulfur mass injection, which in previous modeling studies has often been chosen arbitrarily (e.g., applying a rectangular-shaped emission profile). The simulations are generated by the combinations of a 4-parameter vertical mass distribution, determined by a total injection mass and a skew-normal distribution function. The results suggest that (a) the initial mass loading was only 14 Mt of SO₂, in contrast to the usually applied 20 Mt; (b) the injection vertical distribution extended from the tropical tropopause to 30 km; (c) it has a strong skewness toward the lower stratosphere. The rigorous approach to construct this optimized distribution is unprecedented. This provides a universal emission scenario for global 3-D simulations, which has been derived systematically from the observational data.

Based on the optimized emission scenario, this work in its last part employs SOCOL-AER to investigate the size-resolved stratospheric aerosol distributions after the eruption of Mt. Pinatubo. The coupled aerosol-chemistry-climate model SOCOL-AER is employed to investigate the impact of the aerosol radiative heating, sedimentation scheme, coagulation efficiency, and quasi-biennial oscillation (QBO) on the stratospheric aerosol loading after the eruption of Mt. Pinatubo. The aerosol module includes comprehensive sulfur chemistry and microphysics, in which the particles are size-resolved by 40 size bins spanning radii from 0.39 nm to 3.2 μ m. Radiative forcing is calculated online from the aerosol module according to Mie theory. The simulation shows excellent agreement with the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II (SAGE II) measurements, the high-resolution infrared radiation sounder (HIRS), and in situ measurements by optical particle counters above Laramie, Wyoming. It turns out that in particular an accurate sedimentation scheme is essential in order to prevent particles diffusing too rapidly to high latitudes. The use of a sophisti-

cated particle coagulation scheme plays a lesser role. The aerosol radiative feedback and the QBO help to sustain the aerosol in the tropical reservoir and affect the maximum of stratospheric aerosol burden, improving the agreement with observed distributions, but do not per se influence the decay rate of the aerosol burden. Overall, the results demonstrate the necessity of the combination of detailed resolution of individual processes and comprehensive coupling in order to achieve a proper prediction of atmospheric and climate effects following large volcanic eruptions or sulfur injections related to geoengineering.

Zusammenfassung

Die Existenz der stratosphärischen Aerosolschicht, auch bekannt unter dem Namen Junge-Schicht, wurde erstmals in den frühen 1960er Jahren entdeckt. Binäre Schwefelsäure-Wasser-Tröpfchen machen den Hauptbestandteil dieser Aerosolschicht aus. Durch die Streuung kurzwelliger und die Absorption langwelliger Strahlung beeinflussen sie Atmosphäre und Klima. Heterogene Reaktionen, die auf der Oberfläche der Aerosolpartikel ablaufen, führen zu einer Deaktivierung von Stickstoffverbindungen und einer Aktivierung von Chlorverbindungen. Stratosphärische Sulfat-Aerosole haben somit auch Auswirkungen auf den stratosphärischen Ozonabbau und folglich auf die einfallende UV Strahlung am Erdboden.

Trotz langjähriger Forschung ist unser Verständnis der Junge-Schicht noch lückenhaft. Zu den offenen Fragen gehören unter anderem: Welche schwefelhaltigen Verbindungen neben Karbonsulfid tragen zur Existenz der Junge-Schicht bei? Wie lassen sich die zeitliche Entwicklung der Grössenverteilung sowie die Ausbreitung der Aerosolpartikel nach einem Vulkanausbruch angemessen beschreiben? Wie gross ist der Einfluss der Aerosole auf den globalen Strahlungshaushalt? Um unser quantitatives Verständnis der stratosphärischen Aerosolschicht zu verbessern sowie deren Wechselwirkungen mit Strahlung, Dynamik und Chemie zu verstehen, ist es notwendig, existierende Modellsysteme zu erweitern und neue Ansätze zu erarbeiten. Dazu wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit das vollständig gekoppelte Aerosol-Chemie-Klima-Modell SOCOL-AER entwickelt. Das neue Modellsystem basiert auf dem nach Partikelgrössen auflösenden Aerosolmodell AER und dem Chemie-Klima-Modell (engl. chemistry-climate model, CCM) SOCOL, und vereint erstmalig alle relevanten Rückkopplungsmechanismen zwischen Aerosol-Mikrophysik, Chemie, Transport, Sedimentation und Strahlung. Mithilfe von SOCOL-AER werden in dieser Arbeit die relativen Beiträge anthropogener und natürlicher Schwefelemissionen zur Junge-Schicht bestimmt sowie die Entwicklung der Grössenverteilung der Aerosolpartikel nach dem Ausbruch des Pinatubo untersucht. Vulkanausbrüche bilden ein natürliches Analogon zu geotechnischen Klimaschutzmassnahmen mittels Einbringen von Schwefel in die Stratosphäre.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zunächst etliche Modellsimulationen mit SOCOL-AER zum globalen atmosphärischen Schwefelbudget unter Berücksichtigung verschiedener Schwefel-Emissionsszenarien durchgeführt. Ein Vergleich mit Beobachtungsdaten zeigt, dass das Modell die wesentlichen Merkmale der stratosphärischen Aerosolschicht unter nicht-vulkanischen Bedingungen erfolgreich reproduziert. Daten der Aerosolextinktion von SAGE II und HALOE wurden dabei zur Evaluierung des Jahresgangs herangezogen, während die Grössenverteilung der Aerosolpar-

tikel mit stratosphärischen in-situ Messungen über Laramie, Wyoming, verglichen wurde. Einzig am Oberrand der Junge-Schicht zeigt das Modell eine systematische Unterschätzung des Extinktionsverhältnisses. Letzteres ist höchstwahrscheinlich auf das Fehlen von Aerosol-Vorläufersubstanzen meteoritischen Ursprungs im Modell zurückzuführen. Die simulierte Gesamtmenge des stratosphärischen Schwefelaerosols unter nicht-vulkanischen Bedingungen beträgt 109 Gg Schwefel und stimmt damit sehr gut mit Abschätzungen basierend auf SAGE-II Satellitenbeobachtungen überein. Des Weiteren wurden mit dem Modell Sensitivitätsstudien zu anthropogenen SO₂ Emissionen aus China und Indien durchgeführt. Asiatische Emissionen haben das Potenzial die stratosphärische Aerosolschicht stärker zu beeinflussen als Emissionen aus Westeuropa oder den USA. Aufgrund hochreichender Konvektion über dem tropischen Westpazifik können Schwefelemissionen, insbesondere während der Sommermonate, verstärkt aus der Troposphäre in die Stratosphäre transportiert werden. Jedoch hat sich gezeigt, dass Schwefelemissionen aus China und Indien, selbst unter der Annahme einer deutlichen Zunahme der zukünftigen Emissionsmenge, weniger als 8% zur stratosphärischen Hintergrundaerosolbelastung beitragen. Andererseits tragen schon kleine Vulkanausbrüche deutlich zur stratosphärischen Aerosolschicht bei. Modellrechnungen mit SOCOL-AER zeigen, dass Vulkanausbrüche mittlerer Grösse wie der des Vulkans Nabro im Jahr 2011 bereits zu einer Verdoppelung der stratosphärischen Aerosolmenge verglichen mit vulkanisch ungestörten Zeiten führen können.

Diese Arbeit adressiert einen weiteren grossen Unsicherheitsfaktor in Modellstudien, nämlich die vertikale Anfangsverteilung des Schwefeleintrags durch grosse Vulkanausbrüche. In bisherigen Modellstudien wurde die Anfangsverteilung oftmals willkürlich gewählt, z.B. mittels eines rechteckigen Emissionsprofils. Zur Optimierung der anfänglichen Schwefelverteilung wurden hier mehr als 300 Simulationen der Pinatubo-Eruption mit dem 2-dimensionalen Aerosolmodell AER durchgeführt, bei denen die 4 Parameter der vertikalen Massenverteilung, welche wiederum durch die emittierte Gesamtmasse und eine schiefe Normalverteilung beschrieben wird, sukzessive variiert wurden. Die Ergebnisse deuten auf folgende Anfangsverteilung hin: (a) Die anfängliche Gesamtmasse betrug anstatt der bislang angenommenen 20 Mt nur etwa 14 Mt SO₂. (b) Der Schwefeleintrag erfolgte zwischen der tropischen Tropopause und 30 km Höhe. (c) Die vertikale Verteilung zeigt eine starke Asymmetrie mit Betonung auf der unteren Stratosphäre. Aufgrund der hier durchgeführten Optimierung steht nun erstmals eine durch die Beobachtungen systematisch abgestützte Anfangsverteilung zur Verwendung in globalen 3-dimensionalen Modellen zur Verfügung.

Die so optimierte Anfangsverteilung wurde im letzten Teil dieser Arbeit verwendet, um die hoch aufgelöste Grössenverteilung der stratosphärischen Aerosolschicht

nach dem Ausbruch des Pinatubo genauer zu untersuchen. Mithilfe des vollständig gekoppelten Aerosol-Chemie-Klima-Modell SOCOL-AER wurde der Einfluss der Aerosol-induzierten Strahlungserwärmung, des Sedimentationsschemas, der Koagulationseffizienz sowie der quasi-zweijährigen Schwingung (engl. quasi-biennial oscillation, QBO) auf die stratosphärische Aerosolbelastung nach dem Ausbruch des Pinatubo untersucht. Das Aerosolmodul berücksichtigt eine umfassende Schwefelchemie sowie Aerosolmikrophysik. Die Grössenverteilung der Aerosolpartikel wird mittels 40 Grössenklassen von 0.39 nm bis hin zu 3.2 μ m Partikelradius beschrieben. Der Strahlungsantrieb wird während der Simulation fortlaufend durch das Aerosolmodul gemäss Mie-Theorie berechnet. Die Simulationsergebnisse zeigen sehr gute Übereinstimmung mit SAGE II (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II) und HIRS (High-resolution Infrared Radiation Sounder) Satellitenbeobachtungen sowie mit in-situ Messungen mittels optischer Partikelzähler über Laramie, Wyoming. Es zeigt sich, dass insbesondere eine akkurate Beschreibung der Sedimentation von grosser Bedeutung ist, um eine zu schnelle Diffusion der Partikel in Richtung der hohen Breiten zu verhindern. Die Beschreibung der Koagulation von Aerosolpartikeln spielt hingegen eine untergeordnete Rolle. Die Berücksichtigung der Aerosol-induzierten Strahlungsrückkopplung sowie der QBO helfen, die Aerosolbelastung innerhalb der Tropen aufrecht zu erhalten, und beeinflussen das Maximum der stratosphärischen Aerosolbelastung. Beide Effekte führen zu einer besseren Übereinstimmung mit beobachteten Aerosolverteilungen, beeinflussen per se aber nicht die Abbaurate der Aerosolbelastung. Insgesamt zeigen die Ergebnisse dieser Arbeit die Notwendigkeit, detaillierte Prozessmodellierung mit komplexen, vollständig gekoppelten 3-dimensionalen Modellen zu kombinieren, um zuverlässige Vorhersagen der Auswirkungen grosser Vulkanausbrüche oder künstlicher Schwefelemissionen im Zuge geotechnischer Klimaschutzmassnahmen auf Atmosphäre und Klima zu erlangen.