

蔡宏珂, 郭静超, 周任君, 等. 2011. 平流层气溶胶与多种微量气体以及温度的关系 [J]. 大气科学, 35 (6): 1159–1168. Cai Hongke, Guo Jingchao, Zhou Renjun, et al. 2011. The relation of stratospheric aerosols with trace gases and temperature [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 35 (6): 1159–1168.

平流层气溶胶与多种微量气体以及温度的关系

蔡宏珂 郭静超 周任君 刘鹏兵 傅云飞

中国科学技术大学地球和空间科学学院, 合肥 230026

摘 要 本文采用卤素掩星试验 (Halogen Occultation Experiment, HALOE) 资料探讨了火山活动相对平静期平流层气溶胶与 O_3 、 H_2O 、 HCl 、 NO_x 、 CH_4 、 HF 等微量气体以及温度的关系。滞后相关分析显示气溶胶与微量气体和温度有显著关系, 不同成分的相关性特征有所差异, 中低纬度上空 70~20 hPa 高度上气溶胶与温度呈负相关。标准化多元线性回归显示温度变化的直接贡献者主要是温室气体, 气溶胶的直接贡献很有限。本文采用环境重要成分的化学、辐射和输送模式 SOCRATES (Simulation of Chemistry, Radiation, and Transport of Environmentally important Species) 模拟了气溶胶变化对平流层的影响, 微量气体和温度的响应总体上与 HALOE 资料的分析结果吻合, 温度的变化幅度远小于气溶胶的变化幅度。结果表明: 在气溶胶含量较高的气层内, 气溶胶表面的非均相反应对气溶胶与微量气体的关系有重要影响。不同于火山喷发后的致暖, 在火山活动相对平静期气溶胶的辐射效应为致冷, 这与气溶胶含量较低有关, 气溶胶通过非均相反应引起的间接辐射效应强于其自身的辐射效应, 但总辐射效应对温度变化的贡献很小。

关键词 平流层气溶胶 微量气体 温度变化 滞后相关 二维数值模式

文章编号 1006-9895 (2011) 06-1159-10

中图分类号 P421

文献标识码 A

The Relation of Stratospheric Aerosols with Trace Gases and Temperature

CAI Hongke, GUO Jingchao, ZHOU Renjun, LIU Pengbing, and FU Yunfei

School of Earth and Space Sciences, University of Science and Technology of China, Hefei 230026

Abstract The HALOE (Halogen Occultation Experiment) dataset is used to study the relation of stratospheric aerosols with trace gases (O_3 , H_2O , HCl , NO_x , CH_4 , and HF) and temperature in a period of relative volcanic quiescence. The lag-correlation analysis shows trace gases and temperature are significantly related to aerosol surface area density. Characteristics of the relevance vary with different components. Temperature is negatively correlated with aerosol for 70–20 hPa over low-and mid-latitudes. Standardized multiple linear regression demonstrates that greenhouse gases are the primary direct contributor for temperature change, and the direct contribution of aerosols is much less. The impact of aerosols on the stratosphere is simulated with the two-dimensional model SOCRATES (Simulation of Chemistry, Radiation, and Transport of Environmentally important Species). The response of trace gases and temperature coincides with the analysis of the HALOE. The rangeability of temperature is much less than that of aerosols. The result suggests that the stratospheric heterogeneous processes on aerosol surfaces are important for the relation between aerosols and trace gases in the aerosol-enriched layers. The radiation effect of aerosols

收稿日期 2010-12-07, 2011-05-09 收修定稿

资助项目 国家重点基础研究发展规划项目 2010CB428603、2010CB428601, 国家自然科学基金资助项目 40705014、40633015, 中央高校基本科研业务费专项资金 WK2080000011

作者简介 蔡宏珂, 男, 1984 年出生, 博士研究生, 研究方向为中层大气研究。E-mail: caihk@mail.ustc.edu.cn

通讯作者 周任君, E-mail: zrzj@ustc.edu.cn

is cooling in the period of relative volcanic quiescence, which is different from the warming effect after volcanic eruptions. The phenomenon depends on the aerosol contents. The indirect radiation effect via heterogeneous processes is stronger than the direct effect of aerosols themselves, but the total radiation effect makes little impact on temperature.

Key words stratospheric aerosol, trace gas, temperature change, lag correlation, 2D model

1 引言

气溶胶是平流层大气的重要微量成分,在大气辐射和光化学过程中都起着重要作用(McCormick et al., 1995)。平流层气溶胶因火山喷发而含量剧增,产生短暂而又显著的辐射效应,通过自身对短波和长波的散射和吸收调节平流层大气辐射通量,直接影响地气系统的能量收支,导致地表温度致冷而平流层增暖(Dutton and Christy, 1992; Hansen et al., 1992; Labitzke and McCormick, 1992; Angell, 1993)。平流层气溶胶因表面发生的非均相反应而以载体形式参与微量气体循环,引起 O_3 、 H_2O 、 NO_x 等微量气体含量和分布的变化。硫酸盐气溶胶形成过程需要消耗 OH 和 H_2O (Bekki, 1995),参与光化学反应导致臭氧减少(Hofmann and Solomon, 1989; Gleason et al., 1993; Deshler et al., 1996),也有研究认为火山气溶胶还会导致甲烷减少(Considine et al., 2001),各微量气体之间的相互作用(Wennberg et al., 1994; Portmann et al., 1996; Solomon et al., 1996)使得气溶胶对微量气体的影响更显复杂。由于微量气体独特的辐射特性,气溶胶间接引起平流层大气辐射传输特性的改变,进而造成大气热力结构的改变,从而影响地气系统的能量平衡(Hanson et al., 1994; Tabazadeh et al., 1994)。因此,深入了解平流层中气溶胶和微量气体的关系及其对气温变化的贡献,对于研究平流层过程及其在气候中的作用具有重要价值。

气溶胶和微量气体的含量在火山活动期急剧变化,对大气辐射收支造成显著影响,这一事实已被广泛观测研究所证实。此前,有关平流层气溶胶和微量气体及其气候效应的研究多关注火山喷发后平流层大气显著变化的活跃时期,对火山活动相对平静期研究较少,而此一时期构成了平流层过程的背景场,因此有必要加强这方面的工作。本文旨在通过分析火山活动相对平静期气溶胶与多种微量气体及温度的关系,探讨平流层背景场各微量组分的相互作用和辐射效应,为深入研究平流层动力、热力

和化学过程提供帮助。

2 资料、算法和数值模式介绍

2.1 观测资料

HALOE 是搭载于高层大气研究卫星(Upper Atmosphere Research Satellite, UARS)上的卤素掩星试验装置,用于测量中层大气的 O_3 、HCl、HF、 CH_4 、 H_2O 、NO、 NO_2 、气溶胶和气温的垂直分布(Russell et al., 1993),于1991年10月11日至2005年11月22日在轨工作。HALOE 资料当前最新版本为 HALOE.v19,纬向测量范围为 $80^\circ S \sim 80^\circ N$,观测高度为 $1000 \sim 10^{-6}$ hPa 间 271 个气压层,100 km 以下各层垂直间距大约为 400 m。HALOE 使用 $5.26 \mu m$ 、 $3.46 \mu m$ 、 $3.40 \mu m$ 、 $2.45 \mu m$ 四个红外波段观测气溶胶,提供 $150 \sim 10$ hPa 间 36 层的气溶胶消光系数观测数据和数密度、分布宽度、有效半径、表面积密度等反演数据(Hervig et al., 1998)。不同观测对象的观测高度范围不尽相同,微量气体的观测高度范围比气溶胶更宽。

由于 HALOE 提供了长时序的多种微量成分观测结果且精确性较高,便于进行气溶胶和微量气体关系的分析,世界气候计划(World Climate Research Programme, WCRP)的子计划“平流层过程及其在气候中的作用”(Stratospheric Processes and their Role in Climate, SPARC)将其作为其研究工作的重要资料之一(Thomason and Peter, 2006)。

2.2 计算方法

气溶胶和微量气体受源汇和动力输送等多方面影响而呈现出季节变化和准两年周期振荡(Quasi-Biennial Oscillation, QBO)(Zawodny and McCormick, 1991; Hitchman et al., 1994; Niwano et al., 2009),火山喷发产生的气溶胶在平流层有较长的驻留时间。因此,本文选用 1998 年 1 月至 2004 年 12 月间的资料以避开 1991 年 6 月 Pinatubo 火山喷发的强烈影响,并采用回归模型去除季节变化和 QBO 特征,以充分表现火山活动相对平静期气溶胶和微量气体的关系。为了减少系统误差,本文事

先对原资料都进行了 3 个月的滑动平均。

回归模型算法可表示为

$$Y_t = \bar{Y} + S_t + Q_t + N_t, \quad (1)$$

其中, Y_t 为平流层微量成分资料时间序列; $\bar{Y}$ 为多年平均值;

$$S_t = \sum_{j=1}^4 (\alpha_j \sin \frac{2\pi t j}{12} + \beta_j \cos \frac{2\pi t j}{12})$$

为季节变化项, 将年内振荡视为不同周期波动的叠加, α_j 和 β_j 为拟合系数;

$$Q_t = \sum_{j=0}^{24} \gamma_j U_{\text{Eq}}^j$$

为此前两年至今的 QBO 信号, U_{Eq} 为赤道上空 30 hPa 纬向风, γ_j 为拟合系数; N_t 为除季节振荡和 QBO 特征以外的微量成分变化。对气溶胶和微量气体的时间序列 N_t 作滞后相关分析可以反映出平流层气溶胶对微量气体分布的影响。

本文采用多元线性回归模型 (黄嘉佑, 2004) 拟合平流层温度对气溶胶和微量气体的依存关系, 多元线性回归模型为

$$T = \sum_i b_i x_i, \quad (2)$$

式中 x 为气溶胶和微量气体含量, 回归系数 b 反映各微量成分对温度的直接贡献, 经标准化处理可以评价贡献大小。回归方程需经 F 检验、回归系数需经 t 检验以确认回归模型具有统计显著性。HF 作为氟元素的稳态存在于平流层, 吸收谱表明其光离解在中层大气是完全可以忽略的 (Brasseur and Solomon, 2005), 可以认为 HF 对温度影响甚微, 因此 HF 不参与回归。

2.3 数值模拟

SOCRATES (Simulation of Chemistry, Radiation, and Transport of Environmentally important Species) 是耦合了化学、辐射和输送过程的二维数值模式, 用以研究中层大气。SOCRATES 模式自 1990 年 Brasseur et al. (1990) 首次发布以来经多次完善, 当前最新版本为第 3 版, 对平流层复杂多耦合过程具有较好的模拟能力。其空间范围为南北半球 85° 间地表至 120 km 的气层, 水平分辨率 5°, 垂直分辨率 1 km。其化学部分包括 76 种化学成分和 161 个化学反应, 化学反应速率常数主要基于喷气推进实验室 (Jet Propulsion Laboratory, JPL) 发布的结果 (Demore et al., 1997), 化学成分的输

送采用半拉格朗日方法实现。极地云非均相化学、硫酸盐气溶胶非均相化学、纬向风 QBO 强迫等平流层过程可选。Khosravi et al. (2002) 利用该模式分析了中间层大气对太阳活动周期和人类活动 CO_2 排放的响应。Gruzdev and Brasseur (2005) 利用该模式研究了中间层大气的长期变化, 揭示了重力波和温室气体等大气热力—化学结构变化对中间层大气的重要性。Lee and Smith (2003) 利用该模式探讨了太阳活动周期、纬向风 QBO 强迫和火山喷发对 O_3 的影响。施春华等 (2010) 利用该模式比较了动力输送和光化学作用对臭氧变化的贡献以及南北极春季臭氧减少的化学机制的差异。Bi et al. (2011) 利用该模式研究了甲烷增加对温度的影响。

本文使用 Pinatubo 火山喷发前的气溶胶表面积密度作为火山活动相对平静期平流层气溶胶背景, 通过改变气溶胶含量模拟各微量气体和温度的响应。模式中气溶胶表面积密度由初始数据给定, 与高度纬度有关而不随时间变化, 即不考虑化学反应和动力输送造成的含量和分布变化。本文根据 HALOE 资料中气溶胶含量的变化幅度设计了三组试验: CaseCtrl 使用气溶胶初始数据, CaseMax 在 CaseCtrl 基础上气溶胶含量变化到背景场的最大值, CaseMin 变化到最小值。为了与 HALOE 观测资料匹配, 模拟方案未加入 QBO 强迫。模拟时间跨度为 20 年, 取用后 10 年模拟结果进行分析。

3 结果

为了研究气溶胶对微量气体的影响, 本文对气溶胶表面积密度与滞后两年内各微量气体体积混合比做了相关分析。滞后相关系数如图 1 和图 2 所示, 图中等值线为各微量气体滞后于气溶胶的相关系数, 实线代表正相关, 虚线代表负相关, 阴影区域通过了信度为 99% 的 t 检验。

3.1 气溶胶和各微量气体的滞后相关分析

图 1 所示气溶胶和各微量气体滞后相关系数, 展示出相关性在不同滞后时期的纬向平均分布情况。各微量气体与气溶胶都有不同程度的相关性, 同期相关尤为明显。相关性的南北半球分布大致对称, 微量气体受气溶胶影响各有不同的敏感区域。本文以北半球为例分析了滞后相关性在低纬度和中纬度的变化情况, 以反映气溶胶与各微量气体关系的演变过程, 如图 2 所示。随着滞后时间的推移,

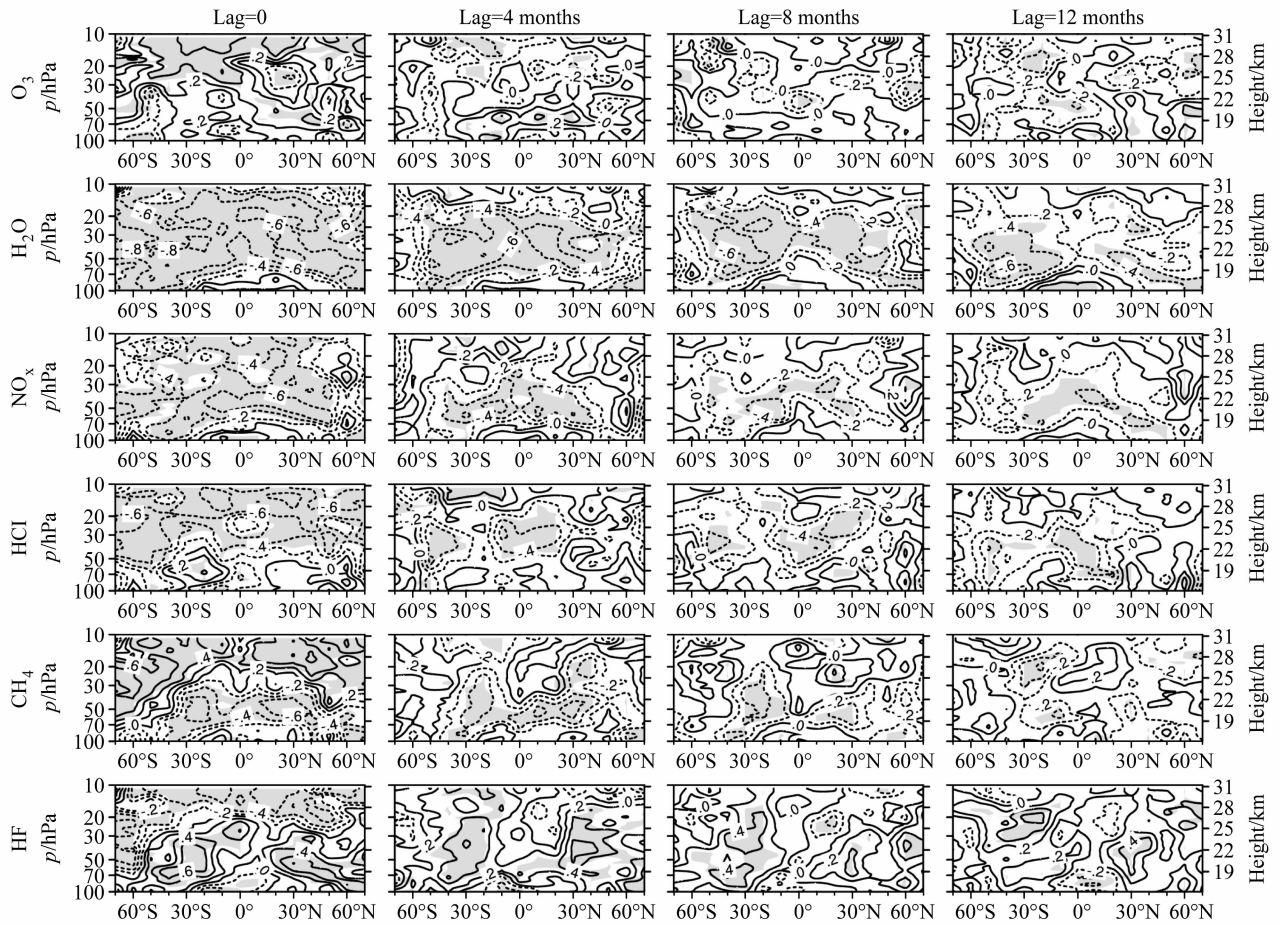


图 1 气溶胶和各微量气体滞后相关系数的纬向平均分布特征 (阴影为通过信度 99% 的 t 检验)。Lag 表示滞后时间
Fig. 1 Zonal-mean distribution of lag-correlation coefficients between aerosols and trace gases. Student's t -test ($\alpha=0.01$) is passed in shaded areas; Lag shows lag time behind aerosols

相关性总体呈衰减态势，即气溶胶与微量气体的关系逐渐减弱而且影响范围逐渐缩小。

在各纬度带 20 hPa 以上气溶胶与滞后两个月内的 O_3 表现出显著的正相关，同期相关尤为明显，如图 1 所示。赤道上空 40~50 hPa 高度附近滞后 5~11 个月间呈明显的负相关，30°N 上空在滞后一年内相关性呈现分层结构 (见图 2a、b)。滞后 4 个月后二者的关系总体上不明显，气溶胶与 O_3 有关系的气层厚度较薄且持续时间较短，这是 O_3 不同于其他微量气体的显著差异。

气溶胶与 H_2O 的关系最明显，在气溶胶表面积密度变化的当月 (Lag=0)，70~10 hPa 间几乎整层大气均表现出显著的负相关 (见图 1)，赤道上空负相关能维持半年，30°N 上空 70~20 hPa 高度层内负相关可维持 20 个月 (见图 2c、d)。与其他微量气体相比，气溶胶与 H_2O 的负相关关系范围

更大且维持时间更长，30°N 上空尤为明显，这意味着当气溶胶表面积密度偏大时，此后一年半内 H_2O 含量将维持在低于多年平均的水平上。气溶胶与 NO_x 、HCl 关系和 H_2O 有一定相似性，以负相关为主，同期相关特别明显，此后中低纬度小范围的负相关能维持较长时间。

气溶胶与 CH_4 、HF 的同期相关呈现出分层结构，赤道上空大致以 20 hPa 为界，分层界线从低纬度到高纬度逐渐降低， CH_4 上层为正相关而下层为负相关，HF 的相关性则相反。上层相关性迅速消退，30°N 上空下层 70~30 hPa 高度间气溶胶与 CH_4 、HF 的关系特别明显和持久，能维持一年的负相关。

气溶胶主要集中在平流层下层，在此高度上其表面的非均相反应对微量气体有重要作用。气溶胶与 H_2O 的负相关意味着气溶胶与 H_2O 损耗相关

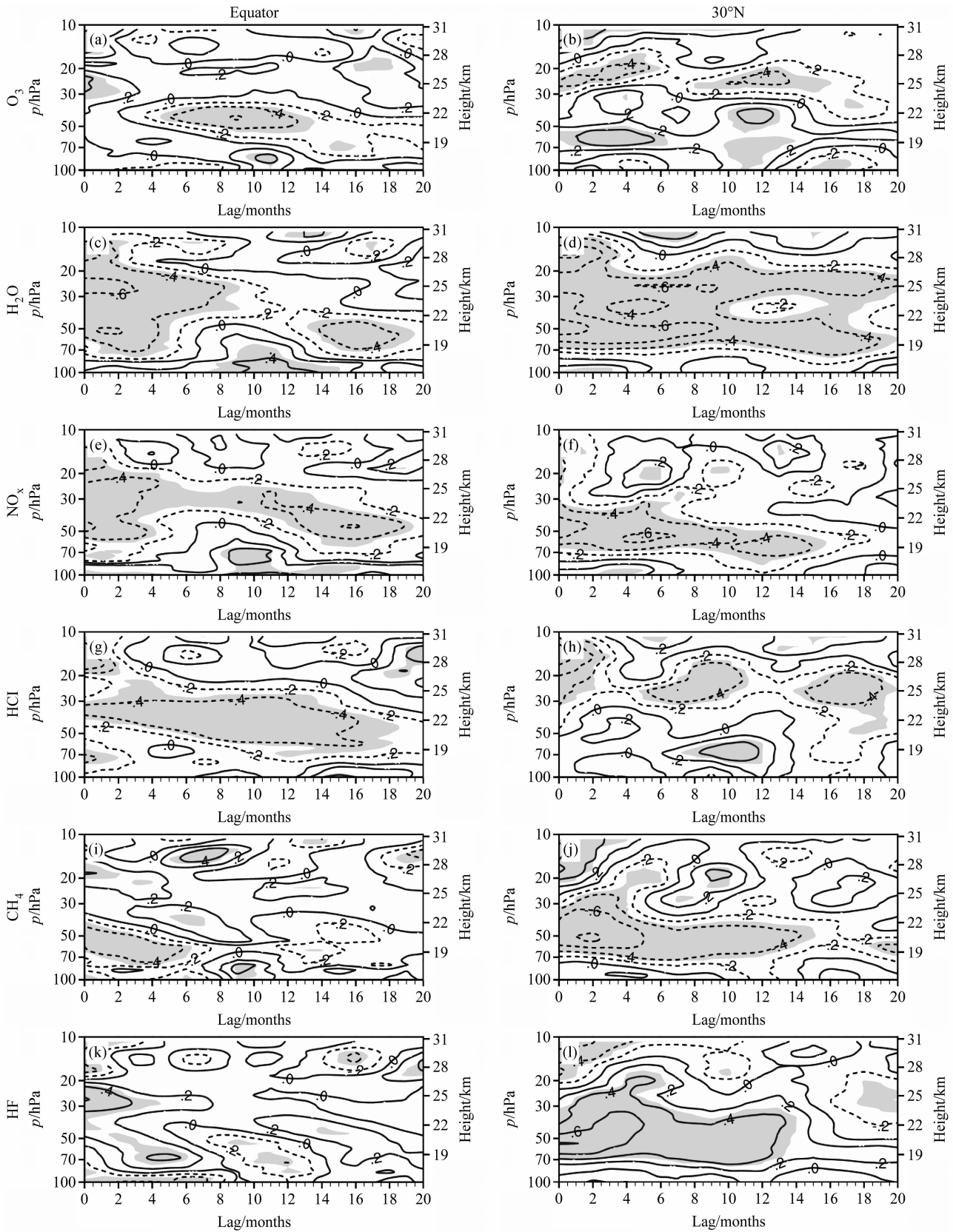


图 2 气溶胶和各微量气体滞后相关性在北半球典型纬度带上的演变特征 (阴影为通过信度 99% 的 t 检验)

Fig. 2 Changes of lag-correlation coefficients between aerosols and trace gases over the equator and 30°N. Student's t -test ($\alpha=0.01$) is passed in shaded areas

联,这可能与硫酸盐气溶胶生成过程和表面非均相反应消耗 H_2O 有关 (Bekki, 1995)。非均相反应促使含氮化合物生成 HNO_3 以及 HCl 储库转换成 Cl 活性基,可能是气溶胶与 NO_x 和 HCl 显示负相关性的原因 (Hanson et al., 1994)。还原性的 CH_4 在平流层化学过程中被 OH 、 $\text{O}(^1\text{D})$ 、 Cl 等活性基氧化而消耗, HF 作为平流层氟化学的最终产物而积累,气溶胶表面非均相反应有利于 CH_4 净损失和 HF 净增加,因此气溶胶与 CH_4 和 HF 的关系在 20 hPa 以下主要表现为负相关和正相关,而在 20 hPa 以上气溶胶含量很低,非均相反应影响有限可能是导致相关性不同于 20 hPa 以下的原因。气

溶胶与 O_3 的相关性没有主导性的典型特征,不同高度、不同纬度差异很大,可能是因为影响 O_3 含量和分布的因素很多,气溶胶与其关系很复杂。

3.2 气溶胶和温度关系分析

平流层温度的变化是地球气候变化中至关重要的、不可分割的组成部分,其变化受到多种因素的影响,其中气溶胶的影响也十分重要。有学者研究表明火山爆发后,平流层会有明显的升温过程 (Labitzke and McCormick, 1992; Angell, 1993)。本文通过分析气溶胶与滞后两年内温度的相关性,研究了火山活动相对平静期气溶胶对平流层温度的影响,如图 3 和图 4 所示。

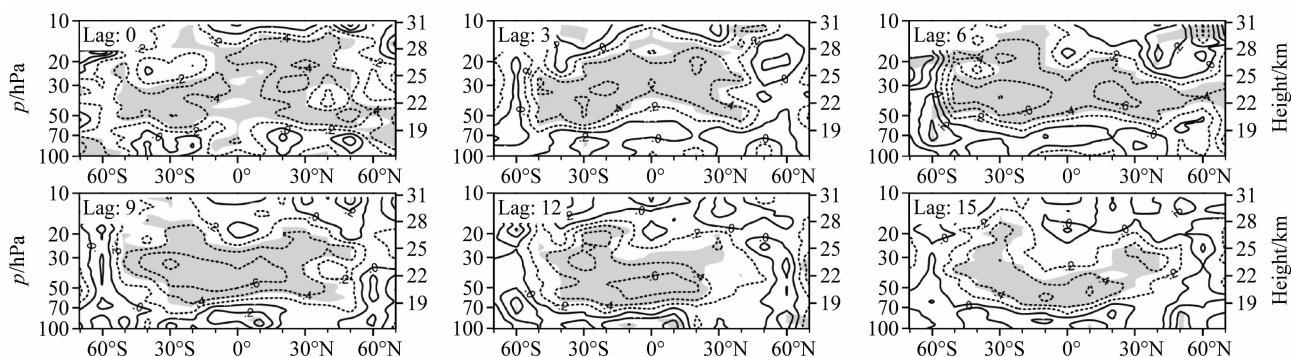


图 3 气溶胶和温度滞后相关系数的纬向平均分布 (滞后时间单位: 月)。阴影: 通过信度 99% 的 t 检验

Fig. 3 Zonal-mean distribution of lag-correlation coefficients between aerosols and temperature. Student's t -test ($\alpha=0.01$) is passed in shaded areas; units for lag time: months

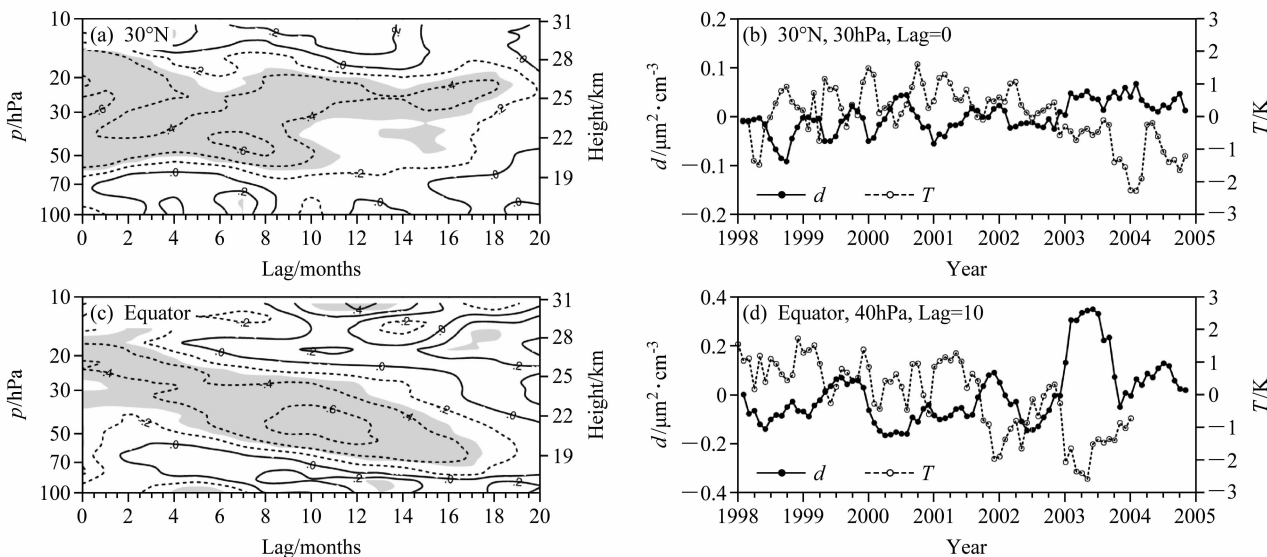


图 4 北半球典型纬度带 (a, b) 30°N 和 (c, d) 赤道上空气溶胶和温度的相关性: (a, c) 滞后相关系数随滞后时间的演变 (阴影为通过信度 99% 的 t 检验); (b, d) 气溶胶和同月温度的时间序列; (d) 气溶胶和 10 个月后的温度的时间序列

Fig. 4 Correlation between aerosols and temperature over (a, b) 30°N and (c, d) equator; (a, c) Evolution of lag-correlation coefficients (Student's t -test at $\alpha=0.01$ is passed in shaded areas); (b, d) time series of aerosol surface area density (d) and temperature (T) for (b) Lag=0 and (d) Lag=10 months

图 3 展示了气溶胶和温度滞后相关性的纬向分布特征，二者的关系以负相关为主，在南北纬 50° 间均有显著表现。相关性大致呈南北半球对称分布，关系显著的气层主要是 70~20 hPa 间。北半球的同期相关比南半球明显，而在南半球滞后相关比北半球维持更久。图 4a、c 反映了北半球典型纬度带上空气溶胶和温度的相关性在滞后两年内的变化情况。赤道和 30°N 上空，气溶胶和温度的负相关能维持到滞后一年半。这意味着气溶胶表面积密度偏大时，气温在随后的一年半内偏低，即气溶胶对平流层表现出长期的致冷效应。图 4b、d 以图 4a、c 中相关性最显著的高度层为例，绘制了气溶胶表面积密度 (d) 和温度 (T) 的时间序列。时间序列清楚地显示出气溶胶表面积密度和温度确实存在反相关的对应关系。

图 5 所示为标准化回归系数绝对值最大项的纬向分布，各分图中阴影区域分别表示气溶胶、 O_3 、 CH_4 、 H_2O 、 NO_x 、 HCl 对温度变化的直接贡献最大，阴影区域的回归方程和回归系数均通过了 99% 的显著性检验。温室气体 O_3 、 H_2O 和 CH_4 的重要性在图 5 中有充分体现，温室气体在大部分气层内

对于温度变化都是最主要的直接贡献者， O_3 的贡献尤为突出。气溶胶有重要影响的直接贡献仅局限在很小范围内。

由此可见，在火山活动相对平静期气溶胶含量处于较低水平的情况下，气溶胶对温度的影响主要是通过化学过程调节微量气体含量和分布进而产生间接辐射效应来实现的，其自身直接的辐射效应并不重要。比较图 1 第一列和图 5，气溶胶与微量气体有显著关系的区域和微量气体有重要贡献的区域存在很大差异，这意味着气溶胶通过参与非均相反应影响平流层热力结构的效率可能并不高。

3.3 数值模拟分析

SOCRATES 模式的模拟结果如图 6 所示，变化幅度为 CaseMax 与 CaseMin 试验的模拟结果之差，实线为正，虚线为负。在气溶胶含量相对较多的情况下，微量气体含量和温度随之变化，即变化幅度为正，则气溶胶促进微量气体生成或抑制其损耗（或温度升高），而负的变化幅度意味着气溶胶促进微量气体损耗或抑制其生成（或温度降低）。

与图 1 滞后相关性的典型特征相对比，图 6 中 O_3 、 NO_x 和 HCl 变化幅度吻合较好， O_3 在 28 km

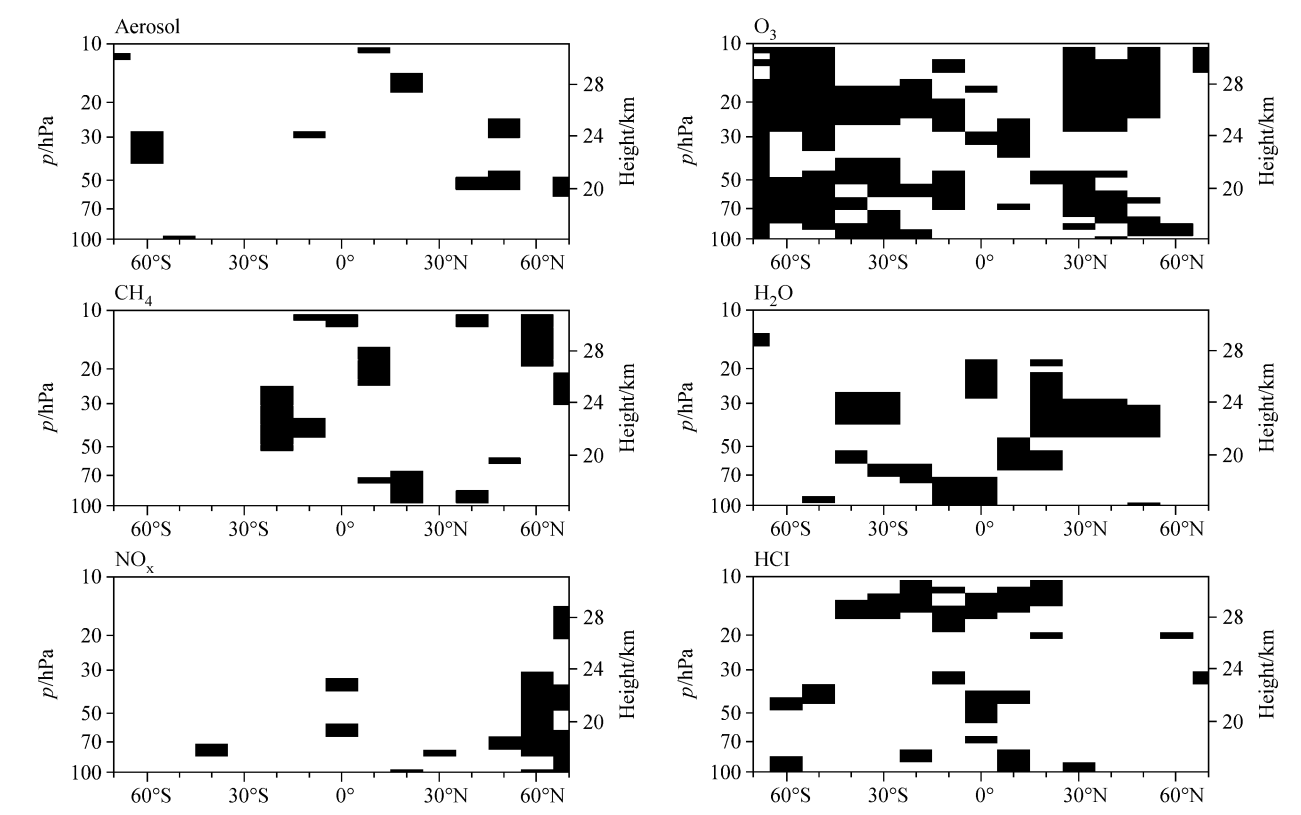


图 5 温度变化受气溶胶和微量气体影响的敏感区域
Fig. 5 Sensitive areas where temperature is affected by aerosols and trace gases

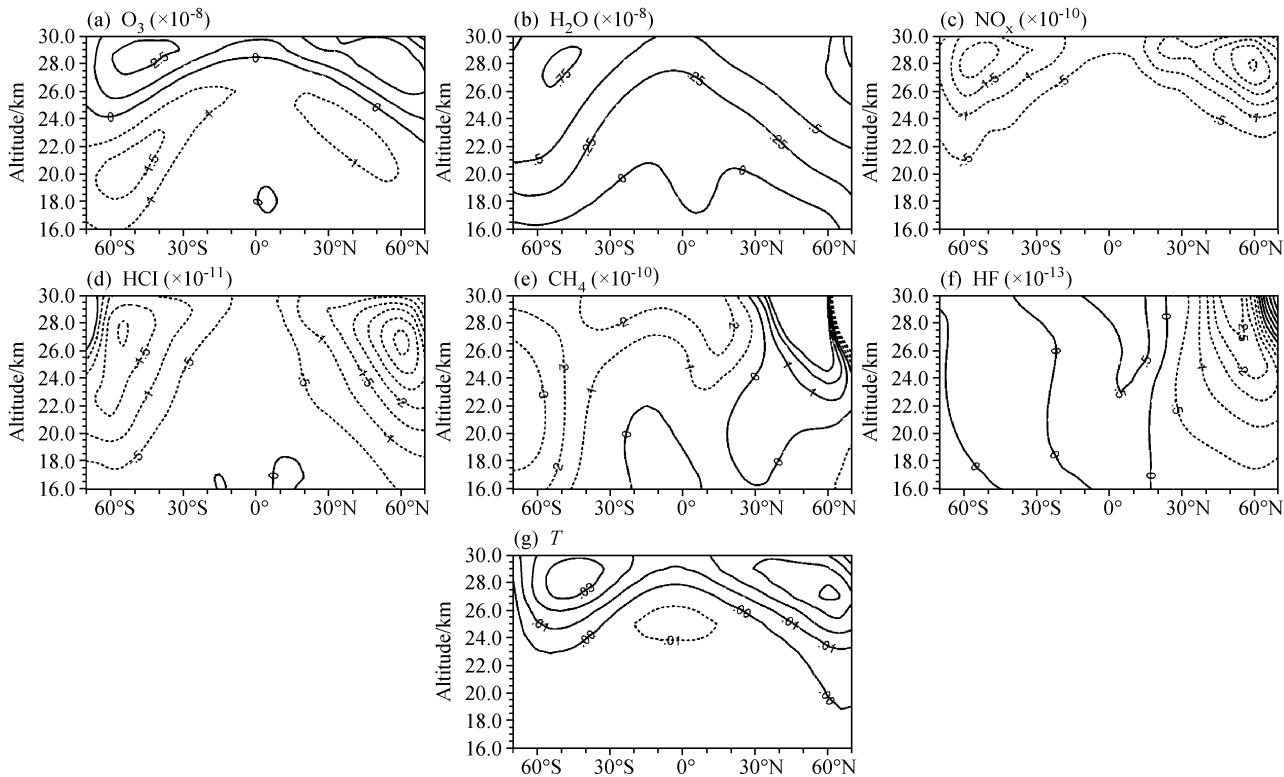


图6 SOCRATES模式模拟的(a-f)微量气体体积混合比和(g)温度(单位:K)随气溶胶变化的变化幅度(CaseMax-CaseMin)

Fig. 6 Changes of (a-f) trace gases volume mixing ratio and (g) temperature (K) with aerosols in SOCRATES simulations (CaseMax minus CaseMin)

以上呈正变化,而 NO_x 和HCl总体呈负变化。 CH_4 在南半球和热带上空的负变化以及HF在中低纬度的正变化也与图1相吻合,这与 CH_4 的净损耗和HF的净生成有关。但 CH_4 和HF模拟结果没有出现20 hPa上下的差异, CH_4 在北半球中高纬度出现正变化,HF在中高纬度出现负变化,这与滞后相关分析结果不一致,可能是因为模式模拟过程与真实大气活动尚有差异。 H_2O 以正变化为主,这与滞后相关分析结果完全相反,这可能是因为SOCRATES模式不涉及气溶胶变化,也可能与 H_2O 受其他因素影响有关(如对流层顶温度是平流层温度年际变化的主要控制因素(Randel et al., 2004))。

温度的负变化与滞后相关分析吻合,即图6g中温度的负变化正好对应图3中70~20 hPa气溶胶和温度的负相关,反映出此高度层内气溶胶在火山活动相对平静期的总辐射效应为致冷。CaseMax和CaseMin中,气溶胶表面积密度变化幅度相比于CaseCtrl大约为120%和80%,而模拟结果中温度

负变化的典型值仅为0.01 K,相当于0.05‰,温度变化幅度远小于气溶胶变化幅度,表明火山活动相对平静期气溶胶的总辐射效应影响很小,确如3.3节所推测。

4 结论与讨论

气溶胶和 O_3 、 H_2O 、 NO_x 、HCl、 CH_4 、HF等微量气体是平流层重要的组成成分,其辐射效应和化学过程对平流层乃至整个大气有独特的重要作用。区别于火山喷发后平流层急剧变化,火山活动相对平静期构成了平流层过程的背景场。在此背景场中,气溶胶对各微量气体的影响以及通过直接和间接的辐射效应对温度的影响,是本文的着眼点。本文从滞后相关性入手分析了气溶胶与微量气体以及温度的关系,并使用SOCRATES模式模拟了微量气体和温度对气溶胶变化的响应,结果如下:

(1) 滞后相关性显示平流层气溶胶与各微量气体关系显著,同期相关性尤为明显,相关性在南北半球分布大致对称,随滞后时间推移总体呈衰退趋

势, 气溶胶与不同微量气体关系的范围和维持时间有所不同。

气溶胶和微量气体与平流层化学过程有密切关系, 平流层化学过程既包括气溶胶表面的非均相反应, 又包括微量气体之间的反应, 而各反应速率与温度、反应物浓度等因素有关, 微量成分的含量和分布也受动力输送等物理过程影响, 这就使得气溶胶和微量气体的关系表现为多种复杂耦合过程的叠加。气溶胶主要集中在 20 hPa 以下, 在此高度层内气溶胶和微量气体的相关性与气溶胶表面发生的非均相反应有很大关系。

(2) 气溶胶和温度的关系在中低纬度 70~20 hPa 间总体呈负相关, 维持时间大致为同期至滞后一年半。多元线性回归模型显示温室气体在大部分气层内对于温度变化都是最主要的直接贡献者, O_3 的贡献尤为突出, 温度对气溶胶的直接贡献并不敏感。

气溶胶对平流层温度的影响既包括其自身辐射效应, 也包括通过参与化学过程改变微量气体含量和分布进而影响辐射收支。气溶胶对平流层温度的影响在火山活动相对平静期应该是间接辐射效应占主导地位, 总辐射效应表现为致冷, 和火山喷发后的致暖效应不同, 这与气溶胶含量多少有关。火山喷发后, 平流层气溶胶含量激增, 其自身辐射明显增强, 表现出阳伞效应, 导致地表温度降低而平流层增暖。而在火山活动相对平静期, 平流层气溶胶含量处于较低水平, 其自身直接的辐射效应不如参与化学过程引起的间接的辐射效应明显。

(3) SOCRATES 二维数值模式模拟了气溶胶含量变化引起的微量气体和温度变化。 O_3 、 NO_x 和 HCl 的变化幅度与其滞后相关性的典型特征吻合较好。 CH_4 和 HF 的模拟结果与相关分析有一定差异, H_2O 的模拟结果和相关分析相反。28 km 以下平流层温度因气溶胶增多而降低, 这一结果与 70~20 hPa 气溶胶和温度的负相关关系一致, 证实此高度层内气溶胶在火山活动相对平静期的总辐射效应为致冷。温度的变化幅度远小于气溶胶的变化幅度, 表明气溶胶的总辐射效应在火山活动相对平静期并不重要。

SOCRATES 模拟结果与相关分析结果有一定差异, 这与模式大气和真实大气不完全一致有关, 如模式中气溶胶表面积密度由初始参数给定而不随

时间变化, 即忽略了气溶胶的生成、清除和动力输送, 化学反应速率和热力—动力结构等与之相关的变化也未予考虑, 此外, 模式中平流层的微量气体来源和温度背景等参数也由初始条件给定, 与 HALOE 观测资料中实际大气不完全一致。

总之, 气溶胶与微量气体有显著关系, 在气溶胶含量较高的气层内, 气溶胶表面的非均相反应对气溶胶与微量气体的关系有重要影响。在火山活动相对平静期, 气溶胶对温度的影响主要通过参与化学过程实现, 自身直接辐射并不起主要作用, 总辐射效应为致冷, 但对温度变化的贡献很小。大气是复杂的非线性多耦合系统, 通过相关分析有助于了解其各方面因素的相互关系, 但作用机制则需要深入探讨。由于 HALOE 不能观测 CO_2 , 本文不包含对此重要温室气体的分析, 有待进一步研究。

致谢 本文使用了 UARS 卫星计划的 HALOE 资料 (<http://haloe.gats-inc.com/home/index.php> [2010-12-07]) 和 NCAR (National Center for Atmospheric Research) 的 SOCRATES 模式 (<http://acd.ucar.edu/models/SOCRATES> [2010-12-07]), 在此真诚感谢提供资料和项目组。

参考文献 (References)

- Angell J K. 1993. Comparison of stratospheric warming following Agung, El Chichón and Pinatubo volcanic eruptions [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 20 (8): 715-718.
- Bekki S. 1995. Oxidation of volcanic SO_2 : A sink for stratospheric OH and H_2O [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 22 (8): 913-916.
- Bi Yun, Chen Yuejuan, Zhou Renjun, et al. 2011. Simulation of the effect of an increase in methane on air temperature [J]. *Adv. Atmos. Sci.*, 28 (1), 129-138.
- Brasseur G, Hitchman M H, Walters S, et al. 1990. An interactive chemical dynamical radiative two-dimensional model of the middle atmosphere [J]. *J. Geophys. Res.*, 95 (D5): 5639-5655.
- Brasseur G, Solomon S. 2005. *Aeronomy of the Middle Atmosphere* [M]. Springer.
- Considine D B, Rosenfield J E, Fleming E L. 2001. An interactive model study of the influence of the mount Pinatubo aerosol on stratospheric methane and water trends [J]. *J. Geophys. Res.*, 106 (D21): 27711-27727.
- Demore W B, Sander S P, Golden D M, et al. 1997. Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling [R]. JPL Publication 97-4.
- Deshler T, Johnson B J, Hofmann D J, et al. 1996. Correlations between ozone loss and volcanic aerosol at altitudes below 14 km over McMurdo station, Antarctica [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 23

- (21): 2931–2934.
- Dutton E G, Christy J R. 1992. Solar radiative forcing at selected locations and evidence for global lower tropospheric cooling following the eruptions of El Chichón and Pinatubo [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 19 (23): 2313–2316.
- Gleason J F, Bhartia P K, Herman J R, et al. 1993. Record low global ozone in 1992 [J]. *Science*, 260 (5107): 523–526.
- Gruzdev A N, Brasseur G P. 2005. Long-term changes in the mesosphere calculated by a two-dimensional model [J]. *J. Geophys. Res.*, 110, D3304, doi: 10.1029/2003JD004410.
- Hansen J, Lacis A, Ruedy R, et al. 1992. Potential climate impact of Mount Pinatubo eruption [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 19 (2): 215–218.
- Hanson D R, Ravishankara A R, Solomon S. 1994. Heterogeneous reactions in sulfuric acid aerosols: A framework for model calculations [J]. *J. Geophys. Res.*, 99 (D2): 3615–3629.
- Hervig M E, Deshler T, Russell J M. 1998. Aerosol size distributions obtained from HALOE spectral extinction measurements [J]. *J. Geophys. Res.—Atmos.*, 103 (D1): 1573–1583.
- Hitchman M H, McKay M, Trepte C R. 1994. A climatology of stratospheric aerosol [J]. *J. Geophys. Res.*, 99 (D10): 20689–20700.
- Hofmann D J, Solomon S. 1989. Ozone destruction through heterogeneous chemistry following the eruption of El Chichón [J]. *J. Geophys. Res.*, 94 (D4): 5029–5041.
- 黄嘉佑. 2004. 气象统计分析与预报方法 [M]. 北京: 气象出版社, 36–50. Huang Jiayou. 2004. Statistical Analysis and Prediction Method for Meteorology (in Chinese) [M]. Beijing: China Meteorological Press, 36–50.
- Khosravi R, Brasseur G, Smith A, et al. 2002. Response of the mesosphere to human-induced perturbations and solar variability calculated by a 2-D model [J]. *J. Geophys. Res.* 107 (D18), 4358, doi: 10.1029/2001JD001235.
- Labitzke K, McCormick M P. 1992. Stratospheric temperature increases due to Pinatubo aerosols [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 19 (2): 207–210.
- Lee H, Smith A K. 2003. Simulation of the combined effects of solar cycle, quasi-biennial oscillation, and volcanic forcing on stratospheric ozone changes in recent decades [J]. *J. Geophys. Res.* 108, 4049, doi: 10.1029/2001JD001503.
- McCormick M P, Thomason L W, Trepte C R. 1995. Atmospheric effects of the Mt Pinatubo eruption [J]. *Nature*, 373 (6513): 399–404.
- Niwano M, Hayashida S, Akiyoshi H, et al. 2009. Seasonal cycles of Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II near-background aerosol in the lower stratosphere [J]. *J. Geophys. Res.*, 114 (D14306): 1–12.
- Portmann R W, Solomon S, Garcia R R, et al. 1996. Role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion in the polar regions [J]. *J. Geophys. Res.*, 101 (D17): 22991–23006.
- Randel W J, Wu F, Oltmans S J, et al. 2004. Interannual changes of stratospheric water vapor and correlations with tropical tropopause temperatures [J]. *J. Atmos. Sci.*, 61 (17): 2133–2148.
- Russell J M, Gordley L L, Park J H, et al. 1993. The halogen occultation experiment [J]. *J. Geophys. Res.*, 98 (D6): 10777–10797.
- 施春华, 陈月娟, 郑彬, 等. 2010. 平流层臭氧季节变化的动力和光化学作用之比较 [J]. *大气科学*, 34 (2): 399–406. Shi Chunhua, Chen Yuejuan, Zheng Bin, et al. 2010. A comparison of the contributions of dynamical transportation and photochemical process to ozone's seasonal variation in the stratosphere [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 34 (2): 399–406.
- Solomon S, Portmann R W, Garcia R R, et al. 1996. The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion at northern midlatitudes [J]. *J. Geophys. Res.—Atmos.*, 101 (D3): 6713–6727.
- Thomason L W, Peter T. 2006. Assessment of stratospheric aerosol properties [R]. SPARC Report No. 4, WCRP-124, WMO/TD No. 1295.
- Tabazadeh A, Turco R P, Jacobson M Z. 1994. A model for studying the composition and chemical effects of stratospheric aerosols [J]. *J. Geophys. Res.—Atmos.*, 99 (D6): 12897–12914.
- Wennberg P O, Cohen R C, Stimpfle R M, et al. 1994. Removal of stratospheric O₃ by radicals: In-situ measurements of OH, HO₂, NO, NO₂, ClO, and BrO [J]. *Science*, 266 (5184): 398–404.
- Zawodny J M, McCormick M P. 1991. Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II measurements of the quasi-biennial oscillations in ozone and nitrogen-dioxide [J]. *J. Geophys. Res.—Atmos.*, 96 (D5): 9371–9377.