

毕云,许利,周任君等. N_2O 增加对大气环境影响的模拟及其与甲烷和平流层水汽影响的比较. 地球物理学报, 2013, 56(1): 38-46, doi:10. 6038/cjg20130104.

Bi Y, Xu L, Zhou R J, et al. Simulation of influence of N_2O 's increase on atmospheric environment and comparison with the influences of methane and stratospheric water vapor. *Chinese J. Geophys.* (in Chinese), 2013, 56(1): 38-46, doi:10. 6038/cjg20130104.

N_2O 增加对大气环境影响的模拟及其与 甲烷和平流层水汽影响的比较

毕 云¹, 许 利¹, 周任君¹, 陈月娟¹, 易明建¹, 邓淑梅²

1 中国科学技术大学地球和空间科学学院, 合肥 230026

2 安徽省气象科学研究所, 合肥 230031

摘 要 本文利用美国国家大气环境中心(NCAR)的二维化学、辐射和动力相互作用的模式(SOCRATES),模拟了大气中 N_2O 增加对 O_3 和温度的影响,并从化学、辐射和动力过程讨论了影响原因,此外还与大气甲烷和平流层水汽增加对大气环境的影响进行了对比.分析表明:大气中 N_2O 浓度增加以后,将通过化学过程引起 30 km 以上 O_3 损耗,30~40 km 损耗较多;30 km 以上降温明显,下平流层中低纬度地区以及对流层 O_3 增加并有微弱升温;30~40 km 附近,北半球中高纬地区 O_3 减少以及降温幅度都大于南半球.对流层升温主要是 N_2O 和 O_3 增加所致,而平流层温度变化主要受 O_3 控制.北半球中高纬地区动力过程对温度变化的反馈较其它地区明显,这种反馈对平流层中高层北半球中高纬地区温度和 O_3 的变化都有明显影响.大气中甲烷增加引起的 O_3 损耗在 45 km 以上,45 km 以下 O_3 增加.平流层水汽增加会引起 40 km 以上 O_3 减少,20~40 km 大部分地区 O_3 增加. N_2O 增加造成的 O_3 损耗正好位于臭氧层附近,其排放对未来 O_3 层恢复至关重要. N_2O 增加引起下平流层 15~25 km 中低纬度地区有弱的升温,这与其它温室气体增加对该地区温度的影响不同, CO_2 , CH_4 和 H_2O 等增加后下平流层通常是降温.

关键词 温室气体,臭氧,平流层化学,剩余环流,NCAR 模式

doi:10. 6038/cjg20130104

中图分类号 P421

收稿日期 2012-06-27,2012-11-07 收修定稿

Simulation of influence of N_2O 's increase on atmospheric environment and comparison with the influences of methane and stratospheric water vapor

BI Yun¹, XU Li¹, ZHOU Ren-Jun¹, CHEN Yue-Juan¹, YI Ming-Jian¹, DENG Shu-Mei²

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

2 Anhui Institute of Meteorological Sciences, Hefei 230031, China

Abstract A sensitivity experiment, with the increasing N_2O volume mixing ratio, was carried out to study the influence of an increase of N_2O on O_3 and temperature using the 2D interactive chemical radiative dynamical (SCORATES) model of the National Center for Atmospheric Research, and the reasons for O_3 and temperature change were analyzed from chemistry, radiation and dynamical processes. Moreover, the differences in influences on the atmospheric environment of methane and water vapor increase as well as N_2O increases were compared. The results show that when N_2O concentration increases, the chemical process results in O_3 depletion

over 30 km, and the high value appear between 30 and 40 km. The cooling is obvious over 30 km, the O₃ increase and slight warming appear at middle-lower latitudes in the lower stratosphere and troposphere. The extents of ozone decrease and cooling over 30~40 km are larger at middle-high latitudes in the North Hemisphere than in the South Hemisphere. The tropospheric warming is mainly caused by the increases of N₂O and O₃, while the temperature change in the stratosphere is mainly dominated by O₃. The dynamical feedback to temperature change is more distinct at middle-high latitudes in the Northern Hemisphere than in other regions and significantly affects temperature and ozone in the middle-high stratosphere at middle-high latitudes in the Northern Hemisphere. Whereas the O₃ depletion caused by methane increase appears above 45 km, and the O₃ increases below 45 km. The stratospheric water vapor increase can result in the O₃ depletion above 40 km, and the O₃ increases in the most of between 20 and 40 km. The O₃ depletion caused by N₂O increase appears right near the O₃ layer, and its emission is very important to the future O₃ layer recovery. The slight warming caused by N₂O increase appears from 15 to 25 km at middle and low latitudes, however the increase in CO₂, CH₄, and stratospheric water vapor can respectively lead to cooling there.

Keywords Greenhouse gas, Ozone, Stratospheric chemistry, Residual circulation, NCAR model

1 引言

N₂O 是一种温室气体,主要是通过与土壤复杂的氮化和消氮化机制相联系的细菌过程而产生的. 对流层里其寿命大约是 120 年,被东京议定书所约束. N₂O 的地表源很多,自然源的排放占多数,主要是海洋和热带雨林. 人为源主要是耕作的土壤(氮肥的使用)、家畜和生物质燃烧. 就目前情形看,人类活动的排放是 N₂O 增加的主要原因,因此更重要的是人为源. N₂O 在对流层充分混合,随大气环流被注入平流层,而且只在平流层中被破坏,生成 NO 和 NO₂. 在 2001 年出版的政府间气候变化专门委员会(IPCC)第三次评估报告(TAR)中, N₂O 是继 CO₂, CH₄ 和 CFC-12 之后具有第四大辐射强迫的长寿命温室气体^[1]. 至 2005 年, CO₂, CH₄, N₂O 的平均浓度分别达到 279.1 ppmv (ppmv=10⁻⁶), 1783 ppbv (ppbv=10⁻⁹) 和 319.2 ppbv, 比工业革命之前 1750 年分别增加了 35.4%, 154.7% 和 18.2%^[2]. 而 1987 年蒙特利尔条约签订以后, CFC-12 的排放得到很好的控制, 其含量已经慢慢下降. 按目前的趋势, N₂O 的辐射强迫位居第三^[3]. 2000 年以后 CH₄ 含量年增长率在 0 附近徘徊, 主要表现为年际变化, 但 CO₂ 和 N₂O 一直是持续增加. 1998 年 N₂O 的地面含量是 314 ppbv, 至 2005 年已经达到 319 ppbv, 其含量几乎是线性增加(大约为 0.2% yr⁻¹)^[3]. 虽然目前 CO₂ 是温室效应最大的贡献者, 但 CH₄ 和

N₂O 的百年全球增温潜能分别是 CO₂ 的 200 和 300 倍. 虽然 CO₂ 在平流层大气热收支中起着核心作用, 但在平流层化学中并不重要. CH₄ 含量的增加往往有利于平流层 O₃ 恢复, 而 N₂O 是平流层 NO 和 NO₂ 的主要来源, 其增加通常造成平流层 O₃ 的损耗, 因此世界气象组织(WMO)在 O₃ 的评估中主要评价 N₂O 的变化. 值得注意的是, 蒙特利尔条约没有限制 N₂O 排放. 最新的研究表明^[4], 在目前, 人类活动造成的 N₂O 排放是唯一最重要的 O₃ 损耗物质, 预期在整个 21 世纪 N₂O 排放都将保持最大. 将来有限制的 N₂O 排放将会增进 O₃ 层的恢复, 也会减少人类活动对气候系统的强迫, 意味着 O₃ 和气候的双赢. 当然, 关于人类活动造成的 N₂O 增长, 以及 N₂O 和 NO_x 增加对平流层 O₃ 影响的定量结果还存在不确定性, 尚需要更多的观测资料 and 与它们有关的一系列光化学反应的深入理论研究^[5].

近十几年来, 我国也陆续建立了一些温室气体(CO₂, CH₄, N₂O)监测站, 包括天津近海、中国东北淡水沼泽湿地、内蒙古典型草地和西北地区等, 积累了一些观测资料, 可以用以分析这些温室气体的日变化、季节变化、周边工农业发展以及天气变化对这些温室气体的影响^[6-8]. 但国内学者对于 CH₄ 和 N₂O 增加对温度和 O₃ 的潜在影响很少分析^[9]. 国外学者模拟温室气体气候效应时往往把 CO₂、CH₄、N₂O 以及 CFCs 等作为一个整体, 很少单独分析 CH₄ 和 N₂O 对大气环境和气候的影响^[10-11]. Bi 等^[12-13]曾利用美国国家大气环境中心(NCAR)的二

维模式(SCORATES)模拟分析了大气 CH_4 和平流层水汽增加对大气环境和温度的影响. 因此本文还是采用这个二维模式来进行 N_2O 增加的数值模拟研究, 并能与甲烷和平流层水汽增加的模拟结果进行对比. 文中第 2 部分简要介绍了 SOCRATES 模式, 第 3 部分是 N_2O 增加模拟试验结果分析, 第 4 部分与甲烷和水汽增加对大气环境影响进行对比, 第 5 部分是结论.

2 SCORATES 模式简介

NCAR 的 SOCRATES (Simulation of Chemistry, Radiation, and Transport of environmentally important Species) 模式, 是一个用来研究对环境问题有重要作用的微量气体的化学、辐射和动力输送的二维模式, 主要用于研究中层大气. 模式垂直方向从地面到 120 km, 分辨率 1 km, 采用对数气压高度作为垂直坐标. 经向从 85°S — 85°N , 分辨率 5° . 下边界固定于 2 km. 模式的化学部分, 考虑了 76 种化学元素和 160 多个化学反应. 辐射部分对于太阳辐射加热和红外辐射加热的考虑都很细致. 动力学框架采用变形欧拉方程, 风场变量本身就是剩余速度, 便于分析动力作用对微量气体的输送. 模式在运行中, 热力学和化学传输方程的时间步长是可变的, 默认运行中取 1 天. 辐射过程时间步长固定为 5 天. 行星波的模式积分也可采用不同的时间步长, 默认是 1 天. 为了更好地描述化学成分的日变化, 未受动力传输影响的化学方程, 白天夜间各 4 个时间步长作积分, 为了解决昼夜和夜昼的过渡, 日出和日落时段分为更短的时间间隔, 因此每天有 14 个时间步长作积分.

SOCRATES 虽然是二维模式, 但是通过多次的改进, 在行星波、重力波和潮汐波的参数化以及 QBO 的参数化等方面得到了完善, 能够较好地模拟中层大气中对环境问题有重要作用的微量气体的化学、辐射和动力输送的相互耦合过程. Gruzdev 和 Brasseur^[11] 曾利用这个模式模拟了中间层大气对过去 50 年来温室气体浓度变化的热力学和化学响应. Lee 和 Smith^[14] 利用此模式分析了太阳循环、准两年周期振荡(QBO)和火山喷发对近 10 年来平流层 O_3 变化的影响. Khosravi 等^[15] 用该模式研究了人类活动和太阳变化对中间层大气的影响. Evans 等^[16] 利用它模拟过平流层臭氧对水汽增加的敏感性. 此模式多次被用来研究热带平流层风场 QBO 对平流层微量气体变化的影响^[17-20]. 本文对模式的

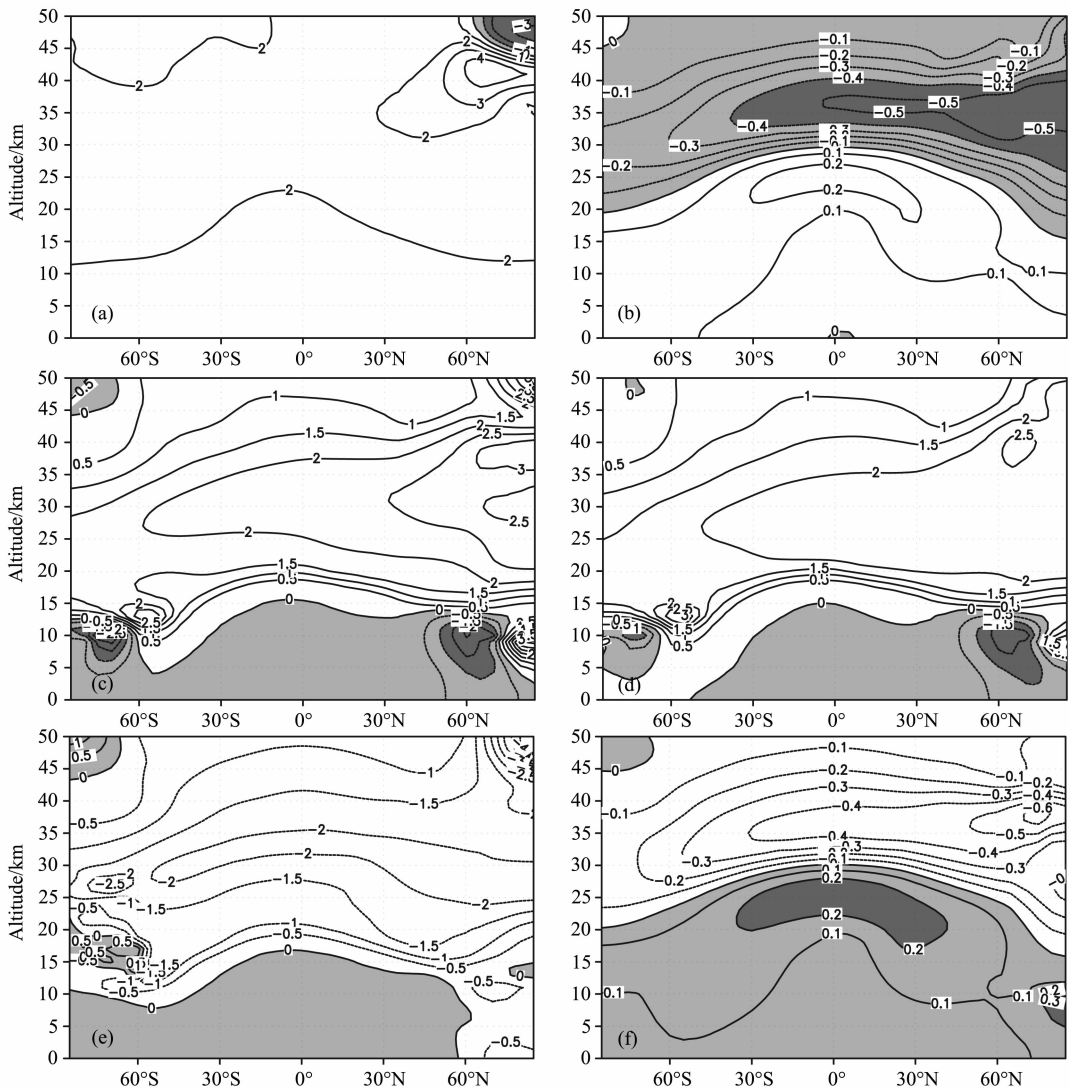
辐射、动力和化学过程不再赘述.

3 模拟试验及结果分析

本次试验包含一个控制试验和一个 N_2O 增加试验, 控制试验对应 1990 年代的大气环境条件, 积分 10 年. 据 IPCC(2007) 报道, 1990 年代以后 N_2O 的年增加率约为 0.2%, 因此本文设计了这样一个 N_2O 增加试验: 假定大气本底 N_2O 的含量有一个 10 年的增加(即 2%), 将模式中地面 N_2O 的体积混合比增加 2%, 其它高度处浓度不变, 积分 10 年. 从模拟的第 5 年起, 模式运行已经相当稳定, 取第 5~10 模拟年的平均进行分析, 并与同期控制试验对比.

3.1 N_2O 增加引起的 O_3 变化及原因

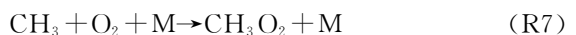
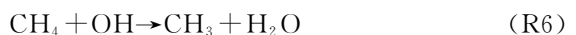
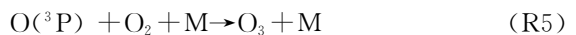
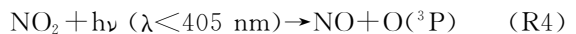
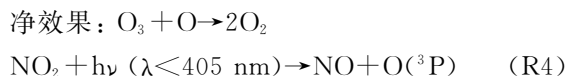
图 1a 是 N_2O 增加试验中年平均 N_2O 体积混合比相对于控制试验的变化, 即 N_2O 增加试验与控制试验的差值. 图 1a 表明, 当大气下边界处 N_2O 混合比增加了 2% 后, 整个对流层里 N_2O 的增量都为 2%. 当 N_2O 随大气环流被输送到平流层后, 受动力过程和化学过程的影响, 平流层里 N_2O 的增量分布并不均匀. 大部分地区增量约为 2%, 但在北半球高纬地区其变化可达 3%~4%, 甚至会减少. 图 1b 是 N_2O 增加引起的年平均 O_3 体积混合比变化百分比. 图 1b 表明, 30 km 以下大部分地区 O_3 增加, 下平流层中低纬地区 O_3 增加约 0.1%~0.2%, 对流层增量较小. 大约 30 km 以上 O_3 减少约 0.1%~0.5%, 30~40 km 减少较多, 35 km 附近减少最多. 30~40 km 附近, 北半球中高纬地区 O_3 含量的减少比南半球多. 臭氧主要分布在平流层大气中, 极大值在 30~35 km 之间. N_2O 增加引起的 O_3 损耗正好位于 O_3 层附近, 对平流层臭氧恢复极为不利. N_2O 在对流层很稳定, 当随大气环流进入平流层后, 很快与激发态氧原子 $\text{O}(^1\text{D})$ 发生反应, 生成 NO (反应式 R1). 而 NO 不稳定, 通过反应式 R2 和 R3, 最终催化破坏 O_3 . Crutzen^[21] 通过观测和计算影响大气臭氧平衡的一系列光化学成分, 认为 R2 和 R3 在 35~45 km 附近最有效. 图 1c, 图 1d 表明, N_2O 增加引起的 NO 和 NO_2 增加主要在平流层 20 km 以上, 其增量分别约为 1%~3% 和 1%~2%. 由于 R3 和 R4 通常相伴随发生, R3 对臭氧破坏具有决定性作用. 下平流层 O_3 增加主要考虑化学反应 R4 和 R5, 它们在平流层下部和对流层上部很重要, 会产生奇氧, 是臭氧的重要源. NO_2 一方面可以通过 R2 生成, 另一方面, 在平流层下部和对流层, 生成臭氧的

图 1 N₂O 增加试验与控制试验的差异(单位: %)(a) N₂O, (b) O₃, (c) NO, (d) NO₂, (e) CH₃O₂, (f) O(³P).Fig. 1 Difference between N₂O-increase and control experiments (unit: %)

循环还可以由 OH 与甲烷和 CO 的反应激发(R6—R9),随后 NO 通过中间产物 CH₃O₂ 和 HO₂ 转化为 NO₂(R10—R11),最后 NO₂ 光离解导致 O₃ 的形成. 图 1e 表明,30 km 以下 NO 增加引起 CH₃O₂ 减少和 NO₂ 增加,而 NO₂ 增加伴随着化学反应 R4,引起 O(³P)增加(图 1f),进而引起 O₃ 增加. 在下平流层和对流层顶附近还必须考虑到羟基(HO₂)对 O₃ 的破坏(R12). R11 表明,NO 会破坏 HO₂,HO₂ 减少相应地引起 O₃ 增加(R12). 分析表明下平流层 HO₂ 减少(图略),引起了 O₃ 增加. 在氮的硝化和去硝化过程中,一部分氮以 N₂O 的形式而不是以 N₂ 的形式排放到大气中. 因为 N₂O 提供了中层大气中 NO 的主要来源,氮肥的使用最终加速了 O₃ 的破坏(R2—R3). 值得注意的是,R2—R3 是一个催化循

环过程,NO 促使 O₃ 破坏,同时又被产生,并不出现 NO 的消耗. 每一个平流层 NO 分子在它的平流层寿命期间,可以催化破坏大约 $1 \times 10^{12} \sim 1 \times 10^{13}$ 个 O₃ 分子^[22]. 因此大气中 NO 的可能扰动会对 O₃ 层带来明显的影响.

主要化学反应式:





3.2 N₂O 增加引起大气温度的变化及其原因

图 2 是 N₂O 增加试验与控制试验的差值, 图 2a—2d 分别对应温度、太阳辐射加热率、长波辐射冷却率和净辐射加热率. 图 2a 表明 N₂O 增加导致平流层中至上层降温, 最大降温在 35~40 km, 可达 0.07 K; 35~45 km 附近北半球中高纬地区降温大于南半球; 下平流层中低纬地区和对流层升温, 约为 0.0001~0.0002 K. 温度变化的原因主要考虑辐射过程. 图 2b 表明, 30 km 以上太阳辐射加热率减少, 将引起降温; 30 km 以下太阳辐射加热率增加, 相应地会引起升温. 图 2c 表明, 30 km 以上长波辐射冷却率减少, 将引起升温; 15~30 km 长波辐射冷却率增加, 引起降温; 15 km 以下长波辐射冷却率减少, 引起升温. 15 km 以上长波辐射冷却率的变化与太阳辐射加热率的变化基本一致. 图 2d 是净辐射加热率(太阳辐射加热率减去红外辐射冷却率)的差值. 可见, 大约 30 km 以下大部分地区净辐射加热率增

加, 与这些地区的升温变化一致(图 2a); 30 km 以上北半球中高纬地区净辐射加热率增加, 但这些地区温度却是下降, 说明这些地区的降温除与辐射变温有关外, 还与其它过程(如动力学过程对热量的输送)有关, 其余大部分地区净辐射加热率减少, 与温度变化一致.

SOCRATES 模式中, 对流层太阳辐射加热率主要考虑水汽、O₃、O₂、CO₂ 以及气溶胶等对太阳辐射的吸收和散射(不涉及光化学过程), 同时考虑云的影响. 平流层 17~25 km 太阳辐射加热率由两部分组成, 一是水汽、O₃、O₂、CO₂ 以及气溶胶对太阳辐射的吸收和散射(不涉及光化学过程), 二是 O₂、O₃ 在紫外波段的吸收, 与光化学过程有关; 26~60 km 的变化主要考虑 O₂、O₃ 对紫外辐射的吸收, 同时可以考虑气溶胶和云的吸收和散射. 0~50 km, 长波辐射冷却主要计算 CO₂、H₂O、O₃、CH₄、N₂O、CFC11、CFC12 和 AERO 的吸收和发射. 在 N₂O 增加试验中, 平流层和对流层太阳辐射加热率的变化主要是 O₃ 改变引起的, O₂ 的影响很小. 平流层中上层 O₃ 减少, 该层吸收的太阳辐射就会减少, 太阳辐射加热率相应减少, 而平流层中上层吸收的太阳辐射减少后, 平流层下层和对流层吸收的太阳

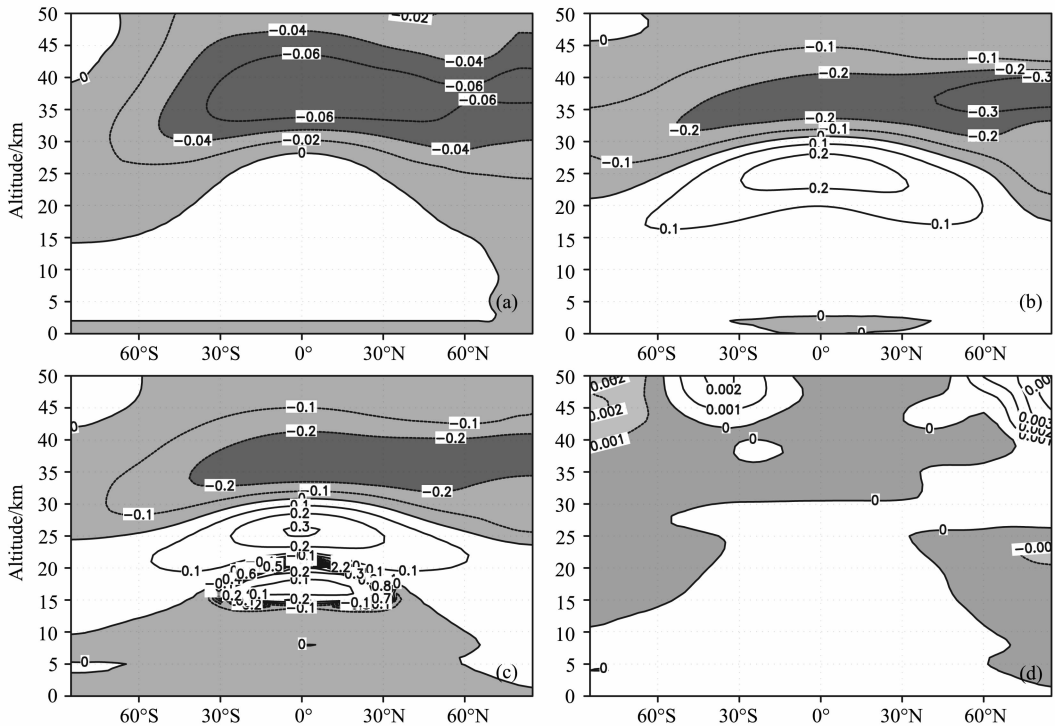


图 2 N₂O 增加试验与控制试验的差异: (a) 温度(单位: K), (b) 太阳辐射加热率(单位: %), (c) 长波辐射冷却率(单位: %), (d) 净辐射加热率(单位: K · d⁻¹)

Fig. 2 Difference between N₂O-increase and control experiments: (a) annual mean temperature (unit: K), (b) solar radiative heating rate (unit: %), (c) infrared radiative cooling rate (unit: %) and (d) net radiative heating rate (unit: K · d⁻¹)

辐射就要多一些,加之那里 O₃ 增加,所以太阳辐射加热率增加.长波辐射冷却率的变化主要由 N₂O 增加、O₃ 变化和温度变化共同影响所致.在平流层 30 km 以上,长波辐射冷却率减少不可能是 N₂O 增加引起,主要是因为 O₃ 减少和温度下降所致,长波辐射过程没有引起降温,降温主要是 O₃ 减少引起太阳辐射加热率减少所致.15~30 km 长波辐射冷却率的增加主要是 O₃ 和 N₂O 增加引起,有利于降温.但这里太阳辐射加热率的增加大于长波辐射冷却率的增加,最终温度有所上升.因此,平流层温度的变化主要受 O₃ 变化控制.对流层里长波辐射冷却率减少主要是 N₂O 增加引起,因为温室气体增加后,不利于长波辐射向空间发射.这里长波辐射变化和太阳辐射变化都有利于升温.可见 N₂O 对大气温度的影响有直接辐射效应和间接辐射效应,其直接辐射效应即温室效应体现在对流层里,而间接辐射效应(通过 O₃ 影响温度)主要在平流层.

3.3 N₂O 增加引起的动力学过程的变化

图 2d 中净辐射加热率变化为正的地方,其降温不能完全用辐射作用来解释,还与动力学过程有关.图 3a, 3b 给出了 N₂O 增加试验与控制试验剩余经

向速度(v^*)和剩余垂直速度(w^*)的差值,表明北半球中高纬度地区 35~45 km 附近向极运动明显增强,在极地分为两支,一支向上运动然后在平流层高层转变为向南运动,最后在中低纬度下沉,这支环流使原来的剩余环流减弱;另一支在极地下沉,至平流层中层向南运动,后在中纬度地区上升.剩余环流的变化与温度变化有关,反过来也会影响温度.35~45 km 附近的向极运动有增温效果,但极地的上升运动,以及平流层高层和中层的向南运动都将起到降温作用,当剩余环流降温较大时,辐射过程则转变为抑制降温.剩余环流的变化也会引起微量成分特别是 O₃ 分布的改变.由于剩余环流在平流层中高层北半球中高纬地区变化最明显,因此,它对 O₃ 的影响也主要在这里.平流层中层 30~40 km 附近,北半球中高纬地区的 O₃ 减少量比南半球大(图 1b),这一特征与剩余环流对其输送有关.可见,大气中 N₂O 增加后,通过直接和间接辐射过程(主要与 O₃ 有关)的变化改变了温度场,温度场改变后又会引起流场的改变,流场的改变一方面通过水平和垂直运动反过来影响温度场的变化,另一方面又会引起微量气体分布(主要是 O₃)的变化,进而引起辐射加热率的变化.

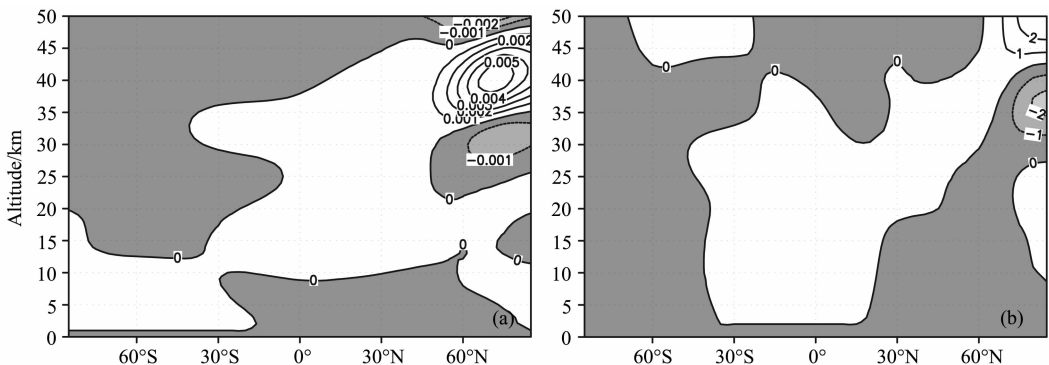


图 3 N₂O 增加试验与控制试验的差异: (a) 剩余经向速度 v^* (单位: $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$), (b) 剩余垂直速度 w^* (单位: $10^{-5} \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)

Fig. 3 Difference between the N₂O increase and control experiments; (a) residual meridional velocity (unit: $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$) and (b) residual vertical velocity (unit: $10^{-5} \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)

4 N₂O、甲烷和平流层水汽增加引起 O₃ 和温度变化的差异

对平流层温度有重要影响的温室气体,主要是 CO₂、O₃ 和 H₂O,对平流层 O₃ 有重要影响的微量气体主要是 H₂O, CH₄ 和 NO_x. 甲烷是一种重要的温室气体,自工业时代以来已经有了明显增加,受东京议定书所约束.甲烷也是对大气环境变化有重要作

用的微量气体,通常有两面性——既保护大气又改变大气.甲烷的负面影响主要是因为它直接增加了温室效应,这种温室效应的产生有两种途径,首先是甲烷吸收红外辐射,其次甲烷增加会引起平流层水汽的增加,进而加剧了温室效应.甲烷也有有利的一面即在平流层里可以与 Cl 反应,清除 Cl 从而保护了 O₃. 水汽是平流层重要的微量成分,也是一种重要的温室气体.观测表明平流层水汽自 1980 年代以后有明显增加.平流层水汽的辐射和化学性质都很活跃,是平流层 OH 重要来源之一,而 OH 是破坏

平流层 O_3 的重要物质.

大气中甲烷和平流层水汽增加与 N_2O 增加对平流层 O_3 和大气温度的影响有差异,为了更具体地比较这种差异,下面给出利用 SOCRATES 模拟的大气甲烷含量和平流层水汽增加的结果. 甲烷增加试验中,在积分初始阶段将各个高度和纬度甲烷的体积混合比均增加 10%(相当于 10 年的增量),积分 10 年,结果分析取第 4~10 年的平均^[12]. 图 4a, 4b 分别是甲烷增加引起大气 O_3 含量和温度的改变. 图 4a 表明甲烷增加 10% 时,将使对流层 O_3 增加 1%~3.5%,平流层大部分地区 O_3 也有所增加但大多低于 0.5%,平流层 45 km 以上 O_3 减少. 虽然对流层 O_3 增加的百分比更大,但由于对流层 O_3 含量很少,其体积混合比实际增加量比平流层小得多. 图 4b 表明,甲烷增加将引起 15 km 以上平流层降温而对流层升温. 文献[12]分析还表明,平流层降温主要是因为甲烷增加引起的平流层水汽和 O_3 增加导致的长波辐射冷却率增加所致,它本身的长波辐射冷却是次要的.

在平流层水汽增加试验中,控制试验运行至第 7

年已经相当稳定,所以从第 7 年 1 月开始,在各纬度带 14~46 km 将水汽混合比逐年均匀增加 0.05 ppmv(约 1%),47~55 km 随高度升高水汽混合比年增加量逐渐减至 0,至第 25 年 12 月停止. 模式运行至第 13 年后已经稳定,结果分析取第 14~23 年的平均^[13]. 图 5a, 5b 是平流层水汽增加对 O_3 和温度的影响. 图 5a 表明,平流层水汽增加会导致平流层 20~40 km 的大部分地区 O_3 增加, O_3 损耗主要发生在 40 km 以上. 平流层水汽增加将导致 15 km 以上平流层降温和对流层升温(图 5b). 虽然 CO_2 在平流层大气热收支中起着核心作用,但在平流层化学中是不重要的,因为它没有反应能力. 从 O_3 层恢复的角度看, N_2O 的排放对 O_3 恢复起着非常重要的作用,这也是 WMO 在 O_3 评估中总要关注 N_2O 排放变化的原因. Ravishankara 等^[4] 计算了 N_2O 和其它 O_3 损耗物质的臭氧破坏潜能(ODP)认为,目前人类活动造成的 N_2O 排放是最重要的 O_3 损耗物质. 从对温度场的影响看, CO_2 ^[23], CH_4 , H_2O 等增加后下平流层 15~25 km 通常是降温,而 N_2O 增加则会引起 15~25 km 中低纬地区升温,但升温幅度较小.

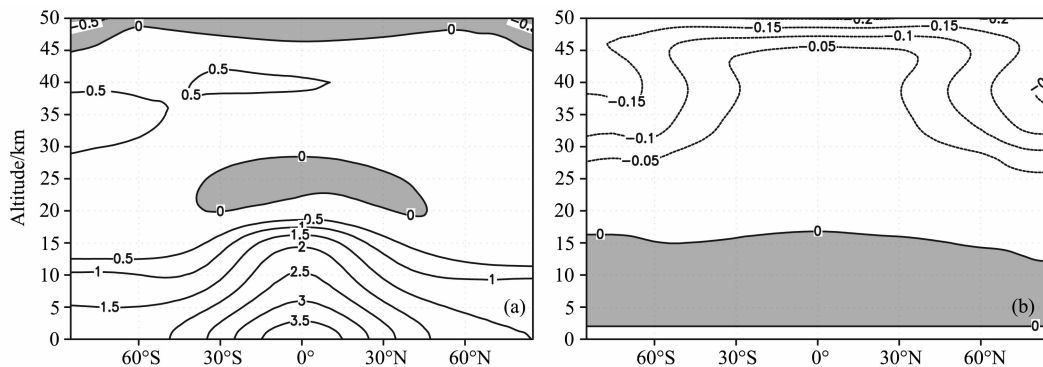


图 4 大气中甲烷增加 10% 引起(a) O_3 (单位: %)和(b)温度(单位: K)的变化

Fig. 4 Changes of (a) O_3 (unit: %) and (b) temperature (unit: K) caused by methane's increased 10%

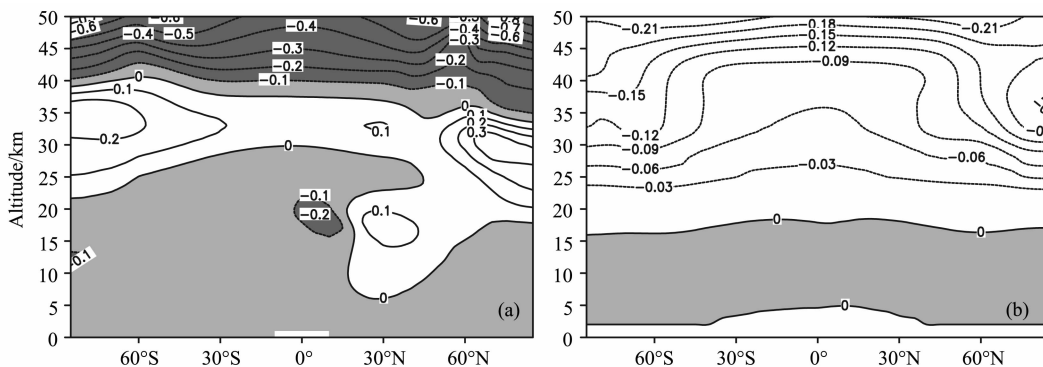


图 5 平流层水汽增加引起的(a) O_3 (单位: %)和(b)温度(单位: K)变化

Fig. 5 Changes in (a) O_3 (unit: %) and (b) temperature (unit: K) caused by stratospheric water vapor increase

5 结 论

本文利用 NCAR 的二维化学、辐射和动力相互作用的模式 (SOCRATES), 设计了大气中 N₂O 增加 2% 的模拟试验, 从化学、辐射和动力过程分析了 N₂O 增加引起的 O₃ 和温度的变化及原因, 并与大气甲烷和平流层水汽增加对大气环境和温度的影响进行了比较. 主要结论如下:

(1) 大气本底 N₂O 浓度增加 2% 以后, 引起平流层 NO 增加约 1%~2%, NO₂ 增加约 1%~3%. 大约 30 km 以上 O₃ 减少约 0.1%~0.5%, 30~40 km 减少较多, 35 km 附近减少最多. 30~40 km 附近北半球中高纬地区 O₃ 减少比南半球多. 大约 30 km 以下大部分地区 O₃ 增加, 下平流层中低纬地区 O₃ 增加约 0.1%~0.2%, 对流层增量较小.

(2) 大气中 N₂O 增加 2% 后, 平流层里 30 km 以上降温可达 0.07 K, 30~45 km 附近, 北半球中高纬地区降温大于南半球. 下平流层中低纬度地区以及对流层都升温, 但升温幅度非常小.

(3) 平流层里 N₂O 与激发态的 O 发生化学反应生成 NO, NO 又与 O₃ 反应生成了 NO₂, 平流层中上层 NO 的催化循环造成 O₃ 损耗. 在下平流层 NO 与 CH₃O₂ 和 HO₂ 的反应最终使 O₃ 增加. N₂O 增加引起的平流层中上层的降温主要是 O₃ 减少引起太阳辐射加热率减少所致; 下平流层增温是 O₃ 增加引起太阳辐射加热率增加所致, 长波辐射的影响较小. N₂O 增加引起长波辐射加热和 O₃ 增加引起太阳辐射加热共同导致对流层升温. 平流层温度变化后又会引起剩余环流变化, 流场的改变一方面通过水平和垂直运动反过来影响温度场的变化, 另一方面又会引起微量气体分布 (主要是 O₃) 的变化, 进而引起辐射加热率的变化. 平流层里, 北半球中高纬地区动力过程对温度变化的反馈较其它地区明显, 这种反馈对平流层中高层北半球中高纬地区的温度和 O₃ 变化都有明显影响.

(4) N₂O 增加对 O₃ 的影响与甲烷和水汽有所不同, 大气甲烷增加引起的 O₃ 损耗在 45 km 以上, 45 km 以下 O₃ 增加. 平流层水汽增加后, 平流层 20~40 km 大部分地区 O₃ 增加, O₃ 损耗主要发生在 40 km 以上. 由于 O₃ 层主要位于平流层 30~35 km, N₂O 增加造成的 O₃ 损耗正好位于 O₃ 层附近, 对 O₃ 造成的损耗非常明显. N₂O 增加引起下平流层 25~25 km 中低纬度地区有弱的升温, 这与

CO₂, CH₄ 和水汽等温室气体增加对温度的影响不同, 后者通常是降温.

致 谢 感谢美国国家大气研究中心 (NCAR) 提供了 SOCRATES 模式.

参考文献 (References)

- [1] Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). Climate Change 2001: The Physical Science Basis. New York: Cambridge University Press, 2001: 881.
- [2] World Metrological Organization. The state of greenhouse gases in the atmosphere using global observation through 2005. *WMO Greenhouse Gas Bulletin*, 2006, 2: 1-4.
- [3] Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). Climate Change 2007: The Physical Science Basis. New York: Cambridge University Press, 2007: 996.
- [4] Ravishankara A R, Daniel J S, Portmann R W. Nitrous Oxide (N₂O): The dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century. *Science*, 2009, 326(5949): 123-125.
- [5] 王明星. 大气化学 (第二版). 北京: 气象出版社, 1999: 467.
Wang M X. Atmospheric Chemistry (2nd ed) (in Chinese). Beijing: China Meteorological Press, 1999: 467.
- [6] 孔少飞, 陆炳, 韩斌等. 天津近海大气中 CH₄, N₂O 和 CO₂ 的季节变化分析. *中国科学: 地球科学*, 2010, 40(5): 666-676.
Kong S F, Lu B, Han B, et al. Seasonal variation analysis of atmospheric CH₄, N₂O and CO₂ in Tianjin offshore area. *Sci. China Earth Sci.* (in Chinese), 2010, 40(5): 666-676.
- [7] 于家宝, 刘景双, 孙志高等. 中国东北区淡水沼泽湿地 N₂O 和 CH₄ 排放通量及主导因子. *中国科学: 地球科学*, 2009, 39(2): 177-187.
Yu J B, Liu J S, Sun Z G, et al. The fluxes and controlling factors of N₂O and CH₄ emissions from freshwater marsh in Northeast China. *Sci. China Earth Sci.* (in Chinese), 2009, 39(2): 177-187.
- [8] 董云社, 章申, 齐玉春等. 内蒙古典型草地 CO₂, N₂O, CH₄ 通量的同时观测及其日变化. *科学通报*, 2000, 45(3): 318-322.
Dong Y S, Zhang S, Qi Y C, et al. Fluxes of CO₂, N₂O and CH₄ from a typical temperate grassland in Inner Mongolia and its daily variation. *Chinese Science Bulletin* (in Chinese), 2000, 45(3): 318-322.
- [9] 王革丽, 杨培才. 平流层臭氧活动对人类活动排放氯化物及氮氯化物的非线性响应. *地球物理学报*, 2007, 50(1): 51-57.
Wang G L, Yang P C. On the nonlinear response of lower stratospheric ozone to NO_x and ClO_x perturbations. *Chinese J. Geophys.* (in Chinese), 2007, 50(1): 51-57.
- [10] Manzini E, Steil B, Brühl C, et al. A new interactive chemistry-climate model; 2. Sensitivity of the middle atmosphere to ozone depletion and increase in greenhouse

- gases and implications for recent stratospheric cooling. *J. Geophys. Res.*, 2003, 108(D14): 4429-4450.
- [11] Gruzdev A N, Brasseur G P. Long-term changes in the mesosphere calculated by a two-dimensional model. *J. Geophys. Res.*, 2005, 110(D3): 304-321.
- [12] Bi Y, Chen Y J, Zhou R J, et al. Simulation of the effect of an increase in methane on air temperature. *Adv. Atmos. Sci.*, 2011, 28(1): 129-138.
- [13] Bi Y, Chen Y J, Zhou R J, et al. Simulation of the effect of water-vapor increases on temperature in the stratosphere. *Adv. Atmos. Sci.*, 2011, 28(4): 832-842.
- [14] Lee H, Smith A K. Simulation of the combined effects of solar cycle, quasi-biennial oscillation, and volcanic forcing on stratospheric ozone changes in recent decades. *J. Geophys. Res.*, 2003, 108(D2): 4049-4064.
- [15] Khosravi R, Brasseur G, Smith A, et al. Response of the mesosphere to human-induced perturbations and solar variability calculated by 2-D model. *J. Geophys. Res.*, 2002, 107(D18): 4358-4378.
- [16] Evans S J, Toumi R, Harries J E, et al. Trends in stratospheric humidity and the sensitivity of ozone to these trends. *J. Geophys. Res.*, 1998, 103(D8): 8715-8725.
- [17] Chen Y J, Zheng B, Zhang H. The features of ozone quasi-biennial oscillation in tropical stratosphere and its numerical simulation. *Adv. Atmos. Sci.*, 2002, 19(5): 777-793.
- [18] Chen Y J, Shi C H, Zheng B. HCl quasi-biennial oscillation in the stratosphere and a comparison with ozone QBO. *Adv. Atmos. Sci.*, 2005, 22(5): 751-758.
- [19] 郑彬, 陈月娟, 张弘. NO_x 的准两年周期变化及其与臭氧准两年周期振荡的关系 II. 模拟研究. 大气科学, 2003, 27(6): 1007-1017.
- Zheng B, Chen Y J, Zhang H. Quasi-biennial oscillation in NO_x and relation to in O₃ QBO part II: Numerical experiment. *Chinese J. Atmos. Sci.* (in Chinese), 2003, 27(6): 1007-1017.
- [20] 施春华, 郑彬, 陈月娟等. 热带平流层水汽的准两年周期振荡. 地球物理学报, 2009, 52(10): 2428-2435.
- Shi C H, Zheng B, Chen Y J, et al. The quasi-biennial oscillation of water vapor in tropic stratosphere. *Chinese J. Geophys.* (in Chinese), 2009, 52(10): 2428-2435.
- [21] Crutzen P J. Photochemical reactions initiated by and influencing ozone in unpolluted tropospheric air. *Tellus*, 1974, 26(1-2): 46-57.
- [22] G. 布拉塞, S. 索洛蒙. 中层大气化学和物理学. 黄润恒译. 北京: 气象出版社, 1988: 462.
- Brasseur G P, Solomon S. *Aeronomy of the Middle Atmosphere* (in Chinese). Huang R H Trans. Beijing: China Meteorological Press, 1988: 462.
- [23] Ramaswamy V, Chanin M L, Angell J. Stratospheric temperature trends: Observations and model simulations. *Reviews of Geophysics*, 2001, 39(1): 71-122.

(本文编辑 何 燕)