CONTRIBUTION OF MAJOR AEROSOL SPECIES ON AEROSOL AND CLOUD RADIATIVE FORCING OVER THE SOUTH ASIAN REGION

AMIT KUMAR SHARMA

CENTRE FOR ATMOSPHERIC SCIENCE

INDIAN INSTITUTE OF TECHNOLOGY DELHI

HAUZ KHAS, NEW DELHI – 110016

June 2025

ABSTRACT

Atmospheric aerosols, fine particulate matter suspended in the air, are among the most influential and uncertain components of the Earth's climate system. Their ability to perturb the radiative energy balance through both direct interactions with solar and terrestrial radiation and indirect effects via cloud microphysical processes is particularly significant in regions of intense anthropogenic activity. South Asia, home to some of the highest aerosol concentrations globally, has emerged as a key region for understanding how aerosols shape regional climate dynamics, influence monsoon variability, and contribute to long-term changes in surface and atmospheric energy budgets. Motivated by the complex interplay between emissions, radiative effects, and climate response in this region, the present thesis undertakes a comprehensive investigation into the contribution of major anthropogenic aerosol species, namely black carbon (BC), sulfate, and organic carbon (OC), to aerosol and cloud radiative forcing over South Asia, with a primary focus on India. The study systematically assesses aerosol-induced perturbations to the Earth's radiation budget across multiple timescales, encompassing present-day assessments, historical trends, and future projections under Shared Socioeconomic Pathways (SSPs). This is achieved using a combination of simulations from advanced global climate models (CAM5 and CAM6) and a multi-model evaluation framework, with emphasis on component-wise (ERF_{ARI}, ERF_{ACI}, ERF_{RES}), vertical (top of atmosphere, surface, atmospheric column), and spectral (shortwave, longwave, net) disaggregation, as well as species-specific attribution of radiative forcing.

Model simulations for the present-day decade (2005–2014) reveal that anthropogenic aerosols exert a significant net cooling effect at the top of the atmosphere (TOA), with CAM5 estimating a TOA ERF of –1.21 W/m² and CAM6 indicating an even more pronounced cooling of –2.39 W/m². These negative forcing values are accompanied by considerable surface solar dimming, with surface ERF reaching as low as –10.6 W/m² in CAM5 and –10.93 W/m² in CAM6. The atmospheric column, by contrast, exhibits net absorption of +9.38 W/m² and +8.54 W/m², respectively, reflecting strong shortwave absorption primarily attributable to black carbon. This vertical redistribution of energy, concentrated especially over the Indo-Gangetic Plain, results in enhanced lower tropospheric stability and reduced convective activity. Incorporating the high-resolution SMoG–India emission inventory significantly alters these results, shifting CAM5's TOA ERF from negative to nearly neutral (+0.07 W/m²), and CAM6's ERF to a less

negative value (–1.39 W/m²), while simultaneously increasing atmospheric absorption in both models. These results underscore the critical role of emission inventory resolution and spatial accuracy in shaping modeled radiative outcomes and interpreting regional climate signals.

To attribute forcing to specific aerosol types, species-tagged CAM6 simulations for the year 2014 were performed. Black carbon emerges as the dominant warming agent at TOA with a net ERF of +1.19 W/m², while inducing a surface dimming of –3.9 W/m² and atmospheric absorption of +5.09 W/m². These effects stem almost entirely from aerosol–radiation interactions (ERF_{ARI}), with only modest cloud responses. Conversely, sulfate aerosols induce a strong cooling effect, with TOA ERF of –2.32 W/m² and surface ERF of –5.08 W/m², accompanied by limited atmospheric absorption of +2.76 W/m². The sulfate-induced cooling is driven largely by aerosol–cloud interactions (ERF_{ACI}), which increase cloud droplet number concentrations, reduce droplet sizes, and enhance cloud albedo and longevity. Organic carbon exhibits intermediate radiative behavior, with a TOA ERF of –3.10 W/m² and modest atmospheric and surface effects, reflecting its dual scattering and weakly absorbing properties and its moderate impact on cloud microphysics. These species-specific diagnostics provide crucial insight into the divergent roles of different aerosol types in shaping the regional radiation budget and hydrometeorological dynamics.

Extending the analysis back in time, simulations using CAM6 and CMIP6 historical emissions reveal that between 1900 and 2014, the net TOA ERF over India intensified from –0.38 W/m² to –2.49 W/m², largely due to increased sulfate emissions. The ERF_{ACI} component of sulfate alone deepened from –0.54 W/m² to –3.76 W/m² over this period, as industrial activity accelerated and emissions rose steeply. Black carbon-induced ERF_{ARI} grew more slowly, resulting in a moderate TOA warming contribution, yet it significantly altered atmospheric heating, which increased from +0.5 W/m² in 1900 to +9.5 W/m² by 2014. Notably, BC accounted for more than 75% of this increase in atmospheric absorption. These trends mirror historical shifts in surface radiation, cloud properties, and rainfall patterns, including enhanced cloud water paths and reduced surface insolation, which together contributed to regional hydrological changes and potential weakening of the monsoon system.

Future projections using SSP-based CAM6 simulations depict divergent trajectories for aerosol forcing under different emissions pathways. Under SSP3-7.0, where emissions remain high due to continued fossil fuel use and limited regulation, TOA ERF remains strongly negative (–2.5 W/m²), surface dimming intensifies (–12 W/m²), and atmospheric heating persists at

elevated levels (~+10 W/m²) throughout the century. In contrast, SSP1-2.6, an aggressive mitigation scenario, drives both TOA and surface ERF toward near-neutrality and reduces atmospheric absorption to near zero by 2100. SSP5-8.5 shows intermediate behavior, with strong aerosol effects persisting until mid-century and then declining sharply. A key result across all scenarios is the persistence of black carbon as a major contributor to atmospheric heating and sulfate as the primary driver of cooling through ERF_{ACI}. The simulations also suggest a short-term warming rebound, especially under strong mitigation, resulting from rapid sulfate declines that reduce aerosol masking of greenhouse gas–driven warming.

Collectively, the findings of this thesis underscore the species-specific, spatially heterogeneous, and temporally dynamic nature of aerosol-induced radiative forcing over South Asia. Sulfate aerosols are identified as the primary cooling agents, mainly via cloud-mediated pathways, while black carbon exerts a powerful warming influence through direct absorption and stabilization of the lower atmosphere. Organic carbon, although less dominant, contributes to both radiative scattering and modest cloud effects. These results highlight the importance of vertically resolved and spectrally disaggregated diagnostics in understanding aerosol–climate interactions and demonstrate how the choice of emission inventory and model physics can substantially affect simulated outcomes. The combined use of multiple models, emission inventories, and ERF decomposition methods provides a more physically consistent and regionally relevant picture of aerosol–climate interactions than previously available in the literature.

In advancing the scientific frontier, this research calls for future efforts to address several outstanding challenges. These include linking aerosol forcing to regional energy imbalances and precipitation suppression, isolating semi-direct effects and rapid adjustments induced by absorbing aerosols, incorporating natural and mixed-aerosol regimes, and employing fully coupled Earth system models to capture feedback on ocean–atmosphere dynamics. Furthermore, improved integration of satellite and in situ observations into climate model evaluation is needed to constrain uncertainties in forcing estimates, especially in the vertical domain. Addressing these knowledge gaps will be critical for improving regional climate projections, guiding effective mitigation strategies, and developing comprehensive climate–air quality policy frameworks for South Asia, a region where the stakes for environmental sustainability, public health, and economic resilience are extraordinarily high.

सारांश

वायुमंडलीय एरोसोल, हवा में निलंबित सूक्ष्म कण पदार्थ, पृथ्वी की जलवायु प्रणाली के सबसे प्रभावशाली और अनिश्चित घटकों में से एक हैं। ये सौर और पृथ्वी विकिरण के साथ प्रत्यक्ष अंतःक्रिया तथा बादलों की सूक्ष्म भौतिक प्रक्रियाओं के माध्यम से अप्रत्यक्ष प्रभाव डालकर विकिरणीय ऊर्जा संतुलन को बाधित करने की अद्वितीय क्षमता रखते हैं, विशेष रूप से उन क्षेत्रों में जहाँ मानवीय गतिविधियाँ अत्यधिक हैं। दक्षिण एशिया, जो विश्व में कुछ सबसे उच्च एरोसोल सांद्रता वाले क्षेत्रों में शामिल है, यह समझने के लिए एक प्रमुख क्षेत्र के रूप में उभरा है कि किस प्रकार एयरोसोल क्षेत्रीय जलवायु गतिशीलता को आकार देते हैं, मानसून की परिवर्तनशीलता को प्रभावित करते हैं, और सतह और वायुमंडलीय ऊर्जा बजट में दीर्घकालिक परिवर्तनों में योगदान करते हैं। इस क्षेत्र में उत्सर्जन, विकिरणकारी प्रभावों और जलवायु प्रतिक्रिया के कारण जटिल अंतःक्रियाओं से प्रेरित होकर, प्रस्तुत शोध में भारत पर प्राथमिक ध्यान देने के साथ, दक्षिण एशिया में एरोसोल और बादल विकिरण बल में प्रमुख मानवजनित एयरोसोल प्रजातियों, अर्थात् ब्लैक कार्बन (बीसी) सल्फेट और कार्बनिक कार्बन (ओसी) के योगदान की व्यापक जांच की गई है। यह अध्ययन व्यवस्थित रूप से पृथ्वी के विकिरण बजट में एयरोसोल-प्रेरित परिवर्तन का मूल्यांकन विभिन्न समय-स्तरों पर करता है जिसमें वर्तमान स्थितियों का विश्लेषण, ऐतिहासिक प्रवृत्तियाँ, तथा साझा सामाजिक-आर्थिक मार्ग (एसएसपी) के अंतर्गत भविष्य की संभावनाएँ के अनुमान शामिल हैं। इस उद्देश्य की पूर्ति उन्नत वैश्विक जलवायु मॉडलों (सीएएम5 और सीएएम6) से प्राप्त सिमुलेशन के संयोजन और एक बहु-मॉडल मूल्यांकन ढांचे के संयोजन द्वारा की जाती है, जिसमें घटक-वार (ERF_{ARI}, ERF_{ACI}, तथा ERF_{RRES}), ऊर्ध्वाधर (वायुमंडल के शीर्ष, सतह, एवं वायुमंडल) और वर्णक्रमीय (शॉर्टवेव, लॉन्गवेव, एवं नेट) पृथक्करण के साथ-साथ विकिरणकारी बल के प्रजाति-विशिष्ट बल का स्रोत-विशेष विश्लेषण पर जोर दिया गया है।

वर्तमान दशक (2005-2014) के लिए मॉडल सिमुलेशन से पता चलता है कि मानवजनित एरोसोल वायुमंडल के शीर्ष (टीओए) पर सीएएम 5 ईआरएफ को -1.21 वाट प्रति मीटर वर्ग आंकता है, जबकि सीएएम 6 ईआरएफ कि मात्रा का अनुमान -2.39 वाट प्रति मीटर वर्ग लगाकर और भी अधिक स्पष्ट शीतलन का संकेत देते हुए एक महत्वपूर्ण शुद्ध शीतलन प्रभाव डालते हैं। ये नकारात्मक विकिरण बल सतह पर काफी सौर डिमिंग के साथ होते हैं, सतह ईआरएफ सीएएम 5 में-10.6 वाट प्रति मीटर वर्ग और सीएएम 6 में-10.93 वाट प्रति मीटर वर्ग के रूप में कम तक पहुंचते हैं। वायुमंडलीय स्तंभ में, इसके विपरीत, क्रमशः + 9.38 वाट प्रति मीटर वर्ग और + 8.54 वाट प्रति मीटर वर्ग का पूर्ण अवशोषण प्रदर्शित करता है, जो मुख्यतः ब्लैक कार्बन द्वारा प्रेरित तीव्र शॉर्टवेव विकिरण अवशोषण को दर्शाता है।

ऊर्जा का यह ऊर्ध्वाधर पुनर्वितरण, विशेष रूप से इंडो-गंगा के मैदान पर केंद्रित, निचले क्षोभमंडलीय स्थिरता को बढ़ाता है और संवहनी गतिविधि को कम करता है। उच्च-रिज़ॉल्यूशन SMoG-India उत्सर्जन सूची को शामिल करने से इन परिणामों में काफी बदलाव आता है, सीएएम5 के वायुमंडल के शीर्ष ईआरएफ को नकारात्मक से लगभग तटस्थ (+ 0.07 वाट प्रति मीटर वर्ग) और सीएएम6 के ईआरएफ को कम नकारात्मक मूल्य (-1.39 वाट प्रति मीटर वर्ग) मापा गया, जबकि एक साथ दोनों मॉडलों में वायुमंडलीय अवशोषण में वृद्धि हुई। ये निष्कर्ष मॉडल किए गए विकिरण परिणामों को आकार देने और क्षेत्रीय जलवायु संकेतों की व्याख्या करने में उत्सर्जन सूची के रिज़ॉल्यूशन और स्थानिक सटीकता की महत्वपूर्ण भूमिका को रेखांकित करते हैं।

विशिष्ट एरोसोल प्रकारों के परिणाम को जानने के लिए, वर्ष 2014 के लिए एयरोसोल प्रजाति प्रमुख सीएएम6 सिमुलेशन किए गए। ब्लैक कार्बन +1.19 वाट प्रति मीटर वर्ग के पूर्ण ईआरएफ के साथ टीओए में प्रमुख ऊष्मन कारक के रूप में उभरता है, जबकि -3.9 वाट प्रति मीटर वर्ग की सतही डिमिंग और +5.09 वाट प्रति मीटर वर्ग के वायुमंडलीय अवशोषण उत्पन्न करता है। ये प्रभाव लगभग पूरी तरह से एरोसोल–विकिरण अंतःक्रियाओं (ERF_{aari}) से उत्पन्न होते हैं, जिनके साथ केवल मामूली बादल प्रतिक्रियाएँ होती हैं। इसके विपरीत, सल्फेट एरोसोल -2.32 वाट प्रति मीटर वर्ग के टीओए ईआरएफ और -5.08 वाट प्रति मीटर वर्ग के सतह ईआरएफ के साथ, +2.76 वाट प्रति मीटर वर्ग के सीमित वायुमंडलीय अवशोषण के साथ, एक मजबूत शीतलन प्रभाव को उत्पन्न करता है। सल्फेट-जनित शीतलन मुख्य रूप से एरोसोल–बादल अंतःक्रियाओं (ERF_{aci}) द्वारा संचालित होता है बादल बूँद संख्या सांद्रता को बढ़ाता है, बूँदों के आकार को कम करता है, और बादल की परावर्तकता व आयु को बढ़ाता है। ऑर्गेनिक कार्बन -3.10 वाट प्रति मीटर वर्ग के टीओए ईआरएफ और मामूली वायुमंडलीय और सतह प्रभावों के साथ मध्यवर्ती विकिरण व्यवहार प्रदर्शित करता है, जो इसके दोहरे प्रकीर्णन और कमजोर अवशोषित गुणों और बादल सूक्ष्म भौतिकी पर इसके मध्यम प्रभाव को दर्शाता है। ये प्रजाति-विशिष्ट निदान क्षेत्रीय विकिरण बजट और जल-मौसम संबंधी गतिशीलता को आकार देने में विभिन्न एरोसोल प्रकारों की अलग-अलग भूमिकाओं में महत्वपूर्ण अंतर्दृष्टि प्रदान करते हैं।

समय आधारित विश्लेषण का विस्तार करते हुए, सीएएम6 और सीएमआईपी6 ऐतिहासिक उत्सर्जन का उपयोग करने वाले सिमुलेशन से पता चलता है कि 1900 और 2014 के बीच, भारत में पूर्ण टीओए ईआरएफ -0.38 वाट प्रति मीटर वर्ग से -2.49 वाट प्रति मीटर वर्ग तक बढ़ गया है, जिसका मुख्य कारण सल्फेट उत्सर्जन में वृद्धि है। अकेले सल्फेट का ERF_{aci} घटक इस अवधि में -0.54 वाट प्रति मीटर वर्ग से बढ़ कर -3.76 वाट प्रति मीटर वर्ग तक हो गया, जिसका कारण औद्योगिक गतिविधि में

तेजी और उत्सर्जन में तेजी से वृद्धि है। ब्लैक कार्बन-प्रेरित ईआरएफ$_{एआरआई}$ धीरे-धीरे बढ़ा, जिसके परिणामस्वरूप टीओए पर मध्यम गर्म प्रभाव हुआ, फिर भी इसने वायुमंडलीय तापन को महत्वपूर्ण रूप से बदला, जो 1900 में +0.5 वाट प्रति मीटर वर्ग से बढ़कर 2014 तक +9.5 वाट प्रति मीटर वर्ग हो गया। इस वायुमंडलीय अवशोषण में वृद्धि का 75% से अधिक हिस्सा बीसी के कारण था। ये रुझान सतह के विकिरण, बादल के गुणों और वर्षा के प्रतिमान में ऐतिहासिक बदलावों को दर्शाते हैं, जिसमें उन्नत बादल जल मार्ग और सतही सौर विकिरण में कमी शामिल हैं, जिन्होंने मिलकर क्षेत्रीय जलवैज्ञानिक परिवर्तनों और मानसून प्रणाली की संभावित कमजोरी में योगदान करते हैं।

एसएसपी-आधारित सीएएम6 सिमुलेशन का उपयोग करके भविष्य के अनुमान विभिन्न उत्सर्जन मार्गों के तहत एरोसोल फोर्सिंग के लिए भिन्न-भिन्न प्रवृत्तियाँ दर्शाते हैं। एसएसपी 3-7.0 के अंतर्गत, जहां निरंतर जीवाश्म ईंधन के उपयोग और सीमित विनियमन के कारण उत्सर्जन अधिक रहता है, टीओए ईआरएफ दृढ़ता से नकारात्मक (-2.5 वाट प्रति मीटर वर्ग) बना रहता है, सतह डिमिंग तेज (-12 वाट प्रति मीटर वर्ग) रहता है और वायुमंडलीय ताप पूरे सदी में ऊंचे स्तरों (~ +10 वाट प्रति मीटर वर्ग) पर बना रहता है। इसके विपरीत, एसएसपी 1-2.6, जो एक आक्रामक शमन परिदृश्य है, टीओए और सतह ईआरएफ दोनों को निकट-तटस्थता की ओर ले जाता है और 2100 तक वायुमंडलीय अवशोषण को लगभग शून्य कर देता है। एसएसपी 5-8.5 मध्यवर्ती व्यवहार को दर्शाता है, जिसमें एरोसोल प्रभाव मध्य शताब्दी तक मजबूत बने रहते हैं और फिर तेज़ी से गिरते हैं। सभी परिदृश्यों में एक प्रमुख परिणाम निष्कर्ष यह है कि ब्लैक कार्बन वायुमंडलीय ताप में एक प्रमुख योगदानकर्ता बना रहता है और सल्फेट ईआरएफ$_{एसीआई}$ के माध्यम से शीतलन का प्राथमिक कारक होता है। सिमुलेशन यह भी सुझाते हैं कि, विशेष रूप से मजबूत शमन के तहत, तीव्र सल्फेट गिरावट के कारण अल्पकालिक वार्मिंग रिबाउंड हो सकता है, जो ग्रीनहाउस गैस-जनित तापन के एरोसोल मास्किंग को कम कर देता है।

इस शोध के निष्कर्ष सामूहिक रूप से दक्षिण एशिया पर एरोसोल-जनित विकिरण बल की प्रजाति-विशिष्ट, स्थानिक रूप से विषम और समय के साथ परिवर्तनशील प्रकृति को रेखांकित करते हैं। सल्फेट एरोसोल मुख्य रूप से बादल-प्रेरित मार्गों के माध्यम से प्राथमिक शीतलन कारक के रूप में पहचाने गए हैं, जबकि ब्लैक कार्बन प्रत्यक्ष अवशोषण और निचले वायुमंडल की स्थिरीकरण के माध्यम से शक्तिशाली ऊष्मन प्रभाव डालता है। ऑर्गेनिक कार्बन, यद्यपि कम प्रभावी, विकिरणीय प्रकीर्णन और मामूली बादल प्रभावों दोनों में योगदान देता है। ये परिणाम एरोसोल-जलवायु अंतःक्रियाओं को समझने में ऊर्ध्वाधर रूप से हल किए गए और वर्णक्रमीय रूप से अलग किए गए निदान के महत्व पर प्रकाश डालते हैं और प्रदर्शित करते हैं कि उत्सर्जन सूची और मॉडल भौतिकी का चयन कैसे मॉडल द्वारा परिणामों को किस

हद तक प्रभावित कर सकता है। बहु-मॉडल, बहु-उत्सर्जन सूची और ईआरएफ अपघटन विधियों के संयुक्त उपयोग से एरोसोल–जलवायु अंतःक्रियाओं की एक अधिक भौतिकीय रूप से सुसंगत और क्षेत्रीय रूप से प्रासंगिक छवि प्राप्त होती है, जो पूर्ववर्ती साहित्य की तुलना में अधिक व्यापक है।

वैज्ञानिक सीमाओं को आगे बढ़ाते हुए, यह शोध कई उत्कृष्ट चुनौतियों का समाधान करने के लिए भविष्य के प्रयासों का आह्वान करता है। इनमें क्षेत्रीय ऊर्जा असंतुलन और वर्षा दमन के लिए एरोसोल फोर्सिंग को जोड़ना, अवशोषक एरोसोल द्वारा उत्पन्न अर्ध-प्रत्यक्ष प्रभावों को अलग करना और त्वरित समायोजनों को पृथक करना, प्राकृतिक और मिश्रित एरोसोल व्यवस्थाओं को शामिल करना, और महासागर-वायुमंडल की गतिशीलता पर प्रतिक्रिया प्राप्त करने के लिए पूरी तरह से युग्मित पृथ्वी प्रणाली मॉडल को नियोजित करना शामिल है। इसके अलावा, विशेष रूप से ऊर्ध्वाधर क्षेत्र में अनुमानों में अनिश्चितताओं को सीमित करने के लिए जलवायु मॉडल मूल्यांकन में उपग्रह और इन सीटू अवलोकनों के बेहतर एकीकरण की आवश्यकता है। इन ज्ञान अंतरालों को दूर करना क्षेत्रीय जलवायु अनुमानों में सुधार, प्रभावी शमन रणनीतियों का मार्गदर्शन करने और दक्षिण एशिया जैसे क्षेत्र के लिए एक समग्र जलवायु–वायु गुणवत्ता नीति ढाँचे के विकास हेतु अत्यंत महत्वपूर्ण होगा, जहाँ पर्यावरणीय स्थिरता, सार्वजनिक स्वास्थ्य, और आर्थिक लचीलापन के लिए दांव असाधारण रूप से अधिक हैं।