



Projection Climatique du Rayonnement Ultraviolet au cours du 21ème siècle : impact de différents scénarios climatiques

Kévin Lamy

► To cite this version:

Kévin Lamy. Projection Climatique du Rayonnement Ultraviolet au cours du 21ème siècle : impact de différents scénarios climatiques. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Université de la Réunion, 2018. Français. NNT : 2018LARE0018 . tel-01979875

HAL Id: tel-01979875

<https://theses.hal.science/tel-01979875>

Submitted on 14 Jan 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE LA REUNION

Spécialité: Physique de l'atmosphère

École doctorale: « Sciences, Technologies et Santé (STS) ED542 »

réalisée

au Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (LACy)

présentée par

Kévin Lamy

pour obtenir le grade de :

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE LA RÉUNION

Sujet de la thèse :

**Projection Climatique du Rayonnement Ultraviolet au cours du
21ème siècle : Impact de différents scénarios climatiques**

Soutenance prévue le 26 Juin 2018 devant le jury composé de :

M.	Jean-Pierre Cammas	Président du Jury
Mme	Michaela Hegglin	Rapporteuse
M.	Marcelo de Paula Corrêa	Rapporteur
M.	Colette Brogniez	Examineur
M.	Béatrice Josse	Examineur
M.	Thierry Portafaix	Examineur
Mme	Sophie Godin-Beekmann	Co-Directrice de thèse
M.	Hassan Bencherif	Co-Directeur de thèse

Table des matières

Introduction générale	6
1 État de l'art	11
1.1 Introduction	13
1.2 Rayonnement ultraviolet	14
1.2.1 Source et variabilité de l'irradiance du Soleil	15
1.2.2 Influence de l'atmosphère	18
1.2.3 Observation et instrumentation	24
1.3 Modélisation du rayonnement UV	30
1.3.1 Équation du transfert radiatif	32
1.3.2 Résolution numérique de l'ETR	34
1.4 Modélisation de la composition chimique de l'atmosphère	40
1.4.1 Développement des modèles numériques.	40
1.4.2 Processus modélisés	42
1.5 Changement climatique	51
1.5.1 Projection climatique et scénario d'émission	51
1.5.2 Ozone : passé, présent et futur	53
1.5.3 Nuages	59
1.5.4 Aérosols	60
1.5.5 Changement climatique et rayonnement ultraviolet	60
1.5.6 Les exercices d'intercomparaison CCMval, ACCMIP, CCMI et AerChemMIP	61
1.5.7 Conclusion et perspectives sur l'évolution du Rayonnement UV	62
2 Modélisation du Rayonnement UV à la Réunion.	63
2.1 Résumé de l'article	65
2.2 Article	68
3 Projection des niveaux d'UV pour la fin du 21ème siècle	89
3.1 Résumé de l'article	91

<i>TABLE DES MATIÈRES</i>	3
3.2 Article	96
Conclusion	134
A Acronymes	143
Appendices	143
Bibliographie	147
Table des figures	163
Liste des tableaux	165
Résumé	167
Abstract	171

Introduction

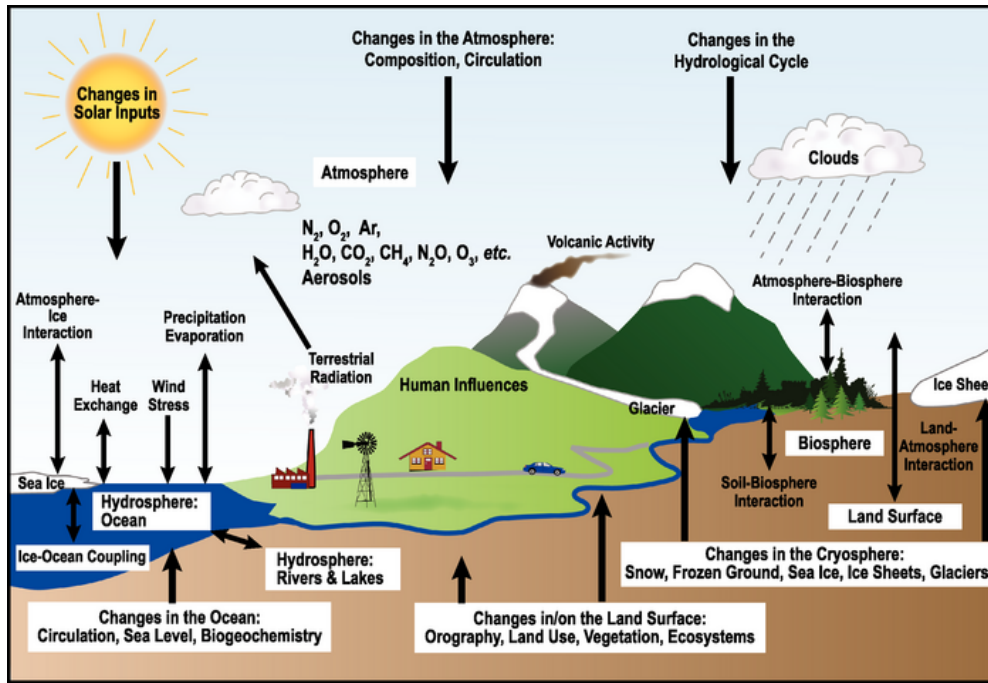


FIGURE 1 – Représentation schématique des composantes du système climatique et de leurs interactions. (Houghton, 1996)

Le système climatique est complexe, les interactions entre l'atmosphère, l'océan ou la biosphère sont nombreuses et font intervenir plusieurs processus radiatifs, chimiques ou dynamiques (Figure 1). Le rayonnement provenant du Soleil est central à ce système. Il pilote le bilan énergétique de la Terre, est à l'origine des réactions chimiques dans l'atmosphère et est essentiel à la vie sur Terre. Tout particulièrement, la partie ultraviolette du rayonnement joue un rôle important dans de nombreux processus biologiques et chimiques.

L'homme est directement concerné par les effets du rayonnement ultraviolet (UV). La sur-exposition à ces radiations est la cause principale de développement de cancers de la peau de type mélanome et non-mélanome. Le premier est lié à des brûlures répétées et le second est induit par des expositions chroniques (Matsumura and Ananthaswamy, 2004). Une exposition est toutefois nécessaire à la synthèse de la vitamine D (Holick et al., 1980). La relation entre la part du rayonnement responsable de l'érythème actinique, brûlure de la peau liée à l'exposition aux UVs, et celle responsable de la synthèse de la vitamine D a été étudiée en particulier par McKenzie et al. (2009). Ils ont montré qu'aux moyennes latitudes l'érythème n'apparaît qu'après une heure d'exposition tandis que la vitamine D est synthétisée en quelques minutes. Plusieurs études comportementales ont été réalisées afin de comprendre le lien entre activités humaines et intensité de l'UV. On peut citer les études de Mahé et al. (2011) et Mahé et al. (2013) sur les activités sportives et touristiques, le risque sur l'enfance est activement analysé par Wright et al. (2007).

La biosphère est aussi dépendante des niveaux de rayonnement UV à la surface. Le développement des plantes (Caldwell, 1971) et la compétitivité entre elles dépend du rayonnement

(Teramura et al., 1990). L'expérimentation en laboratoire et sur le terrain a permis de montrer la sensibilité des cultures à une dose trop faible ou trop forte d'UV-B. Kakani et al. (2003) détaillent les réponses de la photosynthèse, de la biomasse et de la résistance à ce type de variation. L'écosystème marin est lui aussi impacté : algues et bactéries sont sensibles aux variations d'UV (Vernet et al., 1993). La photosynthèse chez le phytoplancton est gérée par un équilibre délicat dépendant de la salinité et de la température de l'eau mais aussi des niveaux d'UV-A et UV-B (Hader et al., 2007).

L'interaction du rayonnement avec l'atmosphère est l'un des moteurs des processus physico-chimiques et est central au système climatique. L'incidence du rayonnement à certaines fréquences sur les molécules présentes dans l'atmosphère permet d'initier les réactions photochimiques. En phase gazeuse, il est presque impossible que deux molécules stables entrent en réaction. La présence d'espèces radicalaires est nécessaire et ces dernières sont issues principalement de réactions photochimiques. Par exemple, la photolyse de l'ozone et du dioxygène conduit à la formation d'atomes d'oxygène (O^1D , O^3P) intervenant dans de nombreuses réactions. La photochimie contrôle aussi la répartition entre oxyde d'azote (NO) et dioxyde d'azote (NO₂) (Madronich and Flocke, 1999) et pilote de cette façon la capacité oxydante de la troposphère. La présence du radical OH est importante à la composition de l'atmosphère car OH, bien que peu concentré (environ 10^7 molécules.cm⁻³ dans la couche limite continentale et environ 10^6 molécules.cm⁻³ dans la troposphère libre, est très réactif pour de nombreuses espèces chimiques (CH₄, NO_x, CO par exemple).

L'ozone (O₃) est l'un des constituants de l'atmosphère absorbant le plus dans les longueurs d'ondes UV. Sa variabilité dans la stratosphère pilote en grande partie les niveaux d'UV au sol. Cette molécule est considérée comme bénéfique en stratosphère car elle absorbe une grande partie du rayonnement, diminuant grandement les niveaux à la surface. Néanmoins, dans la troposphère il est considéré comme un polluant et participe à l'effet de serre (Finlayson-Pitts and Pitts, 1997). L'exposition à l'ozone est néfaste pour l'homme et entraîne des effets irritants pour les yeux, muqueuses et voies respiratoires. Jerrett et al. (2009) ont montré qu'une corrélation existait entre maladies respiratoires et concentration de l'ozone. Bienheureusement, si l'on s'intéresse à sa répartition en altitude, on constate que la majeure partie de l'ozone se trouve dans la stratosphère (Figure 2). Produit dans les tropiques, l'O₃ stratosphérique est transporté vers les pôles grâce à la circulation de Brewer-Dobson (Brewer, 1949). L'évolution des niveaux d'ozone est l'objet de nombreuses recherches. En effet, depuis les années 70 une chute importante de la concentration d'ozone en Antarctique a été observée. Cette destruction de l'ozone est due à l'émission par l'homme des composés halogénés (composés chlofluorocarbures (CFC), halons). Ces composés étaient utilisés massivement en tant que solvants ou réfrigérants. Bien qu'ils soient inertes et peu dangereux dans la troposphère et la basse stratosphère, suite à de nombreuses transformations en haute stratosphère ils deviennent une source importante de chlore et de brome qui participent alors activement à la destruction de l'ozone (Molina and Rowland, 1974; Farman et al., 1985; Solomon, 1999).

La signature du protocole de Montréal en 1987, un traité international régulant la production de substances destructrices d'ozone (ODS), a permis de réduire la destruction de l'ozone. Néanmoins, les ODS ayant une durée de vie assez longue dans la stratosphère, un retour des niveaux d'ozone à ceux de 1960 n'est prévu que pour le milieu du 21ème siècle (WMO, 2014).

Toutefois, le contexte climatique laisse incertaine l'évolution de l'ozone, et donc du rayonnement UV, pour le siècle à venir. L'émission anthropogénique de gaz à effet de serre (GHG) a

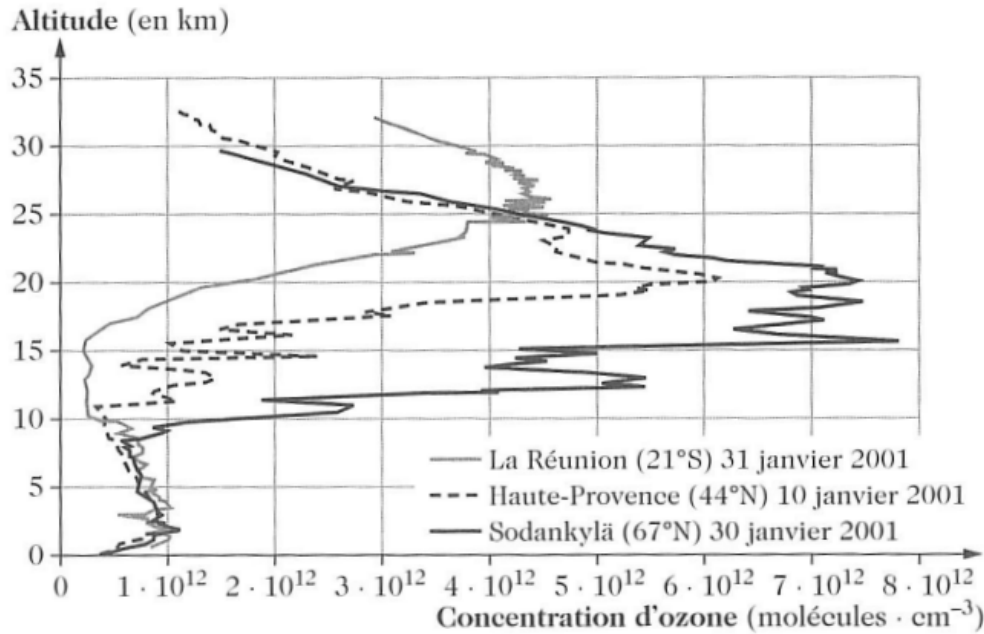


FIGURE 2 – Profils verticaux d’ozone pour trois régions situées aux tropiques, aux moyennes latitudes et au pôle nord. Ces mesures sont issues de radiosondages et présentées par Delmas et al. (2005).

induit un déséquilibre du système climatique et de profondes modifications de la variabilité dynamique et chimique de l’atmosphère sont observées (IPCC, 2013). Plusieurs auteurs ont montré qu’une augmentation de la concentration des GHGs dans l’atmosphère provoque une accélération de la circulation de Brewer-Dobson (Rind et al. (1990), Lin and Fu (2013)). L’ozone est alors transporté plus rapidement vers les pôles, on constate ainsi une augmentation de la colonne totale d’ozone aux moyennes latitudes et une diminution aux tropiques. Le rayonnement UV à la surface étant fortement dépendant de la colonne totale d’ozone, certains modèles ont montré qu’une diminution de l’UV aux moyennes latitudes et une augmentation aux tropiques est probable (Hegglin and Shepherd, 2009; Eyring et al., 2010; Butler et al., 2016). La confirmation de ce résultat numérique par les observations n’est pas encore certaine (Solomon et al., 2012; WMO, 2014). La circulation de Brewer-Dobson n’est pas mesurée directement, elle est analysée à travers des estimations de l’âge de l’air, de la distribution latitudinale de la température ou des constituants chimiques (WMO, 2014). Les tendances obtenues sont aussi très faibles et sont difficiles à distinguer significativement de la variabilité naturelle (Forster et al., 2011).

Lorsque le rayonnement UV pénètre dans l’atmosphère sa variabilité dépend aussi de paramètres géophysiques autres que l’ozone. Les nuages réduisent généralement l’intensité du rayonnement (McKenzie et al., 1991a) mais peuvent aussi sous certaines conditions augmenter l’intensité notamment en cas de couverture nuageuse fractionnée (Sabburg and Wong, 2000). Les aérosols, petites particules d’origines naturelles (embruns, volcans) ou anthropiques (feux de biomasses, combustion d’énergie fossile), diffusent et absorbent parfois le rayonnement UV et peuvent réduire le rayonnement UV de surface de près de 30% (Lamy et al., 2018) ou réduire le forçage radiatif (Krzyścin and Puchalski, 1998). Finalement la réflectivité d’une surface, ou albédo, participe aussi à l’intensité du rayonnement.

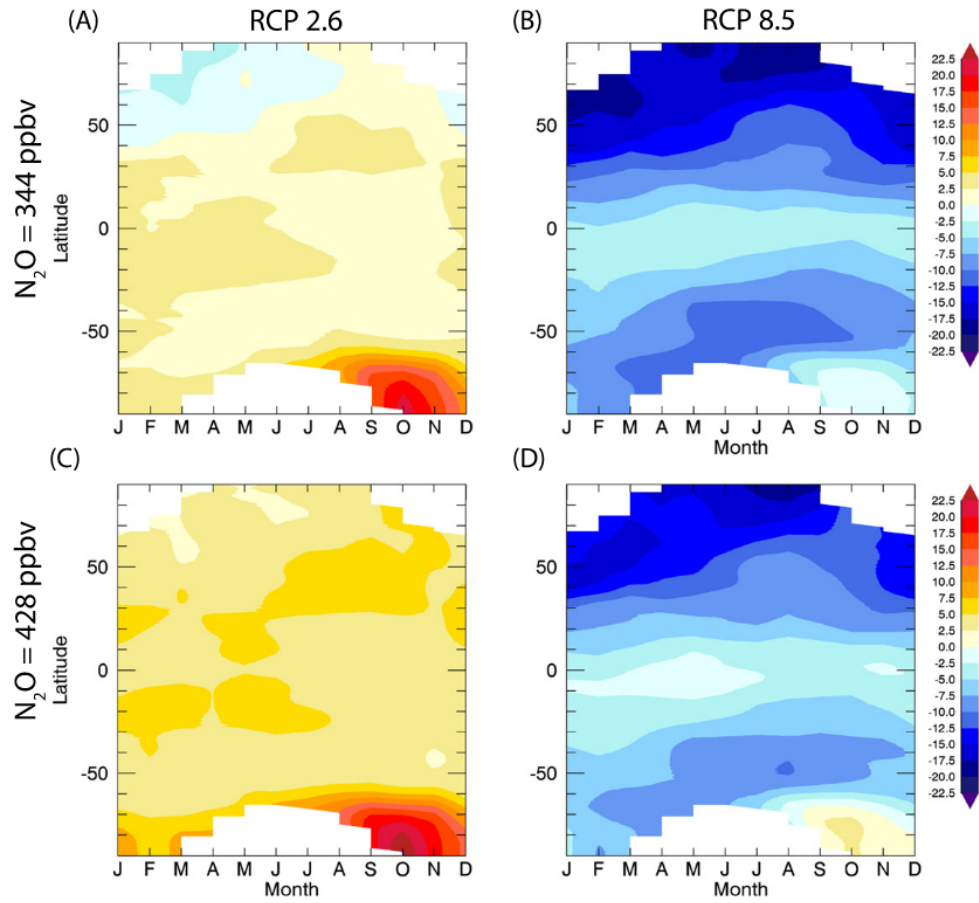


FIGURE 3 – Différence relative [%] de l'indice UV moyen de 2075-2095 et celui de 1955-1974, pour deux scénarios climatiques différents (RCP2.6 et RCP8.5) associés chacun à deux niveaux de N_2O (344 et 428 ppbv). (Butler et al., 2016)

Malgré le succès du protocole de Montréal, des changements de concentration de l'ozone très différents sont possibles. Ces changements sont pilotés par les concentrations de dioxyde de carbone (CO_2), protoxyde d'azote (N_2O) et méthane (CH_4), et influenceraient le rayonnement à la surface (Ravishankara et al., 2009; Stolarski et al., 2012; Portmann et al., 2012; Oberländer et al., 2013). Pour un même scénario de changement climatique, il semblerait que les niveaux de N_2O conditionnent les valeurs d'UV, notamment aux tropiques (Figure 3). Le rôle de la couverture nuageuse dans les fluctuations associées au rayonnement à la surface a été étudié par (Bais et al., 2011). Corrêa et al. (2013) ont mis en avant celui des aérosols sur la variation de l'irradiance érythémateuse en Europe jusqu'en 2100, tandis Hegglin and Shepherd (2009) ont analysé l'ampleur de ces changements due aux changements de circulation stratosphérique affectant la distribution de l'ozone.

Ainsi l'évolution future de l'ozone, des nuages, des aérosols, des GHGs et de la dynamique atmosphérique entraînent des questionnements aujourd'hui sur l'évolution du rayonnement UV et notamment aux tropiques. C'est dans ce contexte que ce travail de thèse a été mené autour de la variabilité du rayonnement UV aux tropiques.

Dans le chapitre 1, nous détaillerons l'état des connaissances actuelles sur l'interaction entre rayonnement solaire et atmosphère. On s'intéressera aux moyens instrumentaux permettant d'observer le rayonnement UV et ses différents facteurs de variabilités. Nous rappellerons ensuite la théorie du transfert radiatif et les méthodes de modélisation numérique du transfert radiatif dans l'atmosphère. Par la suite un retour sur la modélisation numérique du climat et de la chimie sera réalisé. Ce chapitre terminera sur le contexte climatique, les changements attendus et les scénarios possibles.

Le chapitre 2 porte sur la modélisation du rayonnement UV à la Réunion à partir de données au sol et satellitaires. La question du filtrage des données instrumentales d'UV afin de discerner la présence et l'absence de nuages est discutée au cours de ce chapitre. Une étude de sensibilité a été réalisée sur les différents paramètres d'entrée au modèle de transfert radiatif ; spectre d'absorption de l'ozone, spectre d'irradiance du soleil hors atmosphère, aérosols et ozone. Une comparaison est finalement faite entre modélisation et observations filtrées. L'ensemble de ces résultats est présenté sous forme d'article publié dans *Atmospheric Chemistry and Physics* (ACP).

Le chapitre 3 porte sur l'utilisation de données de modèles CCMI en entrée à la modélisation du rayonnement UV pour plusieurs scénarios climatiques. L'évolution future du rayonnement UV y est ainsi analysée à travers les derniers exercices de projections climatiques. L'ensemble des résultats est présenté sous forme d'article soumis à ACP.

Enfin, la dernière partie sera consacrée aux conclusions et aux perspectives liées à ce travail.

CHAPITRE 1

État de l'art

Sommaire

1.1	Introduction	13
1.2	Rayonnement ultraviolet	14
1.2.1	Source et variabilité de l'irradiance du Soleil	15
1.2.2	Influence de l'atmosphère	18
1.2.3	Observation et instrumentation	24
1.3	Modélisation du rayonnement UV	30
1.3.1	Équation du transfert radiatif	32
1.3.2	Résolution numérique de l'ETR	34
1.4	Modélisation de la composition chimique de l'atmosphère	40
1.4.1	Développement des modèles numériques	40
1.4.2	Processus modélisés	42
1.5	Changement climatique	51
1.5.1	Projection climatique et scénario d'émission	51
1.5.2	Ozone : passé, présent et futur	53
1.5.3	Nuages	59
1.5.4	Aérosols	60
1.5.5	Changement climatique et rayonnement ultraviolet	60
1.5.6	Les exercices d'intercomparaison CCMval, ACCMIP, CCMI et Aer-ChemMIP	61
1.5.7	Conclusion et perspectives sur l'évolution du Rayonnement UV	62

Au cours de cette étude, nous nous sommes intéressés au rayonnement ultraviolet (UV) reçu à la surface de la Terre. Afin d'étudier la variabilité du rayonnement à la surface il est nécessaire de comprendre l'émission du rayonnement ainsi que les différents facteurs interagissant avec celui-ci.

La première section détaille le rayonnement UV depuis sa source, le Soleil, jusqu'à la surface de la Terre en passant par son arrivée au sommet de l'atmosphère ainsi que sa traversée dans l'atmosphère. Nous présenterons donc en premier lieu la variabilité du soleil ainsi que les facteurs orbitaux influençant la réception du rayonnement UV sur Terre. Ensuite, nous nous intéresserons à la description de l'atmosphère et de ses molécules interagissant avec l'UV. L'impact des nuages, des aérosols et de l'albédo sur le rayonnement sera ensuite présenté. Les moyens instrumentaux permettant la mesure des UV ou des facteurs nécessaires à la compréhension de sa variabilité seront aussi détaillés.

Afin d'estimer l'évolution du rayonnement UV, au cours du 21ème siècle, un effort de modélisation a été réalisé. La section 1.2 présente la modélisation du rayonnement UV depuis la théorie du transfert radiatif jusqu'aux méthodes de résolution numérique. La section 1.3 porte sur la modélisation du climat et plus particulièrement de la chimie de l'atmosphère. Nous verrons une description des différents modèles numériques, des équations qui les composent et des méthodes de résolution numérique. Les exercices d'intercomparaison et de projection climatique y seront aussi exposés. La dernière section de ce chapitre 1.4 portera sur le contexte dans lequel notre étude est faite, nous y introduirons le système climatique et les changements attendus au cours du 21ème siècle ayant un impact sur le rayonnement UV.

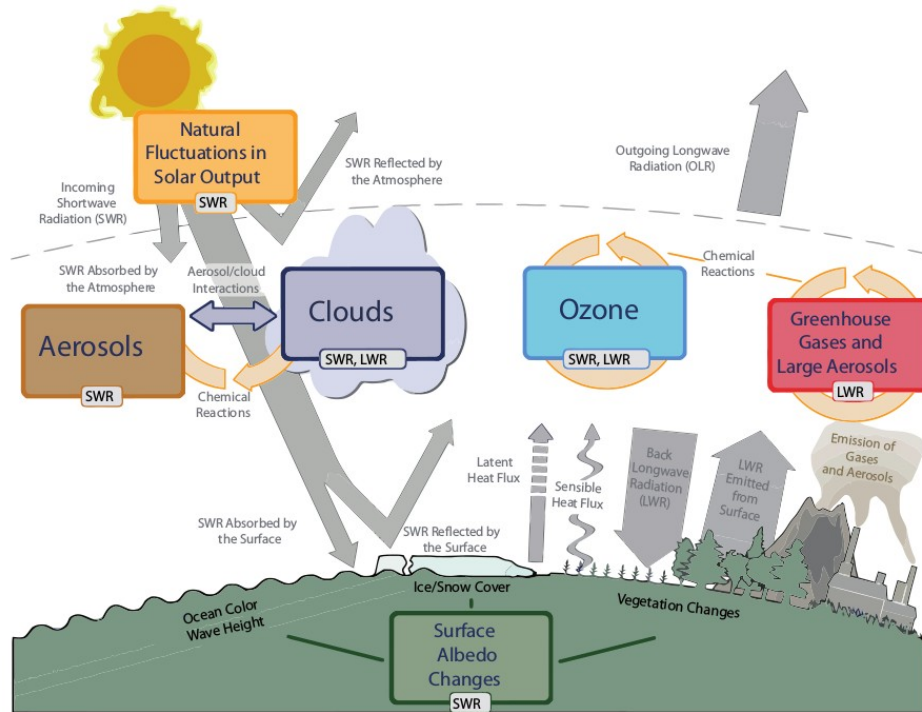
1.1 Introduction

Afin d'introduire ce chapitre il est nécessaire de présenter brièvement le système climatique terrestre.

La figure 1.1, issue du dernier rapport de l'IPCC, schématise l'interaction entre les différentes composantes du système climatique. Le système climatique terrestre est alimenté par l'énergie provenant du rayonnement solaire. Une partie de cette énergie est absorbée par la surface ($\approx 50\%$ dans l'ultraviolet), la fraction UV renvoyée dans l'espace est d'environ 30% et les 20% restants sont absorbés par l'atmosphère. Une partie de l'émission infrarouge de la Terre est absorbée par certains constituants de l'atmosphère comme la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone (CO_2), le méthane (CH_4), d'autres gaz à effet de serre (GHGs) ainsi que les nuages. Ces derniers réfléchissent la radiation vers la surface, cette composante renvoyée vers le sol contribue alors au réchauffement, c'est ce que l'on appelle l'effet de serre.

L'équilibre radiatif de la Terre dépend donc du rayonnement émis par le Soleil dans l'ultraviolet, le visible et le proche infrarouge (Shortwave Radiation, SWR), de la radiation solaire incidente totale (TSI) et de l'émission infrarouge de la Terre, émission grande longueur d'onde (Longwave Radiation, LWR). La TSI est quasi-constante, $\approx 1361 \text{ W.m}^{-2}$ (Kopp and Lean, 2011). Une faible variation peut toutefois être observée ($\approx 0.1\%$). Celle-ci a pour origine le cycle du Soleil d'environ 11 ans (Helama et al., 2010). La LWR dépend quant à elle de la température de la Terre ou de son émissivité. Cette dernière variable est fonction de la couverture nuageuse, des propriétés nuageuses, des gaz à effet de serre et des aérosols. L'observation satellitaire montre un léger déséquilibre du bilan énergétique terrestre (Trenberth and Fasullo, 2009; Murphy et al.,

FIGURE 1.1 – Equilibre radiatif du système climatique. (IPCC, 2013)



2009). Ce déséquilibre est cohérent avec les changements de composition atmosphérique. Ce déséquilibre est la source du changement climatique.

Ce système est très complexe, de nombreux paramètres interviennent et interagissent entre eux. Certains aérosols absorbent et diffusent le rayonnement UV (poussières minérales ou suie, Dickerson et al. (1997)), tandis que d'autres diffusent seulement le rayonnement UV (aérosols de mer ou aérosols de sulfates, Torres et al. (1998)) et augmentent ainsi la reflectivité de la Terre. Ils servent aussi à la nucléation et ont donc un rôle important sur les propriétés des nuages (Voir section 1.4.4). Ces derniers ont un rôle clé sur le rayonnement UV reçu mais aussi sur la partie IR émise par la Terre (Voir Section 1.4.3). Les émissions anthropogéniques participent à l'augmentation de la concentration des GHGs ainsi que les émissions naturelles, d'origine volcanique par exemple. Le changement d'utilisation des sols altère aussi ce système en modifiant l'albédo de surface, le contenu en carbone de la végétation ou encore le taux d'évapotranspiration (Houghton, 2003; Foley et al., 2005).

1.2 Rayonnement ultraviolet

On s'intéresse au cours de ce travail au rayonnement UV situé entre 280 et 400 nanomètres, soit une fréquence de l'ordre de 10^{15} à 10^{16} Hertz (Hz) et une énergie de l'ordre de 10 à 100 électrons-volt (eV). La figure 1.2 est une représentation du spectre électromagnétique selon la

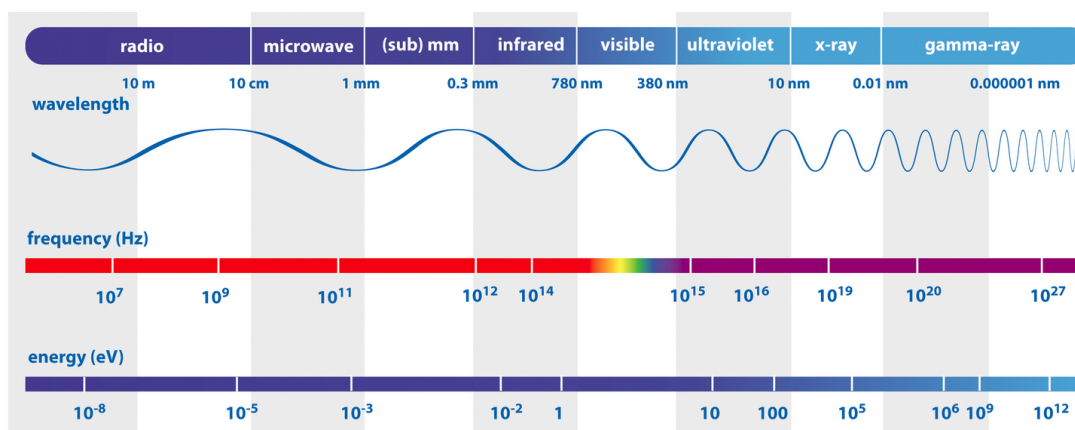


FIGURE 1.2 – Spectre Electromagnétique [ESA / AOES Medialab]

longueur d'onde, la fréquence (en Hz) ou l'énergie (en eV).

On peut différencier plusieurs bandes dans le spectre UV : les UV-A (400-315nm), UV-B (315-280nm), UV-C (280-200nm) (Norme ISO 21348 :2007). L'énergie étant inversement proportionnelle à la longueur d'onde, les UV-A sont les moins nocifs. Les UV-B sont eux plus énergétiques et peuvent causer érythèmes et dommages cellulaires, une exposition prolongée augmente aussi le risque de cancer de la peau. Les UV-C, d'énergie plus importante, sont complètement absorbés par l'atmosphère et ne sont donc pas un danger pour la biosphère. Entre 10 et 200 nm, on parle de Vacuum UV, en effet ces longueurs d'ondes sont absorbées par l'oxygène et ne sont donc observables que dans le vide, en dehors de l'atmosphère terrestre.

1.2.1 Source et variabilité de l'irradiance du Soleil

Le Soleil est la source principale de rayonnement UV. Le Soleil peut être considéré comme un corps noir d'une température effective de 5777 Kelvin (K) et, selon la loi de Planck, le Soleil émet sur une très large gamme de longueurs d'ondes. Le spectre d'irradiance du Soleil est déterminé à partir de nombreuses mesures effectuées à hautes altitudes ou dans l'espace. L'atmosphère étant composée d'espèces chimiques absorbant l'irradiance à différentes longueurs d'ondes, il est nécessaire de s'en affranchir. Des mesures et analyses de plus hautes résolutions du spectre solaire hors atmosphère ont été effectuées par Chance and Kurucz (2010) et Dobber et al. (2008). Un spectre standard d'irradiance du Soleil est défini par le World Radiation Center (Haberreiter et al., 2017).

Sur la figure 1.3 est représenté le spectre d'émission d'un corps noir à une température de 5900 K, le spectre d'émission du Soleil en dehors de l'atmosphère et au niveau de la mer. On peut constater que le spectre d'émission du Soleil en dehors de l'atmosphère est bien proche de celui d'un corps noir défini par la loi de Planck. Son pic d'émission se situe dans le visible, entre 400 et 600 nm environ, mais il émet aussi dans l'infrarouge et l'ultraviolet. On peut noter qu'au niveau de la mer, l'irradiance a été fortement absorbée à certaines longueurs d'ondes spécifiques correspondant aux différentes bandes d'absorption des constituants chimiques de l'atmosphère. Le constituant qui nous intéressera le plus au cours de cette étude est l'ozone (O_3).

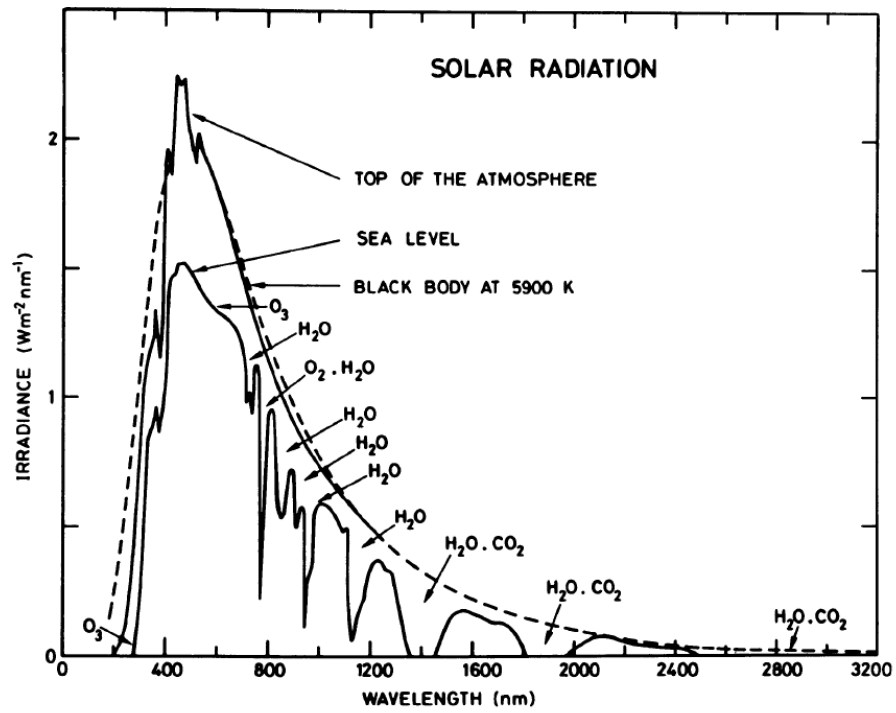


FIGURE 1.3 – Spectre d'Émission du Soleil et spectre mesuré à la surface (Brasseur and Solomon, 2006)

Les niveaux de rayonnement UV à la surface de la Terre dépendent de l'émission d'ultraviolet depuis le soleil mais aussi du chemin emprunté par le rayonnement lors de la traversée de l'atmosphère. Ils sont donc influencés par des paramètres géométriques comme l'angle solaire zénithal ou la distance Terre-Soleil, mais aussi par des paramètres physico-chimiques comme le cycle solaire et la constitution de l'atmosphère, i.e. la constitution du milieu où se propage le rayonnement.

Nous décrirons dans un premier temps les paramètres géométriques puis les paramètres physico-chimiques.

1.2.1.1 Géométrie/Paramètres Orbitaux/Sources

Angle Solaire Zénithal

La position du Soleil dans le ciel est définie grâce à l'angle solaire zénithal (θ) et l'angle solaire azimutale (ϕ). L'angle solaire zénithal à la latitude ϕ et la longitude ψ pour une déclinaison solaire δ est obtenu via :

$$\cos(\theta) = \sin(\delta)\sin(\phi) + \cos(\delta)\cos(\phi)\cos(\text{HA}) \quad (1.1)$$

HA est l'angle horaire local, défini pour un astre comme la différence entre le temps sidéral, i.e. l'angle entre le méridien et le point vernal de l'équinoxe, et son ascension droite. Il dépend ainsi de la longitude, du fuseau horaire et de l'équation du temps. Cette dernière prend en compte l'influence de l'ellipticité et de l'obliquité de la Terre. Par définition, lorsqu'un astre est le plus haut dans le ciel, l'angle horaire est nul. Prenons le cas du Soleil au midi solaire, par définition $\text{HA} = 0$, alors d'après l'équation précédente l'angle solaire zénithal au midi solaire (θ_{noon}) devient :

$$\theta_{noon} = \phi - \delta \quad (1.2)$$

La déclinaison solaire est l'angle entre le plan équatorial de la Terre et la direction du Soleil (Figure 1.4). Elle peut être approximée par l'équation suivante (Cooper, 1969) :

$$\delta = 23.45 \sin\left(2\pi \frac{(J + 284)}{365}\right) \quad (1.3)$$

Où J est le jour Julien.

On peut ainsi obtenir simplement l'angle solaire zénithal au midi solaire pour toute latitude ϕ et jour Julien J. Cette définition nous sera utile dans le chapitre 3.

Géométrie Terre-Soleil

Il existe aussi une variation annuelle de la distance entre la Terre et le Soleil. Elle varie annuellement en moyenne de 3.5% : une distance minimale est observée au mois de Janvier et une distance maximale au mois de Juillet (Frederick et al., 1989). Cette variation, même faible, peut être importante lorsque l'on compare la différence entre deux hémisphères. En effet

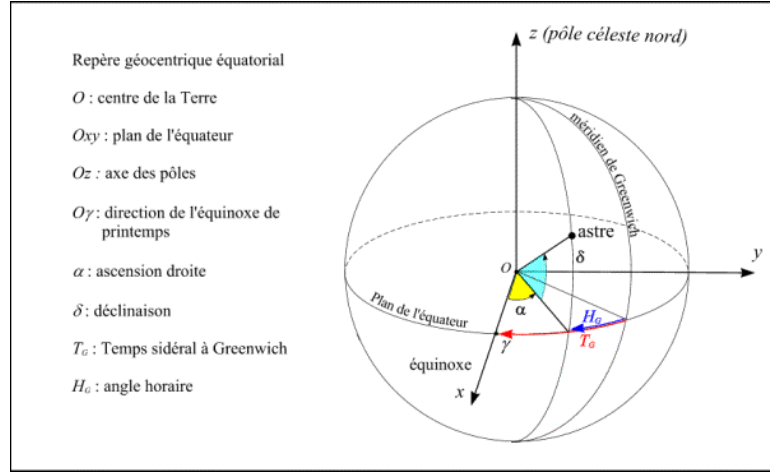


FIGURE 1.4 – Sphère céleste équatoriale. [Institut de Mécanique Céleste et de Calcul des Ephémérides]

le rayonnement hors atmosphère est plus important de $\approx 7\%$ pour l'été austral que l'été boréal. On peut noter aussi des variations ayant une échelle temporelle très longue. Elles sont dues aux variations du mouvement de la Terre sur son orbite; excentricité, obliquité et précession de périodes respectives de 41 000, 93 000 à 400 000 ans, et 19 000 à 23 000 ans. Ces périodes sont appelées cycles de Milankovich (Milankovitch, 1930; Friis-Christensen, 2000). Même si ces paramètres sont importants pour des études à l'échelle des temps géologiques, pour la présente étude on peut négliger leur influence.

Cycle Solaire

Le Soleil présente aussi un cycle d'environ 11 ans (Covington, 1969). On peut l'observer sur la TSI, à travers la présence de taches solaires (Friis-Christensen and Lassen, 1991) ou sur la quantité d'éruption solaire (Webb and Howard, 1994). Ce cycle a un impact direct sur la variabilité du rayonnement UV sur Terre (Shindell et al., 1999). Les taches solaires sont des régions à la surface du Soleil où la température varie entre environ 4200 K au centre et environ 5700 K en périphérie. Ces régions ont une température plus faible que le reste de la photosphère, i.e. couche de gaz en surface du Soleil, qui est d'environ ~ 6050 K (Gray et al., 2010). Bien que ces taches apparaissent comme sombres et de plus basse température elles sont corrélées à la présence de faculae, régions du Soleil plus petites que les taches sombres mais très brillantes et d'une température d'environ 6200 K. C'est lors de la présence maximale de ce type de région, et donc lors de la présence maximale de taches sombres, que le rayonnement UV émis par le Soleil est le plus important (Lockwood and Fröhlich, 2007).

1.2.2 Influence de l'atmosphère

Le rayonnement traverse l'atmosphère avant d'atteindre la surface et peut aussi interagir avec les constituants qui la composent. Cette interaction dépend généralement de paramètres physiques tels que la température ou l'humidité relative. Dans cette partie, nous décrirons les

différents mécanismes influençant le rayonnement UV lors de sa propagation dans l'atmosphère.

1.2.2.1 Variabilité des UV dues aux variations de conditions atmosphériques

Absorption des gaz

L'atmosphère terrestre est composée principalement de diazote, de dioxygène, de gaz rares, de vapeur d'eau et de dioxyde de carbone. Il existe aussi de nombreuses autres espèces en très petites quantités. Plusieurs constituants ont une concentration quasi-constante dans l'atmosphère, c'est le cas de l'azote, de l'oxygène ou des gaz rares. On définit cet ensemble de gaz comme l'air sec, sa masse molaire est estimée à $28.966 \text{ g.mol}^{-1}$ et il peut être considéré comme un gaz parfait. Les autres constituants ont une concentration très variable, c'est le cas de la vapeur d'eau par exemple. La composition de l'atmosphère est présentée en table 1.1.

Molécule	Fraction
Azote, N_2	$78.084 \pm 0.004 \%$
Oxygène, O_2	$20.946 \pm 0.06 \%$
Vapeur d'eau, H_2O	0-2%
Dioxyde de carbone, CO_2	353 ppm
Argon, Ar	$9340 \pm 10 \text{ ppb}$
Néon, Ne	$18.18 \pm 0.04 \text{ ppb}$
Helium, He	$5.239 \pm 0.002 \text{ ppb}$
Krypton, Kr	$1.14 \pm 0.01 \text{ ppb}$
Xénon, Xe	$0.086 \pm 0.001 \text{ ppb}$
Hydrogène, H_2	515 ppb
Protoxyde d'azote, N_2O	310 ppb
Monoxyde de Carbone, CO	50-100 ppb
Methane, CH_4	1.72 ppb
Ozone, O_3	10 ppb - 10 ppm
Chlorofluorocarbure, CFCs	0.85 ppb

TABLE 1.1 – Composition de l'atmosphère selon (Brasseur and Solomon, 2006) et (Madronich, 1993)

Certaines de ces espèces chimiques absorbent le rayonnement solaire. Cette absorption dépend de la longueur d'onde. En dessous de 100 nm, le dioxygène et le diazote absorbent complètement le rayonnement UV. On peut caractériser l'absorption de ces espèces par la capacité du rayonnement incident (I) à traverser l'atmosphère avant d'être réduit d'un facteur exponentiel (i.e. $I' = Ie^{-1} = 0.37I$). On parle alors de profondeur de pénétration, cette quantité dépend de la distribution verticale des constituants atmosphériques. La profondeur de pénétration du rayonnement solaire est représentée sur la figure 1.5 pour certaines espèces chimiques. On peut noter que dans la région d'étude, de 200nm à 400nm, l'ozone est le principal constituant absorbant le rayonnement UV.

Plusieurs régions d'intérêt peuvent être définies :

- 400 - 850 nm : Bandes de Chappuis. Absorption par l' O_3 en troposphère.
- Entre 310 et 400 nm : Bandes d'absorptions de Huggins. Absorption par l' O_3 dans la stratosphère et troposphère. Formation d' $\text{O}(^3\text{P})$

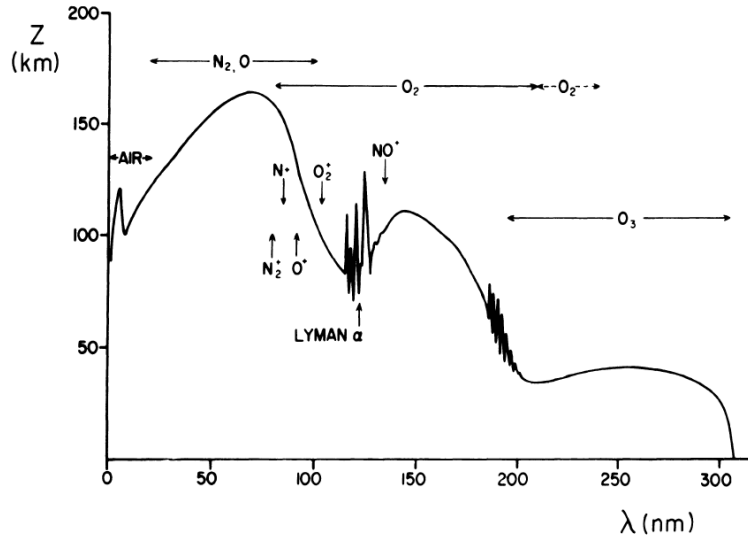


FIGURE 1.5 – Absorption du rayonnement solaire. Z : Profondeur de pénétration, λ : longueur d'onde. Les fenêtres d'absorption des différentes molécules sont définies par les flèches horizontales. (Brasseur and Solomon, 2006)

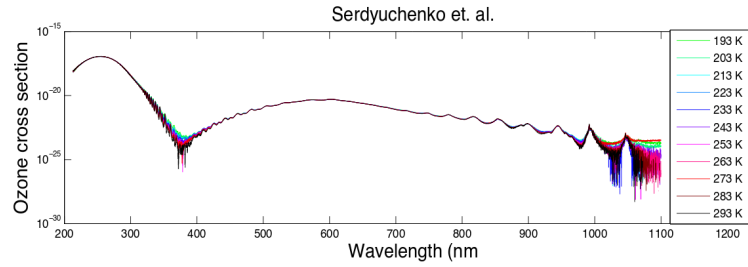


FIGURE 1.6 – Section efficace d'absorption de l'ozone [$\text{cm}^2/\text{molecule}$] à différentes températures. (Serdyuchenko et al., 2014)

- Entre 240 et 310 nm : Bandes d'absorptions de Hartley. Absorption par l' O_3 en stratosphère. Formation d' $\text{O}(^1\text{D})$
- 200-242 nm, 175-200nm et 100-175nm : Respectivement : Continuum d' O_2 de Herzberg, bandes de Schumann Runge et continuum de Schumann Runge.
- 121.6 nm : Ligne α de Lyman.

La section efficace d'absorption de l'ozone a été mesurée en laboratoire à différentes températures par Bass and Paur (1985); Malicet et al. (1995); Orphal et al. (2016). Les plus récentes mesures sont celle de (Gorshchev et al., 2014) et (Serdyuchenko et al., 2014), leurs résultats sont représentés en figure 1.6.

Diffusion

On a vu que pour un milieu gazeux, à l'échelle des molécules, l'interaction rayonnement-matière peut se traduire par une absorption, i.e. une transformation de l'énergie radiative incidente. Néanmoins, lorsqu'aucun changement d'énergie interne à la matière n'est observé, il y a

alors diffusion du rayonnement incident. La radiation incidente sur la molécule est simplement redirigée dans une autre direction, on parle alors de diffusion élastique.

Pour un milieu dense, comme les aérosols en suspension, les gouttes d’eaux ou les cristaux de glaces par exemple, on doit décrire cet ensemble de particules par des paramètres expliquant leur interaction avec le rayonnement : forme (sphérique ou non), distribution en taille ou indice de réfraction par exemple. La diffusion peut aussi avoir lieu lors de l’interaction entre ces particules et le rayonnement. L’intensité de la diffusion est dépendante du rapport entre la longueur d’onde du rayonnement incident et la taille de la particule.

Lorsque ce rapport est petit, à l’échelle des molécules ($\sim 10^{-8}$ cm), le rayonnement est diffusé de manière quasi homogène, c’est la diffusion de Rayleigh (Rayleigh, 1871). Pour des grandes particules sphériques, de l’ordre du μm , la diffusion est plutôt orientée vers l’avant, on considère alors le régime de Lorenz-Mie (Mie, 1908; Lorenz, 1890). Ces notions sont plus détaillées dans la section 1.2 de ce chapitre.

1.2.2.2 Facteurs de variabilité des UVs

Nuages

Les nuages influencent considérablement le rayonnement UV en diffusant le rayonnement solaire incident. De manière expérimentale, McKenzie et al. (1991b) établirent que les nuages pouvaient réduire le rayonnement UV de plus de 50% mais aussi l’augmenter pour des cas de couverture nuageuse fractionnée, les diffusions multiples par les nuages s’ajoutant au rayonnement direct. Par la suite, Bais et al. (1993) ont obtenu une atténuation plus importante du rayonnement UV, de l’ordre de 80% à un SZA de 50° pour une couverture nuageuse élevée (plus de 80% du ciel), indépendamment de la longueur d’onde.

À partir de mesures d’UV-B prises au sol par un spectromètre Brewer de février à juillet 1995 à Black Mountain (35.66° N), Schafer et al. (1996) ont observé une transmission des UV-B de 30%, 61%, 74% et 79% pour respectivement un ciel complètement couvert, couvert à 80-90%, 60-70% et 40-50%. Une augmentation de 11% pour quelques cas de couverture nuageuse fractionnée a été observée.

Ce phénomène d’augmentation a été étudié plus tard par Sabburg and Wong (2000). Pour une année de mesure, de septembre 1997 à août 1998 en Australie (27.6° S, 151.9° E), une augmentation de 8% en moyenne a été observée pour les UV-B, 86% des cas d’augmentation avaient lieu en présence de cirrus ou de brume. Pour trois stations situées en Argentine, Cede et al. (2002) ont aussi observé une augmentation de l’UVI de 12 à 13% par une couverture nuageuse fractionnée. Jégou et al. (2011) ont reporté une augmentation de 10% de l’UVI pour un ciel couvert à 65% environ.

Ayant une variabilité spatiale et temporelle très élevée les nuages sont responsables de plus 20% de la variabilité journalière de l’UVI selon Ziemke et al. (1998). En plus d’être une source majeure d’incertitude dans les projections climatiques (Boucher et al., 2013), ils sont aussi une des sources principales d’incertitudes dans les projections climatiques d’UV. (Bais et al., 2015b). Leur échelle de variation temporelle et spatiale peut être aussi très courte. Toutes ces raisons en font un des paramètres les plus complexes à prendre en compte lorsque l’on étudie le rayonnement UV. Une solution commune si l’on souhaite étudier le rayonnement en s’affranchissant de la nébulosité est, de ne travailler qu’en ciel clair, à l’aide d’une modélisation sans nuage ou grâce

à un filtrage ciel-clair si l'on utilise des observations.

Aérosols

Les aérosols sont des particules de petite taille ayant pour origine des sources naturelles (volcans, embruns marins) ou des sources anthropogéniques, i.e. issues de l'activité humaine (combustion d'énergie fossile, feux de biomasses). Ce sont des facteurs importants de diffusion du rayonnement UV. De concentration et distribution très varié, ils peuvent être distribués aussi bien dans la troposphère, lorsque leurs sources sont au sol (embruns, pollution, feux..) que dans la stratosphère. La présence d'aérosols dans la stratosphère est justifiée par le transport depuis la tropopause tropicale vers la stratosphère, par un phénomène convectif important dépassant la tropopause ou par des panaches volcaniques (Kremser et al., 2016).

Leur durée de vie est de l'ordre de la semaine. Hess et al. (1998) ont développé une climatologie des aérosols décrivant différentes caractéristiques comme les propriétés optiques ou la distribution en nombre et en taille. Ce jeu de données est disponible sur une grille globale latitude-longitude de 5° par 5°. L'effet des aérosols sur le rayonnement UV est souvent étudié à travers la loi de Beer-Lambert, $I = I_0 \exp(-\tau)$, où I_0 est l'intensité du rayonnement incident, I l'intensité du rayonnement à la sortie du milieu traversé et τ l'épaisseur optique. L'épaisseur optique totale est la somme des épaisseurs optiques dues à l'atténuation par diffusion moléculaire et l'absorption par les gaz.

L'impact des aerosols sur le rayonnement UV a été étudié par différentes équipes. Krotkov et al. (1998) ont montré, à partir d'observations au sol, que les aérosols peuvent atténuer jusqu'à 50% le flux UV. Krzyścin and Puchalski (1998) ont trouvé que pour une augmentation de 10% de l'épaisseur optique d'aérosols à 550nm, on peut observer une chute de 1.5% de la dose journalière d'UV érythémateux. Au cours de la même étude et pour des valeurs plus importantes d'épaisseurs optiques d'aérosols, 0.1 à 0.7, un changement de 20 à 30 % est observé sur la dose journalière d'UV érythémateux.

Albédo

L'albédo, ou réflectivité d'une surface, peut être défini comme la fraction du rayonnement incident réfléchi vers l'atmosphère. On peut distinguer deux cas idéaux de réflexion : la réflexion spéculaire, quand l'angle de la lumière réfléchi est le même que l'angle de la lumière incidente, ou la réflexion Lambertienne, quand la lumière incidente est réfléchi dans toutes les directions (isotropique) et n'est pas dépendante de l'angle incident. Dans la réalité, on se trouve plutôt entre ces deux situations extrêmes, l'albédo dépend généralement du type de surface (végétation, eau, glace, etc ...), de la longueur d'onde et dans certains cas de l'angle d'incidence.

À partir de 14 années d'observations satellitaires provenant du satellite Nimbus-7/TOMS, Herman and Celarier (1997) ont reconstruit de 70°S à 70°N sur une grille de 1° de latitude par 1.5° de longitude, une climatologie de la réflectivité lambertienne équivalente (LER). On peut approximer l'albédo de surface par la LER. La LER étant la réflectivité au sol requise afin d'observer la radiance mesurée par le satellite au sommet de l'atmosphère. Plus récemment à partir des mesures du Global Ozone Monitoring Experiment (GOME), un jeu de données LER a été développé par Koelemeijer et al. (2003).

L'enneigement augmente significativement l'albedo, c'est ainsi que McKenzie et al. (1998)

ont pu quantifier l'augmentation d'UV pour une augmentation d'albédo. Pour une augmentation maximale observée de l'albédo, de 0.6 à 0.8, une augmentation d'UV d'environ 40% a été observée. Les plus fortes augmentations ont été observés dans le domaine des UV-B pour un SZA important ($>70\%$).

1.2.3 Observation et instrumentation

Dans cette étude, les mesures utilisées proviennent de plusieurs sites ; le premier est le site du Moufia, là où se situe l'Université de la Réunion et le Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (LACy). Le second site est celui de la station Météo-France située à l'aéroport de Gillot et le dernier est l'observatoire du Maïdo. Les coordonnées et altitudes de ces différents sites sont présentées dans la table 1.2.

Site	Latitude	Longitude	Altitude [m]
Moufia	20.902°S	55.485 °E	70
Gillot	20.893°S	55.529 °E	0
Maïdo	21.079°S	55.383 °E	2160

TABLE 1.2 – Coordonnées et altitudes des sites de mesures.

1.2.3.1 Observations et mesures des UV

Afin de quantifier le rayonnement UV, une grandeur intégrée sur une large bande de longueur d'onde est utilisée. Ici on se servira principalement du spectre d'action érythémateux comme fonction de poids pour l'intégration de l'irradiance. Une fois intégré on obtient alors l'indice UV (UVI) défini par la norme ISO 17166 :1999/CIES 007/E-1998 :

$$UVI = k_{er} \cdot \int_{250nm}^{450nm} E_{\lambda} \cdot W_{er}(\lambda) d\lambda \quad (1.4)$$

E_{λ} : Irradiance Spectrale en $W.m^{-2}.nm^{-1}$

W_{er} : Spectre d'action Erythemateux

$k_{er} = 40m^2.W^{-1}$

Le spectre d'action érythémateux est issu de mesures prises en laboratoire et réalisées dans le but de déterminer l'efficacité de différentes longueurs d'onde à induire des érythèmes. Ces mesures sont ensuite normalisées. Le spectre d'action érythémateux est représenté en rouge sur la figure 1.7. Sur cette même figure, le spectre d'action de synthèse de la prévitamine-D chez l'homme est représenté en bleu. Ce dernier décrit l'efficacité spectrale des UV à activer la production de vitamine D (Holick et al., 1980). Il existe d'autres spectres d'actions associés à différentes fonctions biologiques.

Plusieurs études réalisées en laboratoire ont montré l'importance du rayonnement UV dans le développement des plantes, taille ou surface de feuille sont deux paramètres ayant une réponse significative. Afin d'étudier l'impact d'une variation de rayonnement UV sur les plantes, le spectre développé par Caldwell (1971) est le plus fréquemment utilisé. Une influence du rayonnement UV sur l'équilibre compétitif entre espèces a aussi été observé, les plantes les plus aptes à résister aux UV sont plus compétitives pour des scénarios d'augmentation d'UV ((Teramura et al., 1990), (Mepsted et al., 1996)).

L'écosystème marin est aussi affecté par le rayonnement UV. Les micro-organismes uni-

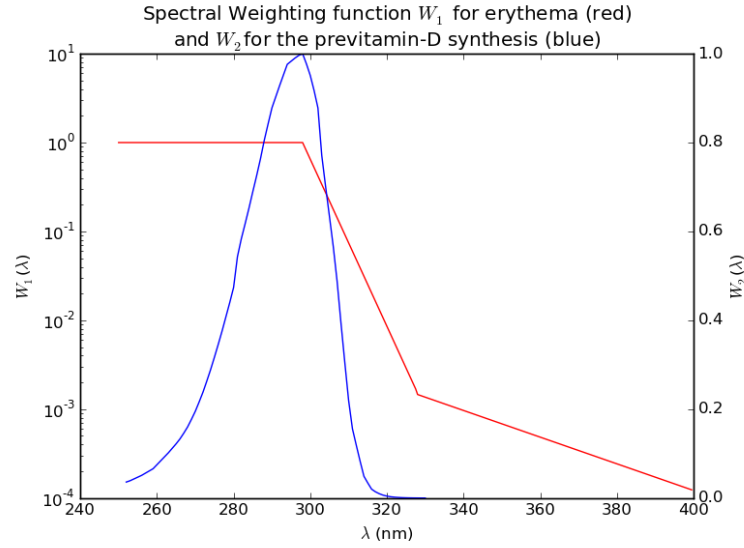


FIGURE 1.7 – Spectre d’Action : en rouge le spectre d’action érythémal et en bleu le spectre d’action associé à la synthèse de la prévitamine-D (Holick et al., 1980).

cellulaires, comme les algues ou les bactéries, ayant une taille petite et un temps de régénération faible sont les plus influencés par le rayonnement UV (Vernet et al., 1993). Par exemple, le mécanisme permettant la photosynthèse chez le phytoplancton est géré par un équilibre délicat dépendant de la salinité et de la température de l’eau, mais aussi des niveaux d’UV-A et UV-B. Des études utilisant différents filtres optiques ont permis de déterminer un spectre d’action décrivant l’inhibition de la photosynthèse sur le phytoplancton (Cullen et al., 1992).

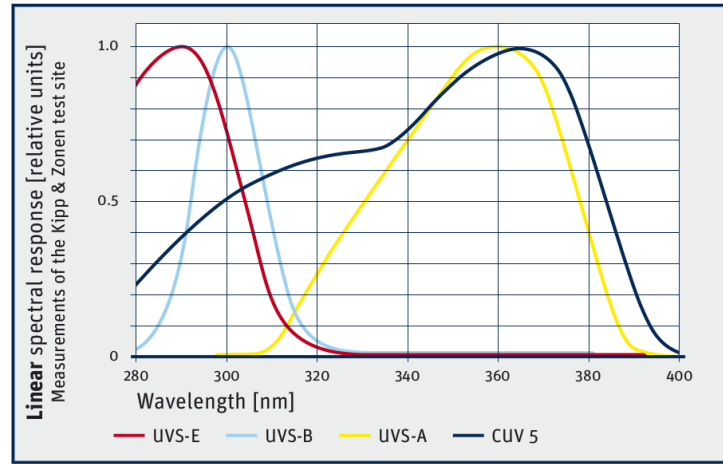
Observations au sol

Spectroradiomètres

Les spectroradiomètres peuvent mesurer le rayonnement sur un nombre important de longueurs d’ondes discrètes. Ils possèdent une résolution spectrale élevée. Le spectroradiomètre utilisé au cours de cette étude est le BENTHAM DM 300n (fig. 1.8a). Il est équipé d’un double monochromateur (fig. 1.8b) permettant une résolution de 0.5 nm pour une fenêtre allant de 280 à 450nm et un pas de mesure de 0.5 nm. L’instrument est en service depuis 2009 sur le site du Moufia. Un étalonnage, réalisé 3 à 4 fois par an, est effectué à partir de lampes de référence (1000W, 150W et Mercure (Hg)). L’instrument est affilié au réseau NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change), C. Brogniez est la P.I de l’instrument.



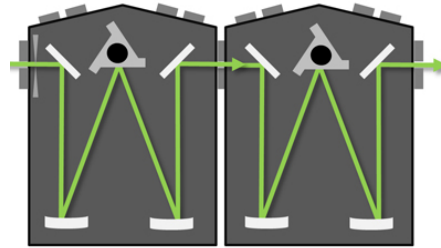
(a) Radiomètre Kipp & Zonen UVS-E



(b) Kipp & Zonen, Réponse Spectrale de différents instruments.



(a) Instrument



(b) Schéma de configuration

FIGURE 1.8 – BENTHAM DM 300

Radiomètre

Contrairement aux spectroradiomètres que l'on peut considérer comme instrument de mesure spectrale discrète, les radiomètres à large bande effectuent une mesure sur un intervalle assez large de longueurs d'ondes, par exemple sur les UV-A (315 à 400 nm). Ils ont généralement une réponse spectrale adaptée à la mesure souhaitée (figure 1.9b). Par exemple, le Kipp & Zonen UVS-E (figure 1.9a) a une réponse spectrale proche du spectre érythémateux, la mesure réalisée est ainsi à un facteur près celle de l'indice UV. Cet instrument fait partie du parc instrumental du LACy et est co-localisé avec le spectromètre BENTHAM sur le site du Moufia.

Observations satellitaires

Des mesures du rayonnement UV sont aussi effectuées sur des instruments embarqués sur satellite. On utilisera au cours de ce travail essentiellement les données prises par l'instrument OMI (Ozone Monitoring Instrument). Descendant de TOMS (Total Ozone Mapping Spectro-

meter), c'est un instrument effectuant des mesures au nadir du rayonnement solaire rétrodiffusé dans le visible et l'UV. Les deux bandes observées dans l'UV vont de 270 à 314 nm et de 306 à 380 nm. Plusieurs algorithmes d'inversion ont été développés afin d'obtenir différents produits ; on peut citer les produits ozone (Bhartia, 2002), les produits estimant les gaz traces (Chance, 2002) et les produits décrivant aérosols, couverture nuageuse ou UV de surface (Stammes and Noordhoek, 2002). Embarqué sur le satellite Aura lancé en juillet 2004, son orbite lui permet de délivrer une couverture globale journalière.

1.2.3.2 Observations des autres facteurs influençant la variabilité des UV

Ozone

Deux mesures différentes d'ozone seront utilisées dans ce travail.

La première est la concentration d'ozone en fonction de l'altitude, exprimée généralement en partie par million (ppmv). Cette mesure est réalisée par plusieurs types d'instruments.

A la Réunion des radiosondages hebdomadaires sont effectués depuis 1998. Ces mesures font partie du réseau Southern Hemisphere ADditional OZonesondes (SHADOZ). Elles permettent d'obtenir la concentration d'ozone en fonction de l'altitude mais aussi l'humidité relative et la température. Les radiosondages atteignent en moyenne une altitude d'environ 35 km (Thompson et al. (2003), Witte et al. (2017)). Les lancements sont faits sur le site de Gillot.

Un lidar DIAL (lidar à absorption différentielle) était installé sur le site du Moufia de 2000 à 2012. A l'observatoire du Maïdo, un lidar DIAL réalise des mesures de profil vertical d'ozone jusqu'à ~ 45 km depuis 2013. Étant dédié à la mesure de l'ozone stratosphérique, sa précision et sa résolution sont adaptées à la fenêtre 17-45 km. Ce lidar fait partie du réseau NDACC.

Les profils verticaux peuvent aussi être obtenus grâce à des satellites. Dans cette étude des mesures issues de MLS (Microwave Limb Sounder) sont utilisées, instrument embarqué sur le satellite Aura lancé en juillet 2004. Comme son nom l'indique, MLS utilise la technique de mesure aux limbes pour déterminer le profil de la composition chimique de l'atmosphère, notamment l'ozone mais aussi d'autres variables comme la température ou l'humidité. Aura est en orbite quasi polaire et fixe relativement au soleil. L'instrument permet l'acquisition de profils verticaux journaliers avec une résolution verticale de 0.3-0.5 km (Froidevaux et al., 2008).

Le second type de mesure d'ozone utilisé au cours de ce travail est la colonne totale, mesurée en unité Dobson (Dobson and Harrison, 1926). Une unité Dobson correspond au nombre de molécules nécessaires pour créer une couche d'ozone de 0.01mm d'épaisseur à une température de 0°Celsius et une pression de 1 atm (1013 hPa). On a alors : $1 \text{ DU} = 2.69 \times 10^{20} \text{ molécules.m}^{-2}$.

Un spectromètre SAOZ (Système d'Analyse par Observations Zénithales) a été utilisé, il se trouve sur le site du Moufia de l'Université de la Réunion et est colocalisé avec le BENTHAM. Le spectromètre SAOZ (Pommereau and Goutail, 1988) est un spectromètre UV(450-600nm) permettant la mesure de la colonne totale d'ozone et du dioxyde d'azote. Il a été développé par le service d'Aéronomie du CNRS dans les années 1980. Avec une résolution de 1 nanomètre, il effectue des mesures au lever et coucher du Soleil de la lumière diffusée au zénith. Sur le site du

Moufia des données journalières sont disponibles depuis 1993.

La colonne totale d'ozone est aussi disponible grâce à des mesures satellitaires. On utilisera ici les données provenant des produits SBUV_MOD (Solar Backscatter Ultraviolet Radiometer Merged Ozone Dataset) et OMTO3G (Ozone Monitoring Instrument). SBUV_MOD est un produit global issu des instruments SBUV et SBUV2 en service depuis 1985.

TABLE 1.3 – Données d'Ozone.

Données	Instrument	Lieu	Résolution	Contact(P.I)	Affiliation
Colonne totale d'Ozone (TO_3)	SAOZ	Moufia	Journalière	A. Pazmino T. Portafaix	LATMOS (Paris-France) LACy (Saint-Denis)
	SBUV2	Satellite	Journalière	R. McPeters	NASA
	OMTO3G	Satellite	Journalière	P. Veefkind	KNMI (Netherland)
Profil d'Ozone et Température	Sondes Ozone	Moufia	Hebdomadaire	F. Posny	LACy (Saint-Denis) Université de la Réunion
	MLS	Satellite	Daily Overpass	L. Froidevaux	NASA-JPL

Aérosols

Comme indiqué précédemment les aérosols jouent aussi un rôle important sur le rayonnement UV de surface. Pour cette étude, les données du photomètre CIMEL Electronique CE318 sont utilisées. Cet instrument est installé sur le site du Moufia depuis 1997. C'est un photomètre multibandes mesurant l'irradiance du Soleil et du ciel avec une fréquence de mesure d'environ 20 minutes. Il fait partie du réseau AERONET (AErosol RObotic NETwork), un projet initié par la National Aeronautics and Space Administration (NASA) et le Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA). Grâce à une roue porte-filtres plusieurs longueurs d'ondes sont sélectionnées (340, 380, 440, 500, 670, 870, 940 et 1020 nm). Suivant la loi de Beer-Bougher, l'épaisseur optique est calculée à partir de la mesure d'extinction du rayonnement direct à chaque longueur d'onde. Une estimation de la colonne totale d'ozone, de la diffusion Rayleigh et de l'absorption par d'autres polluants sont soustraites afin d'isoler l'épaisseur optique d'aérosols (AOT).

TABLE 1.4 – Données disponibles sur les aérosols.

Données	Instrument	Site	Résolution	Contact(P.I)	Affiliation
AOT (340 nm) Albédo de Diffusion Simple (SSA) (440 nm) Coefficient d'Ångström α (340-440 nm)	Cimel Sunphotometer	Moufia	≈ 20 minutes	P. Goloub	LOA (Lille-France)

Nuages

Comme indiqué précédemment Les nuages sont responsables d'une grande partie de la variabilité du rayonnement UV, plusieurs types de mesures permettent de quantifier la couverture nuageuse.

Des relevés de couverture nuageuse sont souvent effectués depuis les aéroports. Un observateur au sol estime la couverture nuageuse du ciel en octas, $\frac{0}{8}$ correspond à un ciel complètement clair et $\frac{8}{8}$ correspond à un ciel complètement couvert. Cette mesure est réalisée toutes les heures à la station météo de l'aéroport de Gillot, à Saint-Denis, et couvre toute la période de notre étude (Chapitre 2). La distance entre les sites du Moufia et de Gillot est d'une dizaine de kilomètres.

On peut aussi obtenir indirectement une estimation de la couverture nuageuse, on utilise pour cela des mesures de flux global et diffus. Cette méthode repose sur le principe que l'irradiance totale au sol sera plus faible lors de la présence de nuages que lorsque le ciel est complètement dégagé. Si quelques nuages épars sont présents, le rayonnement diffus augmente. Pour cette situation deux cas sont possibles. Soit le rayonnement direct n'est pas atténué, on peut alors obtenir une irradiance totale plus importante qu'avec un ciel complètement clair. Le rayonnement direct, non atténué, et le rayonnement diffus, plus important, s'ajoutent, il y a donc un effet positif des nuages sur le flux total. Soit le rayonnement direct est atténué, on parle alors d'effet négatif des nuages.

Un algorithme reposant sur différents tests a été proposé par Long and Ackerman (2000). Celui-ci permet d'identifier les situations où le ciel est complètement dégagé des situations où la présence de nuages influence le flux. La magnitude et la variabilité temporelle du flux total et diffus, mais aussi le rapport de ces deux quantités, sont analysés afin d'identifier des périodes de ciel complètement clair. Un pyranomètre SPN1 d'une résolution d'une minute est présent au Moufia et couvre toute la période de notre étude (Chapitre 2). Les mesures de flux de cet instrument, ainsi que l'algorithme de Long and Ackerman (2000) permettent d'obtenir une estimation de la couverture nuageuse sur le site du Moufia.

Aujourd'hui des caméras dénommées communément All Sky Imager (ASI) sont de plus en plus utilisées afin de renseigner sur la couverture nuageuse. Ces dernières permettent une résolution temporelle plus élevée qu'un observateur. Elles sont aussi équipées d'outils de post-traitement, permettant entre autre de classifier la couverture nuageuse selon l'occultation ou non du soleil.

Bien que ces mesures permettent d'avoir une estimation de la fraction nuageuse, elles ne renseignent pas sur les caractéristiques des nuages comme la distribution en taille des gouttelletes, la géométrie des nuages, ou encore la structure verticale. Il est toujours difficile d'avoir une observation complète des nuages avec une résolution temporelle et spatiale élevée.

TABLE 1.5 – Données disponibles sur les nuages.

Données	Instrument	Lieu	Résolution	Contact(P.I)	Affiliation
Nuages	Rapport d'observateur	Gillot	dt = 1 heure	F. Bonnardot	MF (Saint-Denis)
Flux Global et Diffus Irradiance Totale	SPN1 Pyranomètre masqué	Moufia	dt = 1 minute	B. Morel P. Jeanty	LE2P (Saint-Denis)

1.3 Modélisation du rayonnement UV

Afin de modéliser le rayonnement UV il faut prendre en compte plusieurs phénomènes : l'absorption et la diffusion lors de la traversée de l'atmosphère et l'albedo de surface.

Absorption

L'absorption est la perte de l'énergie incidente due à une réaction chimique ou thermique. Considérons un rayonnement incident monochromatique d'un angle θ sur une surface d'épaisseur z contenant un gaz absorbant distribué uniformément d'un nombre de densité n [molécules.m⁻³]. La relation entre la radiation incidente I_0 et la radiation transmise I suit la loi de Beer-Lambert :

$$\frac{dI}{dz} = -\sigma n I \quad (1.5)$$

L'intégration de l'équation précédente donne alors :

$$I = I_0 e^{-\tau(\lambda, z)/\cos(\theta)} \quad (1.6)$$

τ est l'épaisseur optique définie par : $\tau = \sigma n z$. z est l'épaisseur du milieu traversé, σ est la section efficace d'absorption dépendante de l'espèce chimique, de la température et de la longueur d'onde. La section efficace est mesurée en laboratoire, la figure 1.6 représente la section efficace de l'ozone en fonction de la longueur d'onde à différentes températures (Serdyuchenko et al., 2014). Si la densité du gaz varie le long du milieu, comme par exemple dans le cas de l'atmosphère selon l'altitude, alors on a : $\tau = \sigma N$, où $N = \int n dz$ si σ ne dépend pas de z .

Diffusion

Lorsqu'un faisceau lumineux étroit interagit avec de la matière, sa direction de propagation peut être modifiée, on parle alors de diffusion. Le pinceau lumineux peut être diffusé plusieurs fois, on parle alors de diffusion multiple, diverses directions de diffusions sont possibles. De cette manière il peut être réfléchi, on parle alors de rétrodiffusion. Le processus de diffusion est dépendant de plusieurs paramètres comme la taille des particules ou molécules et la longueur d'onde. Décrivons la théorie associée à ce phénomène.

Définissons en premier lieu l'angle de diffusion(Θ) entre le rayonnement incident et le rayonnement diffusé, i.e. l'angle entre le rayonnement venant de (θ', ϕ') et diffusé vers (θ, ϕ) . En géométrie sphérique, l'angle de diffusion est défini par la relation suivante (Liou, 2002) :

$$\cos \Theta = \cos(\theta') \cos(\theta) + \sin(\theta') \sin(\theta) \cos(\phi - \phi') \quad (1.7)$$

On peut définir plusieurs paramètres caractéristiques du régime de diffusion.

Pour des particules de petites tailles par rapport à la longueur d'onde, c'est le régime de Rayleigh (Rayleigh, 1871). La diffusion est ici distribuée uniformément dans les directions avant et arrière. Cette diffusion concerne les gaz et notamment le diazote (N_2) et le dioxygène (O_2).

L'efficacité de diffusion, ϵ , dépend de la longueur d'onde : $\epsilon \propto \lambda^{-4}$. Cette relation explique la couleur du ciel ; les longueurs d'ondes visibles plus petites (bleues et violettes) seront plus efficacement diffusées.

Lorsque les particules sont grandes c'est la diffusion de Lorenz-Mie (Lorenz (1890), Mie (1908)). Cette diffusion concerne principalement les aérosols et les particules nuageuses. La direction de diffusion est essentiellement vers l'avant.

Le paramètre de taille (α) d'une particule de rayon r est défini par :

$$\alpha \equiv \frac{2\pi r}{\lambda} \quad (1.8)$$

Pour la diffusion Rayleigh on a $\alpha \ll 1$, pour la diffusion de Mie $\alpha \sim 1$ ou $\gg 1$.

Lors de la diffusion, le rayonnement est diffusé dans plusieurs directions. Il est nécessaire de spécifier sa distribution angulaire. Pour cela, on définit un paramètre non-dimensionnel, la fonction de phase $P(\cos\Theta)$, on peut aussi décrire ce paramètre comme étant la probabilité qu'un photon se propageant dans la direction $\Omega'(\theta',\phi')$ soit diffusé dans la direction $\Omega(\theta,\phi)$. Par définition la fonction de phase est normalisée :

$$1 = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \frac{P(\cos\Theta)}{4\pi} d\Theta d\phi \quad (1.9)$$

Pour des photons non polarisés diffusés par des molécules d'air, la théorie de Rayleigh amène la fonction de phase suivante :

$$P(\Theta) = \frac{3}{4}(1 + \cos^2\Theta) \quad (1.10)$$

La fonction de phase peut s'exprimer comme une somme de polynôme de Legendre P_l .

$$P(\cos\Theta) = \sum_{l=0}^N w_l P_l \cos\Theta \quad (1.11)$$

Où le coefficient de développement w_l est défini par :

$$w_l = \frac{2l+1}{2} \int_{-1}^1 P(\cos\Theta) P_l(\cos\Theta) d\cos\Theta, \quad l = 0, 1, \dots, N \quad (1.12)$$

Si $l=0$, alors $w_0 = 1$, on retrouve la définition de la normalisation de la fonction de phase (Eq. 1.9).

Si $l=1$, on obtient le premier moment de la fonction de phase, le facteur d'asymétrie g :

$$g \equiv \frac{1}{2} \int_{-1}^1 P(\Theta) \cos\Theta d(\cos\Theta) \quad (1.13)$$

g donne une mesure de la directionnalité de la diffusion :

- $g = +1$, la diffusion est entièrement vers l'avant
- $g = -1$, la diffusion est entièrement vers l'arrière
- $g = 0$, la diffusion est symétrique, c'est le cas de la diffusion Rayleigh.

Sur la figure 1.10 sont représentées les différentes fonctions de phases associées à des particules de tailles différentes.

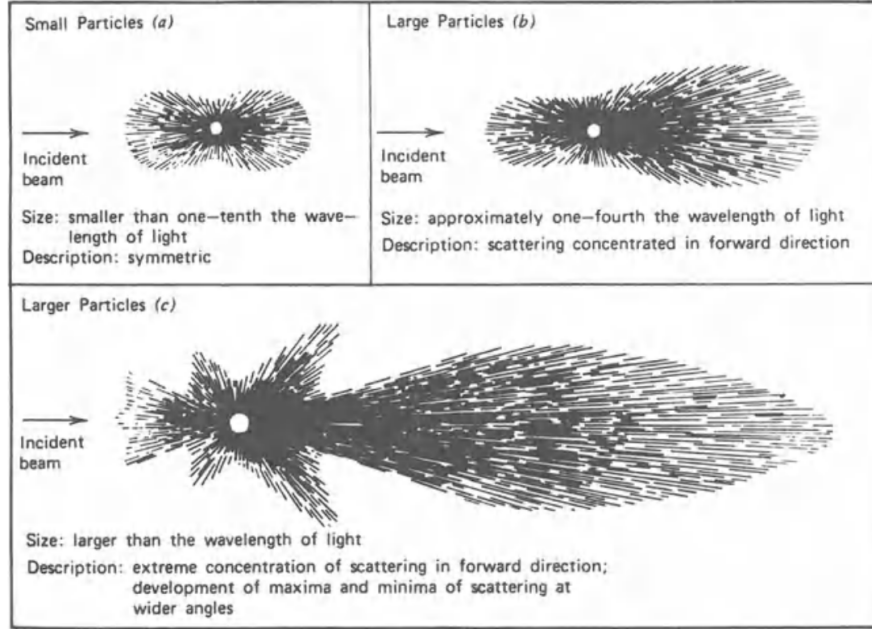


FIGURE 1.10 – Fonction de phase pour différentes diffusions (McCartney, 1976)

En pratique, absorption et diffusion sont des phénomènes simultanés. L'albédo de simple diffusion (w_0) permet de quantifier la part de la diffusion dans l'extinction totale. C'est pourquoi il est défini comme le rapport entre la section efficace de diffusion (σ_s) et la section efficace d'extinction (σ_e), cette dernière étant la somme des sections efficaces de diffusion et d'absorption (σ_a).

$$w_0 \equiv \frac{\sigma_s}{\sigma_e} = \frac{\sigma_s}{\sigma_s + \sigma_a} \quad (1.14)$$

1.3.1 Équation du transfert radiatif

Afin de modéliser le rayonnement, on utilise la luminance énergétique L (ou Radiance en anglais). Cette grandeur représente l'énergie émise ou transférée dans une direction spécifique, par unité de surface et de temps.

Considérons un flux énergétique se propageant dans la direction $\Omega = (\theta, \phi)$, à travers une atmosphère plan-parallèle d'épaisseur optique $d\tau$. Si l'on se réfère à Chandrasekhar (1960), on peut définir l'équation monochromatique du transfert radiatif (ETR) décrivant la propagation de L à travers un milieu dont les propriétés optiques sont définies par un simple albedo de

diffusion w_0 , une fonction de phase P et un coefficient d'extinction σ_e :

$$\mu \frac{dL(\tau, \Omega)}{d\tau} = L(\tau, \Omega) - S(\tau, \Omega) \quad (1.15)$$

Où :

$$\mu = \cos(\theta) \quad (1.16)$$

Le terme source S est :

$$\begin{aligned} S = & \overbrace{\frac{w_0}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_{-1}^1 P(\tau, \Omega, \Omega') L(\tau, \Omega') d\mu'}^{\text{Diffusion radiative de } \Omega' \text{ vers } \Omega} \\ & + \underbrace{Q(\tau, \Omega)}_{\text{Transfert Radiatif Thermal}} + \underbrace{\frac{w_0 I_0}{4\pi} P(\Omega, \Omega_0) e^{-\tau/\mu_0}}_{\text{Flux incident direct}} \end{aligned} \quad (1.17)$$

Où Q est défini par :

$$Q(\tau, \Omega) = (1 - w_0) B(T, \tau) \quad (1.18)$$

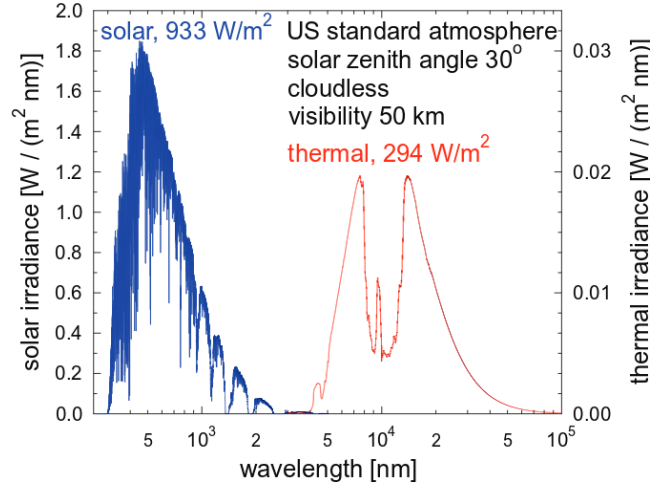
$B(T, \tau)$ étant la radiance émise par un corps noir de température T .

L'équation 1.15 peut s'écrire alors :

$$\begin{aligned} \mu \frac{L(\tau, \mu, \phi)}{d\tau} = & L(\tau, \mu, \phi) - \frac{w_0}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_{-1}^1 P(\tau, \mu, \phi, \mu', \phi') L(\tau, \mu', \phi') d\mu' \\ & - (1 - w_0) B[T(\tau)] - \frac{w_0 I_0}{4\pi} P(\mu, \phi, \mu_0, \phi_0) e^{-\frac{\tau}{\mu_0}} \end{aligned} \quad (1.19)$$

Si on s'intéresse à l'irradiance du Soleil et de la Terre, on peut constater que les spectres ne se superposent pas (figure 1.11). Ainsi pour modéliser la partie ultraviolette du rayonnement, il n'est pas nécessaire de résoudre le transfert radiatif thermique et solaire en même temps, cela simplifie légèrement la résolution de l'ETR.

FIGURE 1.11 – Irradiance du Soleil et de la terre. (Mayer, B., 2009)



1.3.2 Résolution numérique de l'ETR

L'équation 1.15 est une équation intégrodifférentielle dont la résolution est complexe. Seules quelques solutions analytiques existent pour des cas spécifiques. Des méthodes de résolutions numériques ou d'approximations ont été développées par plusieurs auteurs (Chandrasekhar (1960), Stamnes et al. (1988), Goody and Yung (1995)).

1.3.2.1 Solution analytique exacte

Des solutions analytiques exactes de l'ETR n'existent que pour des cas de structure très simple comme le cas d'un simple plan parallèle homogène. Même dans ce cas simple, une fonction de phase simple doit être utilisée, généralement isotrope ($P = 1$), le rayonnement est diffusé de la même façon dans toutes les directions de l'espace. Anderson and Meier (1979) ont donné une solution analytique de ce cas. Cette résolution permet de manipuler simplement l'ETR mais ne peut répondre à de réelles conditions atmosphériques. Il est nécessaire de passer par une approche de résolution numérique.

1.3.2.2 Solution numérique exacte

Ces méthodes de résolution permettent de garder des conditions réalistes, la fonction de phase reste arbitraire, l'atmosphère est verticalement inhomogène. La précision dépend ici du temps requis à faire converger la solution et donc de la puissance de calcul numérique disponible.

Avant la procédure numérique, un traitement analytique doit être fait. Prenons par exemple le cas de la méthode des ordonnées discrètes (Stamnes et al., 1988). Le postulat initial est le suivant : la solution de l'équation du transfert radiatif peut se décomposer en une série finie de canaux discrets ("discrete-streams" dans la littérature). Cette série représente

les différents angles entre le rayonnement incident et le rayonnement diffus (Liou, 1973).

La fonction de phase $P(\mu, \phi, \mu', \phi')$ peut être développée comme une somme de polynômes de Legendre (voir Eq. 1.11), :

$$P(\mu, \phi, \mu', \phi') = \sum_{m=0}^N \sum_{m=0}^N w_l^m P_l^m(\mu) P_l^m(\phi') \cos(m(\phi' - \phi)) \quad (1.20)$$

Où $w_l^m = (2 - \delta_{0,m}) w_l \frac{(l-m)!}{(l+m)!}$.
 $\delta_{0,m}$ est la fonction delta de Dirac, i.e. ici égal à 1 si $m = 0$, sinon égal à zero. P_l^m sont les polynômes de Legendre associés.

D'autre part on développe la radiance en séries de Fourier :

$$L(\tau, \mu, \phi) = \sum_{m=0}^N L^m(\tau, \mu) \cos(m(\phi_0 - \phi)) \quad (1.21)$$

Si l'on insère ces deux développements dans l'équation 1.19, on obtient alors N équations différentielles ordinaires, il reste alors à résoudre un problème aux valeurs propres.

La quadrature de Gauss nous permet finalement de remplacer l'intégrale par une somme pondérée finie de points :

$$\int_{-1}^1 f(\mu) d\mu \approx \sum_{j=-N}^N a_j f(\mu_j) \quad (1.22)$$

Les poids a_j sont définis par :

$$a_j = \frac{1}{P'_{2N}(\mu_j)} \int_{-1}^1 \frac{P_{2N}(\mu)}{\mu - \mu_j} d\mu \quad (1.23)$$

En remplaçant les intégrales par ces sommes, l'équation 1.19 devient alors :

$$\begin{aligned} \mu_i \frac{dL^m(\tau, \mu_i)}{d\tau} &= L^m(\tau, \mu_i) - \frac{w_0}{2} \sum_{j=-N}^{2N-1} a_j L^m(\tau, \mu_j) P_l^m P_j^l(\mu_j) \\ &\quad - \frac{w_0}{4} F_0 (2 - \delta_{0,m}) \left[\sum_{l=m}^{2N-1} (-1)^{l+m} w_l P_l^m(\mu_j) P_l^m(\mu_0) \right] e^{-\tau \mu_0} \end{aligned} \quad (1.24)$$

Stamnes et al. (1988) proposèrent une implémentation numérique de cette définition de l'ETR dans le cas du plan parallèle. Plus tard cette résolution a été généralisée au cas pseudo sphérique par Dahlback and Stamnes (1991) afin d'apporter plus de précision dans le cas d'un angle solaire zénithal élevé, i.e. dans le contexte où l'approximation plan parallèle devient discutable. Un cas

spécifique et très commun de cette méthode est celle des deux canaux ou "two-streams" (Meador and Weaver (1980), Toon et al. (1989)). On ne considère ici que le flux montant et descendant. Cette méthode permet un résultat assez précis pour un temps de calcul plutôt faible.

En pratique, on se doit de découper l'atmosphère en plusieurs couches. En effet le profil vertical de l'atmosphère étant variable, il est important de définir chacune des couches en fonction de ses propriétés optiques. On multiplie donc nos $2N$ équations différentielles par M couches. Le développement précédent étant monochromatique, si l'on souhaite obtenir une solution pour une plage de L longueur d'ondes, on doit résoudre L fois les M couches de $2N$ équations différentielles. Le coût numérique de la résolution de l'équation du transfert radiatif peut devenir rapidement très élevé.

1.3.2.3 Solution numérique approximée

Les solutions numériques approximées sont celles qui simplifient les propriétés optiques de l'atmosphère. Elles sont moins précises mais réduisent le temps de calcul. Présentons brièvement l'exemple de la méthode "2-stream" développée par Meador and Weaver (1980).

On suppose ici que la radiance est indépendante de l'azimut ϕ et est divisée en deux termes, l'irradiance montante F^+ et l'irradiance descendante F^- :

$$F^\pm(\tau, \mu_0) = \int_0^1 L(\tau, \pm\mu) \mu d\mu \quad (1.25)$$

La fonction de phase $P(\mu, \phi, \mu', \phi')$ est indépendante de l'angle azimutal.

L'équation du transfert radiatif (Eq. 1.19) est alors remplacée par les deux équations suivantes décrivant l'irradiance montante et descendante :

$$\frac{dF^+}{d\tau} = \int_0^1 L(\tau, \mu) d\mu - \frac{1}{2} \int_0^1 \int_{-1}^1 P(\mu, \mu') L(\tau, \mu') d\mu' d\mu - \pi F_0 w_0 \beta_0 e^{-\tau/\mu_0} \quad (1.26)$$

$$\frac{dF^-}{d\tau} = - \int_0^1 L(\tau, \mu) d\mu + \frac{1}{2} \int_0^1 \int_{-1}^1 P(\mu, -\mu') L(\tau, \mu') d\mu' d\mu + \pi F_0 w_0 (1 - \beta_0) e^{-\tau/\mu_0} \quad (1.27)$$

Où :

$$\beta_0 = \frac{1}{2w_0} \int_0^1 p(\mu_0, -\mu') d\mu' \quad (1.28)$$

A ce stade, plusieurs approximations permettent de simplifier les deux équations précédentes en deux équations linéaires différentielles couplées pour le flux F^+ et F^- (Meador and Weaver, 1980).

L'approximation δ -Eddington ((Joseph et al., 1976)) postule une forme angulaire de la luminance :

$$L(\tau, \mu) = L_0(\tau) + \mu L_1(\tau) \quad (1.29)$$

En substituant dans l'équation 1.25, on obtient :

$$F^+ = \frac{1}{2}L_0(\tau) + \frac{3}{2}L_1(\tau) \quad (1.30)$$

$$F^- = \frac{1}{2}L_0(\tau) - \frac{3}{2}L_1(\tau) \quad (1.31)$$

L'équation 1.29 peut alors s'écrire.

$$L(\tau, \pm\mu) = \frac{1}{2}[(2 \pm 3\mu)F^+(\tau)] + (2 \mp 3\mu)F^-(\tau), \mu \geq 0 \quad (1.32)$$

Pour cette méthode, on approxime la fonction de phase moyenne azimutale par :

$$P(\mu, \mu') = w_0(1 + 3q\mu\mu') \quad (1.33)$$

Si on utilise ces deux dernières équations on peut réécrire les termes intégrales de 1.26 et 1.27 et obtenir enfin :

$$\frac{dF^+}{d\tau} = \frac{1}{4}[7 - w_0(4 + 3g)]F^+ + \frac{1}{4}[1 - w_0(4 - 3g)]F^- - \pi F w_0 \frac{1}{4}(2 - 3g\mu_0)e^{-\tau/\mu_0} \quad (1.34)$$

$$\frac{dF^-}{d\tau} = \frac{1}{4}[7 - w_0(4 + 3g)]F^+ + \frac{1}{4}[1 - w_0(4 - 3g)]F^- - \pi F w_0 \frac{1}{4}(2 - 3g\mu_0)e^{-\tau/\mu_0} \quad (1.35)$$

Pour les méthodes "two-stream", on peut reformuler les équations sous cette forme :

$$\frac{dF^+}{d\tau} = \gamma_1 F^+ - \gamma_2 F^- - \pi F w_0 \gamma_3 e^{-\tau/\mu_0} \quad (1.36)$$

$$\frac{dF^-}{d\tau} = \gamma_2 F^+ - \gamma_1 F^- + \pi F w_0 \gamma_4 e^{-\tau/\mu_0} \quad (1.37)$$

Suivant l'approximation particulière de la distribution angulaire de la luminance et/ou de la fonction de phase γ_1 , γ_2 , γ_3 , et γ_4 auront différentes valeurs (Meador and Weaver (1980), Toon et al. (1989), Zdunkowski et al. (1980). Une description et inter-comparaison des différentes approximations existantes ont été réalisées par Petropavlovskikh and Brasseur (1995).

1.3.2.4 Modélisation 3D du rayonnement UV

L'approximation en une dimension possède ses limites. Par exemple en présence de nuages, les effets de rétrodiffusion et réflexion dans le plan oxy ou oxz peuvent être importants.

Monte Carlo

Afin de résoudre l'ETR en deux ou trois dimensions, on peut considérer le transfert comme un processus stochastique dont les variables aléatoires sont les interactions des photons avec les atomes du médium qu'ils traversent. On utilise souvent le cas particulier dans lequel l'évolution présente ne dépend pas de l'évolution passée, c'est la propriété de Markov (Titov, 1990). Lorsqu'un photon entre en contact avec un atome du milieu, il peut y avoir absorption ou diffusion. S'il est ainsi absorbé ou diffusé, sa direction de propagation peut alors changer. La méthode consiste à effectuer un suivi de photon depuis sa source jusqu'à son point d'arrivée. La source peut être le Soleil dans le cas du rayonnement ultraviolet, mais aussi l'émission depuis un constituant de l'atmosphère, dans le cas d'un rayonnement infrarouge. On définit le parcours droit entre deux collisions comme le chemin libre. L'angle entre deux directions avant et après collision est l'angle de diffusion.

Suivons alors la mise en équation de ce problème par Mayer, B. (2009) :

Un photon est émis dans une certaine direction d'une position initiale (sommet de l'atmosphère pour le rayonnement solaire, atmosphère pour le rayonnement infrarouge). La loi de Beer-Lambert donne la probabilité p_s qu'un photon survive le long d'un chemin :

$$p_s(\tau) = \exp(-\tau) \quad (1.38)$$

L'épaisseur optique τ est l'intégrale du coefficient d'extinction volumique le long du chemin emprunté par le photon :

$$\tau = \int_0^s k_{ext}(s') ds' \quad (1.39)$$

Alors la probabilité d'extinction (p_{ext}), i.e. la probabilité qu'un photon s'éteigne entre τ et $\tau + d\tau$ est :

$$p_{ext}d\tau = p_s(\tau) - p_s(\tau + d\tau) = -\frac{dp}{d\tau}d\tau \quad (1.40)$$

Ainsi :

$$p_{ext} = p_{sur} = \exp(-\tau) \quad (1.41)$$

La probabilité qu'un photon survive (p_{sur}) est égale à la probabilité d'extinction.

Calculons la fonction de répartition P.

$$P_{ext} = \int_0^\tau p_{ext}(\tau') d\tau' = 1 - \exp(-\tau) \quad (1.42)$$

Selon von Neumann (1947), pour tout nombre $\rho \in [0, 1]$, il existe τ tel que $\tau = P^{-1}(\rho)$. On recherche alors la fonction inverse P^{-1} :

$$P_{ext}^{-1}(P) = \tau(P_{ext}) = -\ln(1 - P) \quad (1.43)$$

Pour chaque nombre ρ , $\rho \in [0, 1]$ on a ainsi :

$$\tau = P_{ext}^{-1}(\rho) = -\ln(1 - \rho) \quad (1.44)$$

Si l'on effectue un nombre important de tirages aléatoires suivant cette probabilité on revient alors à la loi de Beer-Lambert. Afin d'utiliser cette méthode, il est nécessaire de connaître les propriétés optiques de l'espace à travers lequel le photon se propage. Cette méthode est purement statistique, en conséquence le résultat est soumis à un certain bruit statistique. Pour réduire le bruit, il faut augmenter le nombre de photons que l'on trace. La précision de la méthode dépend donc du nombre d'expériences réalisées. Le coût de calcul de cette méthode peut ainsi être très important.

1.3.2.5 Modèle de transfert radiatif UV

Plusieurs codes numériques de transfert radiatif existent. Leurs spécificité (1D/3D, géométrie, polarisation, ...) dépend généralement de la région spectrale d'étude (UV, IR, micro-ondes ...).

Au cours des chapitres suivants, nous utiliserons le Tropospheric Ultraviolet Model (TUV) (Madronich et al., 1998) pour modéliser le rayonnement UV. TUV s'appuie sur le code Discrete Ordinates Radiative Transfer program for a Multi-Layered Plane-Parallel Medium (DISORT) pour résoudre l'ETR. DISORT est un code Fortran développé par (Stamnes et al., 2000) à partir de la méthodologie proposée par (Stamnes et al., 1988). La méthode "two-stream", développée précédemment, est l'une des méthodes de résolution implémentée dans DISORT et donc dans TUV, ce sera celle utilisée au cours de cette étude.

D'autres codes de transfert radiatif existent. Leurs spécificité (1D/3D, géométrie, polarisation) dépend généralement de la région spectrale d'étude (UV, IR, micro-ondes ...). On peut citer par exemple libRadtran (Emde et al., 2016), ce code modulable permet de modéliser l'UV, grâce au module UVSPEC (Mayer and Kylling, 2005), mais il permet aussi une modélisation 3D du rayonnement, grâce au module MYSTIC (Mayer, 1999).

1.4 Modélisation de la composition chimique de l'atmosphère

La modélisation du climat est le principal outil afin de prévoir les changements climatiques futurs. Cet outil aide aussi à la compréhension du climat passé, à combler et mieux comprendre les observations. Pour reproduire le système climatique terrestre, il faut en premier lieu exprimer mathématiquement les lois physiques décrivant ce système. Un équilibre est à trouver entre fidélité de représentation de la réalité et coût de calcul numérique. Plusieurs techniques sont utilisées afin de répondre à ce problème, on peut agir par exemple sur la discrétisation du système, la méthode de résolution numérique des équations ou encore le choix de paramétrisation des processus. La paramétrisation consiste à représenter certains processus physiques par une loi approximative. Comme certains processus ne sont pas solvables à l'échelle spatiale ou temporelle sur laquelle les modèles climatiques sont définis (nuages, turbulence..), ou sont trop complexes (cycle biogéochimique, ondes de gravité), des paramétrisations sont alors développées à partir de comparaisons entre observations et modèles conceptuels. (Jakob, 2010) Au cours de cette étude, comme nous nous intéresserons essentiellement à la composition chimique de l'atmosphère, nous ne présenterons pas la modélisation des aérosols.

1.4.1 Développement des modèles numériques.

Les premiers modèles numériques utilisaient les équations primitives (Bjerknes) afin de décrire la dynamique atmosphérique, i.e. les mouvements et l'état thermodynamique (température, pression, densité) de l'atmosphère. L'extension de ces équations sur le globe permit l'émergence de modèle de circulation générale (GCM). Les GCMs possèdent un noyau dynamique défini par les équations primitives et des procédés physiques décrits par des paramétrisations (convection, turbulence, nuages, ..).

La représentation des espèces chimiques est aussi résolue numériquement. Si celle-ci est traitée séparément d'un modèle dynamique atmosphérique, il n'y a alors pas de couplage entre chimie et climat, on parle dans ce cas de CTM (Chemistry Transport Model). Néanmoins, la dynamique de l'atmosphère impacte sa composition ; les vents déplacent les molécules, et les vitesses de réaction sont affectées notamment par la température et la pression. Un CTM permet de résoudre la chimie à partir de forçages dynamiques, le coût de calcul est moins élevé qu'un GCM, mais l'absence de couplage implique l'absence de rétroaction de la chimie sur la dynamique, on dit que la chimie est "offline" (Chipperfield, 1999b).

Certains modèles intègrent la chimie au modèle météorologique et possèdent alors une rétroaction sur la dynamique, on parle dans ce cas de CCM (Chemistry Climate Model).

L'océan joue un rôle important, il permet le transport d'importantes quantités de chaleur des tropiques vers les pôles. C'est aussi un puits de stockage de chaleur et de carbone. Une partie importante de la vapeur d'eau présente dans l'atmosphère provient de l'océan (Houghton, 1996). Le couplage océan-atmosphère dans les modèles climatiques a fait récemment l'objet de nombreux développements. Les modèles permettant le couplage de l'atmosphère et de l'océan sont dénommées AOGCM ou OAGCM (Atmosphere Ocean Global Climate Model).

Des modèles encore plus complets sont développés intégrant de nombreux processus ayant lieu sur Terre, des processus atmosphériques et océaniques, mais aussi la modélisation de la

biosphère, de la glace et des terres. Ces modèles sont appelés Earth System Model (ESM).

En résumé on peut regrouper les différents modèles en plusieurs catégories :

- **CTM**, Modèle de Transport Chimique (Chemical Transport Model) : Modèle traitant uniquement des procédés chimiques, les variables physiques telles que la température ou le vent proviennent d'un autre modèle. Il n'y a ainsi pas de couplage entre la chimie, le transfert radiatif et le transport.
- **CCM**, Modèle de Chimie-Climat (Chemistry-Climate Models) : Modèle couplant chimie, transfert radiatif et transport. L'océan n'est généralement pas couplé.
- **AOGCM**, Modèle de circulation générale Atmosphère-Océan (Atmosphere-Ocean General Circulation Model) : L'océan est dynamique et il y a couplage entre atmosphère et océan. Un AOGCM ne résout pas systématiquement la composition chimique de l'atmosphère.
- **ESM**, Modèle de circulation générale Atmosphère-Océan (Earth System Model) incluant aussi les processus physico-chimiques provenant de la biosphère, des glaces ou des terres.

L'évolution de la complexification des modèles climatiques au cours des quarantes dernières années est représentée sur la figure 1.12.

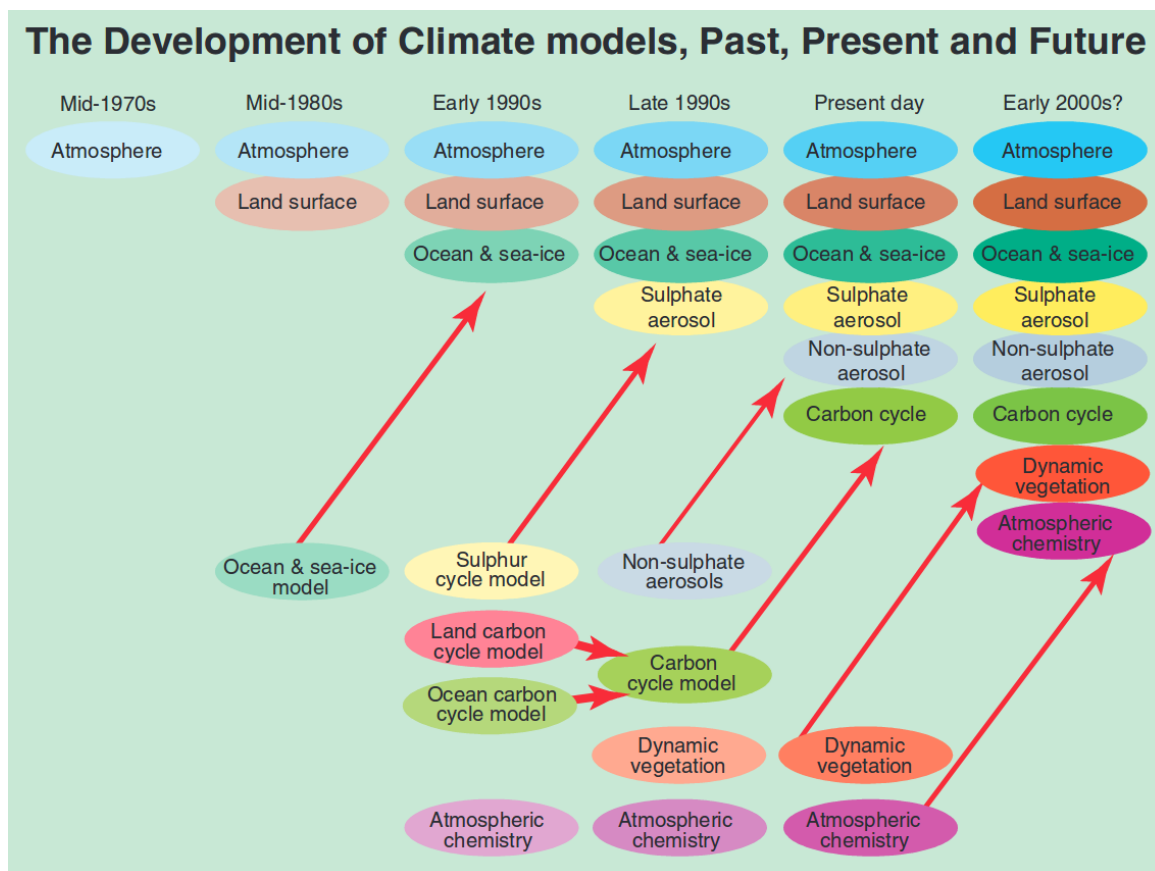


FIGURE 1.12 – Développement des modèles de climat. [IPCC Third Assessment Report, Technical Summary, (Griggs and Noguer, 2002)]

1.4.2 Processus modélisés

De nombreux processus interviennent dans un modèle numérique, même si dans la réalité tous ces processus interagissent entre eux en même temps, ils sont résolus les uns après les autres dans le cadre de la modélisation. Une schématisation des différents processus présents dans un modèle climatique est représenté sur la figure 1.13. Dans le cas de CTM, i.e. s'il n'y pas de couplage entre la composition chimique de l'atmosphère et la dynamique, la boucle de rétroaction (flèche en trait plein sur la figure 1.13) des concentrations des espèces chimiques vers la dynamique n'est pas présente.

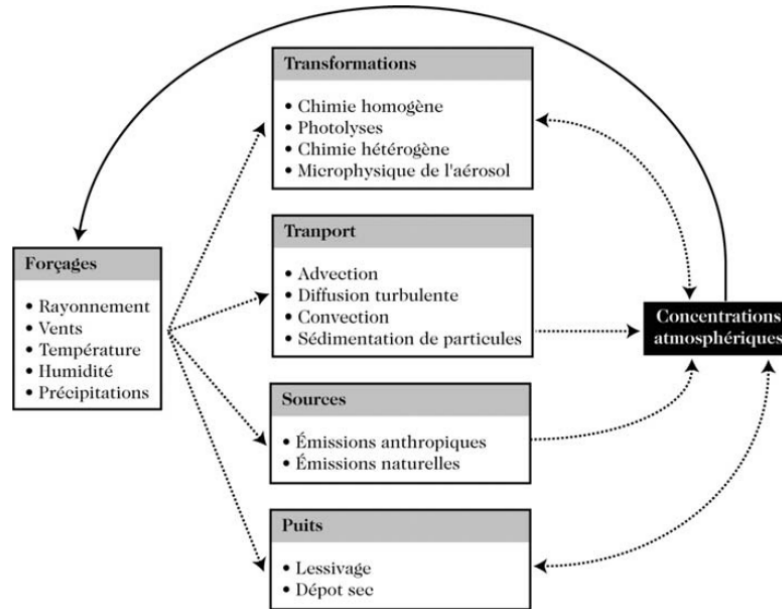


FIGURE 1.13 – Processus physiques représentés dans les CCMs, d'après Delmas et al. (2005)

Présentons succinctement ces différents processus et les problématiques de modélisation associées. Cette présentation n'est pas exhaustive, nous ne faisons ici qu'un panorama de quelques méthodes existantes.

1.4.2.1 Noyau Dynamique

Le noyau dynamique décrit l'évolution temporelle des variables dynamiques comme le vent, la température ou la pression. Plusieurs schémas numériques existent afin de résoudre les équations hydrostatiques primitives, elles peuvent être résolues dans l'espace physique ou dans l'espace spectral.

Dans l'espace physique, la plupart des modèles utilisent une grille tri-dimensionnelle (latitude, longitude et niveau d'altitude/pression). Ces grilles sont souvent rectangulaires, un traitement particulier est alors appliqué aux pôles. La coordonnée verticale peut être l'altitude ou la pression atmosphérique, mais elle pourra souvent être une coordonnée purement sigma (Phillips, 1957) ou hybride sigma-pression ou sigma-altitude. La coordonnée sigma est définie comme la pression

normalisée par sa valeur à la surface, on a alors $\sigma = 0$ à la surface et $\sigma = 1$ au sommet de l'atmosphère. Cette coordonnée a l'avantage d'épouser le relief aux basses altitudes.

La transformée spectrale (Holton, 1992) permet de résoudre l'équation hydrostatique de manière efficace. Néanmoins, le transport est difficilement soluble dans le domaine des fréquences, on reste alors généralement dans l'espace physique.

Les équations primitives sont les équations fondamentales résolues dans le noyau dynamique des modèles.

L'équation de continuité pose le principe de conservation de la masse.

$$\frac{\partial(\rho v)}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\vec{v} \rho) = 0 \quad (1.45)$$

ρ est la masse volumique du fluide, $\vec{v}$ la vitesse d'une particule de fluide.

L'équation de conservation de la quantité de mouvement est l'application du principe fondamental de la dynamique à un fluide :

$$\frac{D\vec{v}}{Dt} + \frac{1}{\rho} \vec{\nabla}(p) - g + 2\vec{\Omega} \times \vec{v} = \vec{F} \quad (1.46)$$

Où $\frac{D}{Dt}$ est la dérivée Lagrangienne, $\vec{F}$ l'ensemble des forces appliquées au fluide, $\vec{\Omega}$ la vitesse de rotation de la Terre, p la pression et g l'accélération gravitationnelle.

L'équation de conservation de la température potentielle est dérivée du premier principe de la thermodynamique :

$$\frac{D\theta}{Dt} = 0 \quad (1.47)$$

θ est la température potentielle, c'est la température que prendrait une particule atmosphérique si elle subissait une transformation adiabatique la ramenant à une pression de référence p_0 . Elle est définie par : $\theta = T \left(\frac{p_0}{p} \right)^{\frac{R}{C_p}}$, R étant la constante de Boltzmann et C_p la chaleur massique à pression constante. L'équation 1.47 est valide pour une transformation adiabatique, dans le cas contraire il faut prendre en compte les transferts de chaleur avec l'extérieur.

Dans la plupart des modèles globaux, on pose aussi l'hypothèse de l'équilibre hydrostatique, i.e. l'équilibre entre force de gravité et force de pression verticale :

$$-\rho g = \frac{dp}{dz} \quad (1.48)$$

1.4.2.2 Schéma Chimique

Afin de déterminer l'évolution temporelle et spatiale de la concentration des espèces chimiques il faut résoudre numériquement les équations différentielles décrivant les réactions entre espèces. La thermodynamique de l'atmosphère impacte sa composition ; les vents déplacent les molécules, et les vitesses de réactions sont affectées par la température.

L'évolution de la concentration C d'une espèce chimique i est décrite par l'équation de continuité (Shepherd, 2003), deux formulations sont possibles :

Formulation eulérienne :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\vec{v} \cdot \nabla C_i + P_i - L_i \quad (1.49)$$

Formulation lagrangienne :

$$\frac{dC_i}{dt} = P_i - L_i \quad (1.50)$$

Où P et L sont les termes de production et de perte. On considère ici que la diffusion moléculaire est négligeable.

Si l'on veut détailler l'équation 1.49, on peut aussi mettre en évidence l'émission (E) et le dépôt sec ou humide (D) :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\vec{v} \cdot \nabla C_i + P'_i - L'_i + E_i - D_i \quad (1.51)$$

P' et L' représentent alors production et destruction non liés à l'émission ou au dépôt.

On souhaite ainsi résoudre un système d'équations différentielles représentant l'évolution de chaque espèce. Les échelles de temps entre chaque espèce sont très variables, certaines ont des durées de vies longues, donc un terme de perte L petit, on peut citer le CH_4 ou N_2O par exemple. D'autres ont un L très élevé, donc une durée de vie très courte, on dit alors que le système à résoudre est raide. (Austin, 1991b)

Dans la pratique de modélisation de la chimie, on sépare l'advection des espèce chimiques de la production et perte que l'on considère locales. Dans le calcul des productions et pertes on sépare parfois l'émission et le dépôt de la production et perte due à des réactions chimiques.

On doit ainsi résoudre pour la chimie gazeuse des équations différentielles ordinaires (ODE) homogènes d'ordre un. Plusieurs schémas chimiques existent, ils doivent satisfaire plusieurs critères :

- Conservation de la masse : Tous les atomes ou groupe d'atomes doivent être conservés.
- Précision : La solution numérique doit être la plus précise possible. Si l'on suppose connaître le cas idéal, on doit s'en rapprocher le plus.
- Positivité : Les concentrations ne doivent pas être négatives, une concentration inférieure à zéro peut entraîner l'instabilité du schéma numérique.
- Flexibilité : Facilité d'ajout d'espèces chimiques.

Détaillons maintenant certaines méthodes de résolution.

1.4.2.2.1 Résolution explicite et implicite :

La résolution explicite évalue la concentration C d'une espèce i au temps t avec la concentration C de l'espèce au temps $(t-h)$, où h est le pas de temps de discrétisation choisi, la production et la perte au temps $(t-h)$: Soit :

$$C_{i,t} = C_{i,t-h} + h(P_{i,t-h} - L_{i,t-h}) \quad (1.52)$$

Dans le cas de la méthode explicite le pas h est dépendant de l'espèce chimique ayant la plus faible durée de vie. Si le pas de temps est trop élevé, le schéma de résolution devient instable. Cette méthode conserve la masse mais nécessite un pas de temps très court, son coût de calcul numérique devient ainsi élevé. Elle n'est donc que peu viable pour résoudre un système raide d'ODE chimique.

Dans le cas de la résolution implicite on évalue production et perte au temps t , on a alors :

$$C_{i,t} = C_{i,t-h} + h(P_{i,t} - L_{i,t}) \quad (1.53)$$

Pour évaluer P et L au temps t , on utilise l'équation 1.52, pour le premier pas de temps une méthode itérative explicite est toutefois nécessaire.

La résolution implicite conserve la masse si la méthode converge et a l'avantage d'être inconditionnellement stable. Néanmoins elle reste numériquement coûteuse, chaque pas de temps du modèle nécessitant plusieurs calculs afin d'assurer la convergence de la solution.

À partir de ces méthodes de résolution simple, de nombreuses méthodes de résolution plus complexes ont été développées afin d'améliorer précision, stabilité, rapidité de calcul ou flexibilité. On peut citer notamment la méthode de Gear (Gear, 1971) ; la dérivée est exprimée comme l'interpolation de concentrations à différents temps :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{C_{i,t} - aC_{i,t-h} - bC_{i,t-2h} - cC_{i,t-3h} \dots}{hd} \quad (1.54)$$

Où a , b , c et d sont des scalaires. Une fois le système d'ODE exprimé sous forme matricielle, des techniques de décompositions matricielles et de résolution de système sont utilisées. À chaque itération les valeurs précédentes sont recalculées et la convergence est vérifiée.

1.4.2.2.2 Méthode des familles.

Un schéma chimique satisfaisant parfaitement à tous les critères cités précédemment n'existe malheureusement pas. Certaines espèces peuvent se regrouper en famille car les réactions entre membre d'une même famille sont plus rapides que les changement de concentration de toute la famille (Crutzen (1971), Turco and Whitten (1974), Austin (1991a)). On peut citer par exemple les familles regroupant les oxygènes (O , $O(^1D)$, O_3 , NO_2 , ...) , azotes (NO , NO_2 , NO_3 , ...) et hydrogènes impair (OH , OH_2 , H_2O_2). Regrouper ces espèces chimiques par famille permet entre autre de réduire le nombre d'espèces chimiques à advecter (Douglass et al., 1989). On part donc du principe qu'au sein d'une même famille de gaz les atomes s'échangent beaucoup plus rapidement qu'en dehors de cette famille. On peut prendre en exemple le cycle de l'oxygène :



L'échange au sein de cette famille est très rapide mais la perte d'oxygène vers d'autres groupes de réaction est plus lent.

Pour résoudre le système, il faut en premier lieu calculer production et perte pour chaque individu de la famille. Suivons l'exemple de Jacobson (2005), soit deux familles :

$$[Fam1] = [A] + [B] + [C] \quad (1.59)$$

$$[Fam2] = [D] \quad (1.60)$$

Les crochets indiquant une concentration pour les espèces A, B, C et D. Si les réactions sont :



On calcule alors taux de production et perte :

$$\frac{d[A]}{dt} = -k_a[A] \quad (1.65)$$

$$\frac{d[B]}{dt} = k_a[A] - k_b[B] \quad (1.66)$$

$$\frac{d[C]}{dt} = k_b[B] - k_c[C] \quad (1.67)$$

$$\frac{d[D]}{dt} = k_c[C] \quad (1.68)$$

$$(1.69)$$

L'évolution temporelle des familles implique :

$$\frac{d[Fam1]}{dt} = \frac{d[A]}{dt} + \frac{d[B]}{dt} + \frac{d[C]}{dt} = -k_c[C] \quad (1.70)$$

$$\frac{d[Fam2]}{dt} = \frac{d[D]}{dt} = k_c[C] \quad (1.71)$$

$$(1.72)$$

On calcule alors l'avancement temporel de la famille, par exemple avec un schéma d'Euler explicite :

$$[Fam]_t = [Fam]_{t-h} + h \frac{d[Fam]_{t-h}}{dt} \quad (1.73)$$

Soit :

$$[Fam1]_t = [Fam1]_{t-h} - hk_c[C]_{t-h} \quad (1.74)$$

$$[Fam2]_t = [Fam2]_{t-h} + hk_c[C]_{t-h} \quad (1.75)$$

$$(1.76)$$

Dans le cas de la famille 2, on obtient quasi directement la concentration de l'espèce D, $[D] = hk_c[C]_{t-h}$.

Pour la famille 1, il faut partitionner la concentration totale de la famille entre ses différents membres.

$$[A]_t = \frac{[Fam1]_t}{1 + \frac{[B]_t}{[A]_t} + \frac{[C]_t}{[A]_t}} \quad (1.77)$$

$$[B]_t = [A]_t \frac{[B]_t}{[A]_t} \quad (1.78)$$

$$[C]_t = [A]_t \frac{[C]_t}{[A]_t} \quad (1.79)$$

On considère que chaque espèce dans la famille est à l'état de repos, soit :

$$\frac{d[B]}{dt} = k_a[A] - k_b[B] = 0 \quad (1.80)$$

$$\frac{d[C]}{dt} = k_b[B] - k_c[C] = 0 \quad (1.81)$$

$$(1.82)$$

On peut ainsi supposer que :

$$\frac{[B]_t}{[A]_t} \approx \frac{[B]}{[A]} = \frac{k_a}{k_b} \quad (1.83)$$

$$\frac{[C]_t}{[A]_t} \approx \frac{[C]}{[A]} = \frac{[C]}{[B]} \frac{[B]}{[A]} = \frac{k_a}{k_b} \frac{k_a}{k_b} = \frac{k_a}{k_c} \quad (1.84)$$

$$(1.85)$$

On obtient alors :

$$[A]_t = \frac{[Fam1]_t}{1 + \frac{k_a}{k_b} + \frac{k_a}{k_c}} \quad (1.86)$$

$$[B]_t = \frac{[Fam1]_t \frac{k_a}{k_b}}{1 + \frac{k_a}{k_b} + \frac{k_a}{k_c}} \quad (1.87)$$

$$[C]_t = \frac{[Fam1]_t \frac{k_a}{k_c}}{1 + \frac{k_a}{k_b} + \frac{k_a}{k_c}} \quad (1.88)$$

$$(1.89)$$

Pour partitionner on peut aussi linéariser le système d'ODE Jacobson (1994).

La méthode des familles est rapide, car on peut y utiliser des pas de temps longs, sa précision est correcte pour un système peu ou moyennement raide (Jacobson, 2005). La précision décroît en fonction de la raideur du système. La mise en place de cette méthode nécessite une validation rigoureuse pour chaque famille créée. La résolution explicite de la famille peut mener à des concentrations négatives, il faut alors réduire le pas temporel et refaire le calcul, cela peut augmenter le coût de calcul de cette méthode.

1.4.2.3 Transport

La distribution des espèce chimiques est déterminée par leur transport, le premier terme de l'équation de continuité (1.49). Différents schémas d'advections sont utilisés dans les CCMs ; le schéma des différences finies, des volume finis ou de développements en séries. Comme pour la résolution de la chimie plusieurs propriétés sont recherchées (Rasch and Williamson, 1990) :

- Précision
- Stabilité
- Conservation de la masse : Un traceur inerte, i.e. une particule n'interagissant dans aucune réaction, ne doit pas voir sa masse totale changée.
- Monotonie : Pas d'exacerbation des gradients spatiaux, un traceur distribué de manière homogène doit rester homogènement distribué, l'atmosphère tendant vers un état de mélange homogène.

Détaillons quelques schémas de résolution numérique.

1.4.2.3.1 Différences finies

Afin d'utiliser le schéma de différences finies on discrétise l'espace et le temps sur une grille. On approxime alors les dérivées partielles par des différences à droite, à gauche ou centrée.

$$\frac{\partial u}{\partial x} \approx \frac{\delta u_i}{\delta x_i} = \frac{u_{i+1} - u_{i-1}}{x_{i+1} - x_{i-1}} \quad (1.90)$$

$$\frac{\partial u}{\partial x} \approx \frac{\delta u_i}{\delta x_i} = \frac{u_{i+1} - u_i}{x_{i+1} - x_i} \quad (1.91)$$

$$\frac{\partial u}{\partial x} \approx \frac{\delta u_i}{\delta x_i} = \frac{u_i - u_{i-1}}{x_i - x_{i-1}} \quad (1.92)$$

$$(1.93)$$

Pour des dérivées d'ordre supérieur, le théorème de Taylor nous permet d'écrire la vitesse u au point x :

$$u_{x+\delta x} = u_x + \delta x \frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{1}{2} \delta x^2 \frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} + \dots \quad (1.94)$$

$$u_{x-\delta x} = u_x - \delta x \frac{\partial u_x}{\partial x} - \frac{1}{2} \delta x^2 \frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} + \dots \quad (1.95)$$

Si l'on combine alors les deux équations précédentes on obtient :

$$\frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} = \frac{u_{x+\delta x} - 2u_x + u_{x-\delta x}}{\delta x^2} + O(\delta x^2) \quad (1.96)$$

On peut obtenir de la même façon des approximations pour des dérivées d'ordre supérieur. À partir de ces différences finies des schémas plus complexes ont été développés.

Le schéma leapfrog évalue les variables au temps $t - \delta t$ à partir des temps t et $t - 2\delta t$. Ce dernier étant instable pour des équations non linéaires, il est généralement associé au schéma de Matsuno (Matsuno, 1966), un schéma explicite temporel. On peut citer quelques autres algorithmes : le schéma d'Heun, d'Adams-Bashforth ou encore de Runge-Kutta à différents ordres.

1.4.2.3.2 Volumes finis

La méthode des volumes finis consiste à discrétiser l'espace en volumes finis. Les équations aux dérivées partielles sont ensuite intégrées sur chaque volume. La valeur des variables de chaque volume est estimée comme la moyenne sur le volume. Les flux sont ensuite estimés et des échanges sont réalisés entre volumes adjacents. Cette méthode est détaillée plus précisément par (Durran, 2010).

1.4.2.3.3 Lagrangien

On peut adopter un point de vue lagrangien, i.e. le référentiel est alors en mouvement, on advecte et suit les différentes parcelles d'air, ce point de vue est toutefois peu adapté à la modélisation du climat car au cours du temps certaines parcelles peuvent s'accumuler et laisser des régions de l'atmosphère sans parcelle à advecter. L'existence des espèces est ainsi dépendante du pas temporel de résolution de la dynamique. La bonne discrétisation de l'équation de continuité y est importante pour réduire les sources d'erreurs.

1.4.2.3.4 Semi-Lagrangien

Afin de pallier aux problèmes associés au point de vue lagrangien, une méthode semi-lagrangienne est souvent utilisée (Williamson and Rasch, 1989), ici on évalue à chaque pas l'origine spatiale et temporelle de la variable. Par exemple supposons que l'on souhaite évaluer la concentration C d'un gaz au (x, t) . On l'approxime par la valeur de concentration de ce gaz au temps $(t - \delta t)$ et à une distance $\delta x = V\delta t$ où V est la vitesse du vent. Ensuite une étape d'interpolation est nécessaire car on ne tombe pas forcément sur un point de grille. L'avantage de cette méthode est qu'elle est stable pour des pas de temps longs ; néanmoins elle ne conserve pas la masse.

Certains modèles utilisent aussi des schémas de résolution différents pour les variables météorologiques et les traceurs chimiques. Les avantages peuvent être les suivants : L'advection spectrale et les différences finies conservent la masse. Les schémas semi-lagrangiens permettent des pas de temps longs (temps de calcul plus courts), de plus on obtient la rétrotrajectoire de toutes les espèces chimique grâce à un seul calcul.

1.4.2.4 Diffusion horizontale

La diffusion horizontale permet de refermer les équations dynamiques horizontales. Plusieurs schémas numériques existent représentant la diffusion. Même si leurs caractéristiques diffèrent, l'objectif est ici de réduire l'instabilité dynamique avec le moins d'impact sur la dynamique de grande échelle (Morgenstern et al., 2010).

1.4.2.5 Radiation

Le rayonnement interagissant avec l'atmosphère s'étend des ultraviolets du Soleil à l'infrarouge émis par la Terre. Des flux de chaleur sensible et latente participent au transfert de chaleur.

La chaleur sensible provient de l'énergie interne de l'air tandis que la chaleur latente vient de phénomènes comme la condensation ou l'évaporation.

Les processus radiatifs doivent aussi être traités dans un modèle numérique. Le schéma généralement utilisé est l'approximation "two-streams" détaillée précédemment. On peut alors calculer les coefficients de photolyse dans le spectre ultraviolet. Cette méthode est dite "online", il existe aussi une version offline consistant à utiliser des tables de références pour chaque réaction de photolyse en fonction de différentes variables comme la pression, l'angle solaire zénithal, la colonne totale d'ozone et la température (Lary and Pyle, 1991). La méthode offline est numériquement beaucoup moins coûteuse mais peut souffrir d'approximation, notamment si certaines variables sont considérées uniformes (albédo de surface, nuages, aérosols) (Chipperfield, 1999a).

1.4.2.6 Conditions aux bords

Les conditions aux bords sont aussi source de différenciation entre modèle numérique.

Au sommet de l'atmosphère, une éponge diffusive est parfois utilisée afin de réduire les réflexions des ondes atmosphériques. Cette éponge peut tout de même être source d'erreur dans les couches plus basses ((Shepherd et al., 1996), (Shepherd and Shaw, 2004)).

À la surface les sources de gaz, comme les gaz à effet de serre ou les ODS (Ozone Depleting Substance, gaz participant à la destruction de l'ozone) sont prescrites suivant les observations ou le scénario d'émission. Le dépôt sec est généralement défini comme le produit de la vitesse de déposition et de l'abondance d'un gaz. La vitesse de dépôt est spécifique pour chaque gaz et surface (Walcek and Taylor, 1986). Le dépôt humide est la récupération des gaz par les gouttelettes nuageuses, elle est soit résolue numériquement de manière explicite, soit représentée de la manière climatologique.

Des schémas représentant des flux de surface comme l'évaporation, ou les flux de chaleur sont nécessaires au fonctionnement du modèle, ils font partie de la gestion de la couche limite.

1.4.2.7 Nuages

Les nuages sont très difficiles à représenter dans un modèle et sont l'une des sources principales d'incertitudes (IPCC, 2013). Historiquement une climatologie de la distribution nuageuse a été en premier lieu implémentée dans les modèles (Holloway Jr and Manabe, 1971). Puis vint la paramétrisation diagnostique de nuages, en fonction de l'humidité relative, de la vitesse verticale (Wetherald and Manabe, 1988) mais aussi de la stabilité et de la convection (Slingo, 1987). Les schémas les plus récents incluent la partie liquide ou glace des nuages. De plus des schémas microphysiques sont implémentés représentant les changements de phase, l'érosion des nuages ou encore les précipitations internes.

1.4.2.8 Autres processus physico-chimiques

Parmi les processus physico-chimiques développés récemment on peut citer la végétation dynamique, le cycle du carbone, la dynamique des glaces ou les effets des aérosols sur la formation des nuages.

1.5 Changement climatique

Au cours de cette section nous décrirons les changements du système climatique et comment leurs évolutions affectent le rayonnement UV. On détaillera en premier lieu la place et l'évolution des paramètres affectant directement le rayonnement UV de surface, la distribution et la circulation de l'ozone sur la Terre, le rôle des nuages et des aérosols dans le système climatique. Nous discuterons ensuite de l'ensemble des changements associés à ces paramètres en lien avec le rayonnement UV. Nous décrirons ensuite brièvement les projections climatiques, comment ces exercices sont mis en place et quelles hypothèses sont réalisées sur l'évolution future des paramètres influençant le climat (émissions de gaz anthropiques ou naturelles, utilisation des terres, développement économique, ...). Nous terminerons par les premiers résultats publiés sur l'évolution du rayonnement UV au cours du 21ème siècle.

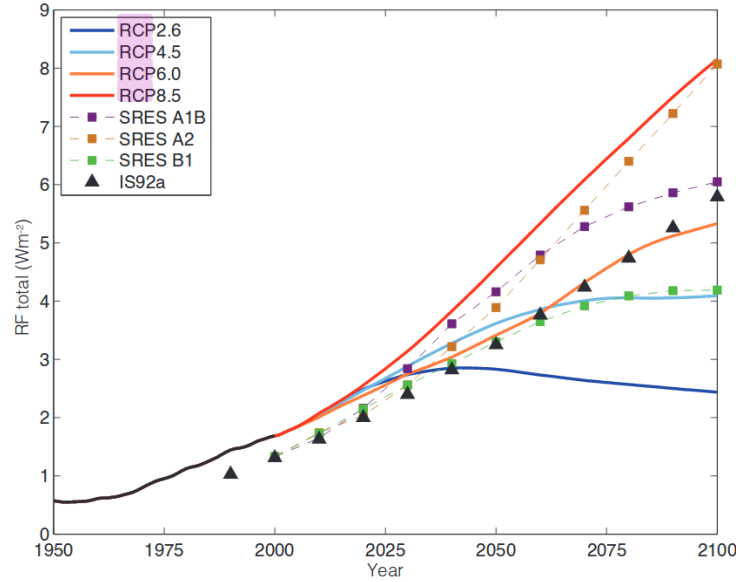
1.5.1 Projection climatique et scénario d'émission

Afin de réaliser des projections climatiques, on définit plusieurs scénarios possibles. Il est nécessaire de faire des hypothèses sur les activités humaines ou sur des événements naturels (éruptions volcaniques) pouvant influencer le climat dans le futur. Ces scénarios s'appuient sur les observations présentes et passées de l'atmosphère, de l'océan et de la biosphère. Ils projettent aussi plusieurs variables : démographie, produit intérieur brut, méthodes de productions d'énergie utilisées ou encore utilisation des terres (van Vuuren et al., 2011). Des projections d'émissions de GHGs sont alors dérivées de ces variables.

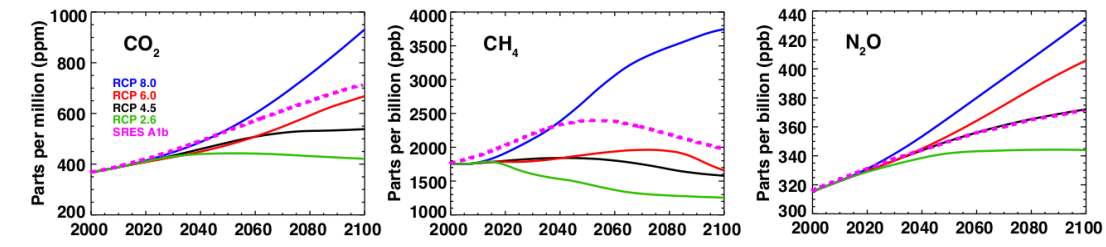
On peut aussi citer les scénarios socio-économiques (SRES) qui à travers des scénarios de développement économiques, démographiques, de productions d'énergies ou encore d'agriculture théorisent différents impacts sur les conditions environnementales futures.

Le dernier rapport de l'IPCC utilise les scénarios RCPs, scénarios de concentration représentative (Representative Concentration Pathways RCP). Ils ne proviennent plus de scénario socio-économiques de type SRES mais reposent sur le pic de stabilisation du forçage radiatif au cours du 21ème siècle. Quatre RCPs sont définis et utilisés ; RCP 2.6, RCP 4.5, RCP 6 et RCP8.5. Ils correspondent à un forçage radiatif de 2.6, 4.5, 6 ou 8.5 $W.m^{-2}$ en 2100 (Meinshausen et al., 2011). La figure 1.14, issue du dernier rapport de l'IPCC (IPCC, 2013), décrit l'évolution du forçage radiatif pour plusieurs scénarios.

FIGURE 1.14 – Évolution du forçage radiatif en fonction de différents scénarios. (IPCC, 2013)



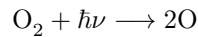
Ces scénarios présentent aussi des émissions différentes de GHGs qui mènent alors à différentes concentrations de GHGs dans l'atmosphère au cours du 21ème siècle (Figure 1.15). Le scénario SRES A1B est proche de RCP 6.0 pour le CO_2 et de RCP 4.5 pour le N_2O , pour le méthane il suit RCP 8.5 jusqu'en 2040 environ se rapproche de RCP 6.0. Plus le forçage radiatif attendu sera élevé (de 2.6 à 8.5 $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$), plus graduellement importante sera la concentration de CO_2 et N_2O entre les différents scénarios RCPs. Néanmoins pour le méthane, le scénario RCP 8.5 présente une concentration très importante jusqu'à la fin du 21ème siècle.

FIGURE 1.15 – Concentrations atmosphériques de CO_2 , CH_4 et N_2O pour différents scénarios. (WMO, 2014)

Des expériences plus théoriques sont aussi utilisées, comme par exemple un doublement ou quadruplement des niveaux de concentrations du CO_2 dans l'atmosphère (Covey et al., 2003). Ces dernières permettent de comprendre la sensibilité du climat à différentes variables.

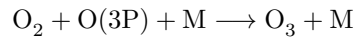
1.5.2 Ozone : passé, présent et futur

L'ozone est une molécule considérée comme polluante dans la troposphère, l'exposition à l'ozone engendre plusieurs problèmes respiratoires ; asthme, inflammation, aggravation d'autres maladies respiratoires. L'ozone est toutefois indispensable à la vie sur Terre car c'est l'un des constituants absorbant le plus le rayonnement UV lorsqu'il se trouve dans la stratosphère. Bienheureusement la majeure partie de l'ozone se trouve dans la stratosphère. La production de l'ozone fait partie d'un cycle, car il y a une constante conversion entre les différentes molécules d'oxygène. Ce cycle a été décrit en 1930 par Chapman. Une molécule de dioxygène (O_2) doit tout d'abord être séparée en deux atomes d'oxygène (O) par réaction de photolyse :

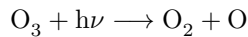


Où h est la constante de Planck et ν la fréquence du rayonnement UV permettant la photolyse.

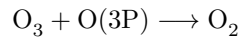
La réaction permettant ensuite la production de l'ozone fait intervenir une molécule de dioxygène, un atome d'oxygène ainsi qu'une troisième molécule M (généralement le diazote (N_2) ou le dioxygène) :



La molécule d'ozone peut ensuite être une nouvelle fois séparée par photolyse et les molécules de dioxygène et d'oxygène retournent alors dans le cycle :



et



La stratosphère tropicale est le lieu principal de production de l'ozone dans l'atmosphère.

Intéressons nous désormais à la distribution de l'ozone présentée sur la figure 1.16 pour Mars 2004 à partir des observations du satellite OSIRIS (Shaw and Shepherd, 2008). On peut remarquer que bien que l'ozone soit produit dans la stratosphère tropicale sa concentration maximal se retrouve aux hautes latitudes à une altitude d'environ 20km. Afin de comprendre cette distribution il faut s'intéresser à la circulation en moyenne atmosphère (stratosphère et mésosphère).

FIGURE 1.16 – Distribution de l’ozone stratosphérique moyenné sur les longitudes. Mesures réalisées par l’instrument OSIRIS embarqué sur le satellite ODIN, en Mars 2004, résultat publié par (Shaw and Shepherd, 2008)

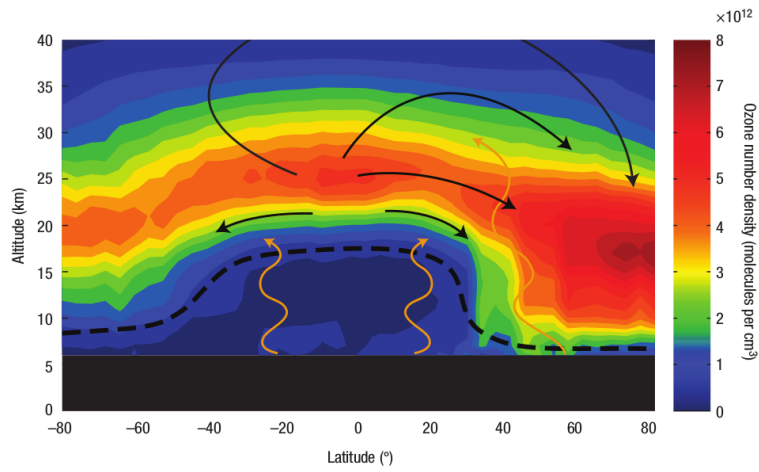
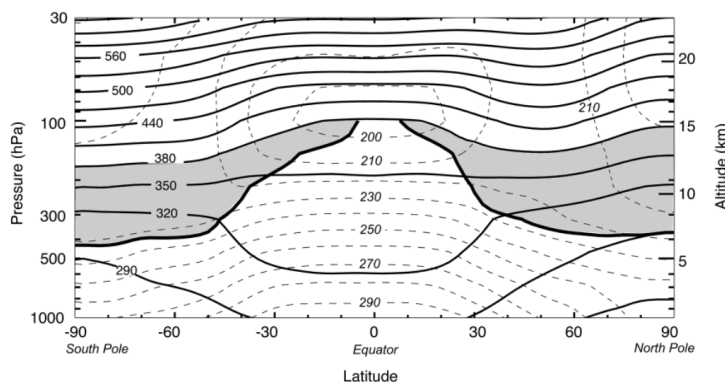


FIGURE 1.17 – Moyenne annuelle zonale de la température (tiret) et de la température potentielle (trait plein) en Kelvin. (Shepherd, 2003)



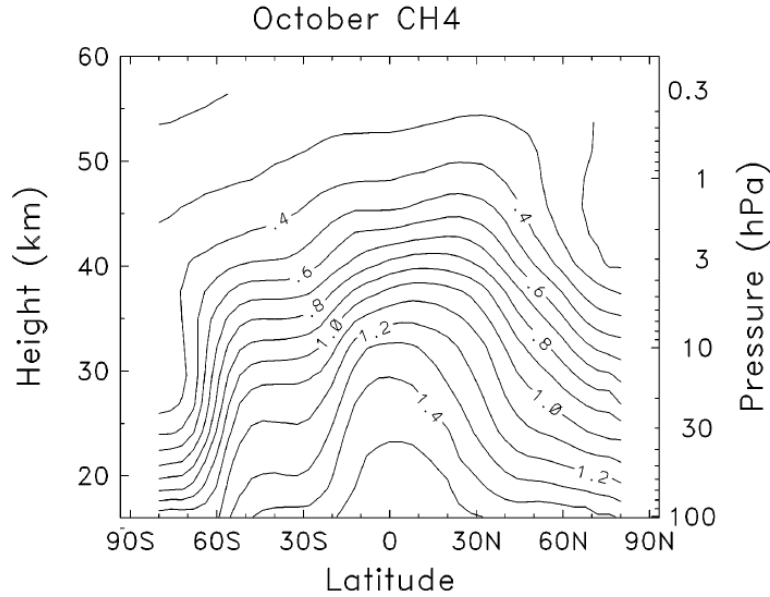
La figure 1.17 présente les températures de l'atmosphère en moyenne zonale et annuelle. Dû à la position et la géométrie de la Terre par rapport au Soleil, les tropiques possèdent les températures de surface les plus élevées. Le chauffage y est alors le plus important. La bande tropicale affiche ainsi une convection très forte pouvant atteindre de très hautes altitudes et on y trouve aussi la position la plus haute de la tropopause ($\approx 16\text{km}$). Cette hauteur très élevée implique aussi que la tropopause tropicale est une des régions les plus froides de l'atmosphère. Sa température est plus froide qu'aux régions extratropicales. Entre environ 7 et 16 km la convection est très forte, le mélange vertical important et la forte présence de nuages, de précipitations et d'aérosol en font un lieu important pour la chimie de l'atmosphère.

Juste au-dessus, dans la moyenne atmosphère, on a affaire à une région très stratifiée, les surfaces isentropiques y sont quasi-horizontales, et par définition tout mouvement adiabatique ne peut se faire qu'au sein de ces surfaces. Ici les molécules peuvent être isolées de la surface de la Terre pendant des années, il n'y a pas de convection ni d'instabilité barocline, cette région devrait donc être dynamiquement très stable et ne dépendre que de l'équilibre radiatif entre rayonnement solaire et espèce chimique.

Intéressons-nous momentanément à une autre molécule, le CH_4 . Cette dernière permet de mesurer l'âge de l'air. Ce n'est pas la seule, d'autres traceurs (N_2O , SF_6) permettent de déterminer l'âge de l'air (Engel et al., 2002). En effet sa concentration la plus élevée se retrouve à son entrée dans la stratosphère au niveau de la tropopause équatoriale. Suite à son entrée, cette molécule entre en oxydation et sa concentration chute au cours du temps. La figure 1.18 présente la variation latitudinale et altitudinale de la concentration de CH_4 en partie par millions. La concentration est la plus élevée à l'équateur et diminue vers les pôles. On peut en extrapoler une montée de masse d'air aux tropiques et une descente en dehors.

La présence de cette circulation s'explique par le déferlement des ondes de Rossby. Si une particule fluide effectue un déplacement méridien vers une région où la vorticité potentielle est plus élevée, alors la conservation de la vorticité potentielle impose que la vorticité relative de la particule décroît. Une force de rappel tend à ramener la particule vers sa latitude initiale. Cette perturbation est à l'origine des ondes de Rossby. Ces ondes se propagent sur la verticale et déferlent lorsque le déplacement méridien de la particule est égal à la longueur d'onde des ondes ou si un niveau critique apparaît (inversion du sens du vent zonal). Le déplacement d'une particule fluide peut avoir pour origine la topographie ou des contrastes thermiques entre terre

FIGURE 1.18 – Coupe latitude et hauteur du rapport de mélange du CH_4 pour le mois d'Octobre. (Shepherd, 2003)



et mer. Le déplacement vertical des ondes de Rossby ne peut se faire que dans un écoulement zonal vers l'ouest, ces ondes ne pouvant ainsi que se propager dans l'hémisphère d'été. Les terres étant plus présentes dans l'hémisphère nord, l'activité ondulatoire y est aussi plus importante. Le déferlement dans la stratosphère extratropicale des ondes de Rossby induit une circulation méridienne vers les pôles. La conservation de la masse impose alors un mouvement de descente dans la région extratropicale et d'ascension aux tropiques. C'est l'origine de la circulation de Brewer-Dobson.

Étant dépendante du déferlement et donc de la propagation des ondes de Rossby sur la verticale, la circulation de Brewer-Dobson est aussi contrainte à l'hémisphère d'été. Cette circulation a été observée pour la première fois par Dobson (1956). Il a remarqué des concentrations élevées d'ozone en Arctique et plus faible aux tropiques tout en soutenant l'hypothèse que l'ozone se formait aux tropiques. Ce même résultat fût appuyé par Brewer (1949) à partir d'observations de la vapeur d'eau. L'approche théorique permit ensuite de confirmer l'existence de cette circulation avec l'utilisation de la moyenne transformée Eulerienne (Andrews and McIntyre, 1976). Plusieurs développements de cette théorie (Dunkerton, 1978; Haynes and McIntyre, 1987) ont mené aujourd'hui à la compréhension de cette circulation et des mécanismes qui l'engendrent Plumb (2002).

1.5.2.1 Evolution passée de l'ozone dans l'atmosphère

Dans les années 1970, un intérêt grandissant a été porté sur la couche d'ozone. En effet, l'émission importante de composés halogènes a mené à une forte baisse des niveaux d'ozone. Non-toxique et non inflammable, ils ont eu de nombreuses utilisations industrielles en tant que solvant ou réfrigérant par exemple. Leur pic d'utilisation se situe dans les années 1980. Bien que ce soit des composés inertes et peu dangereux en troposphère et basse stratosphère, ils subissent

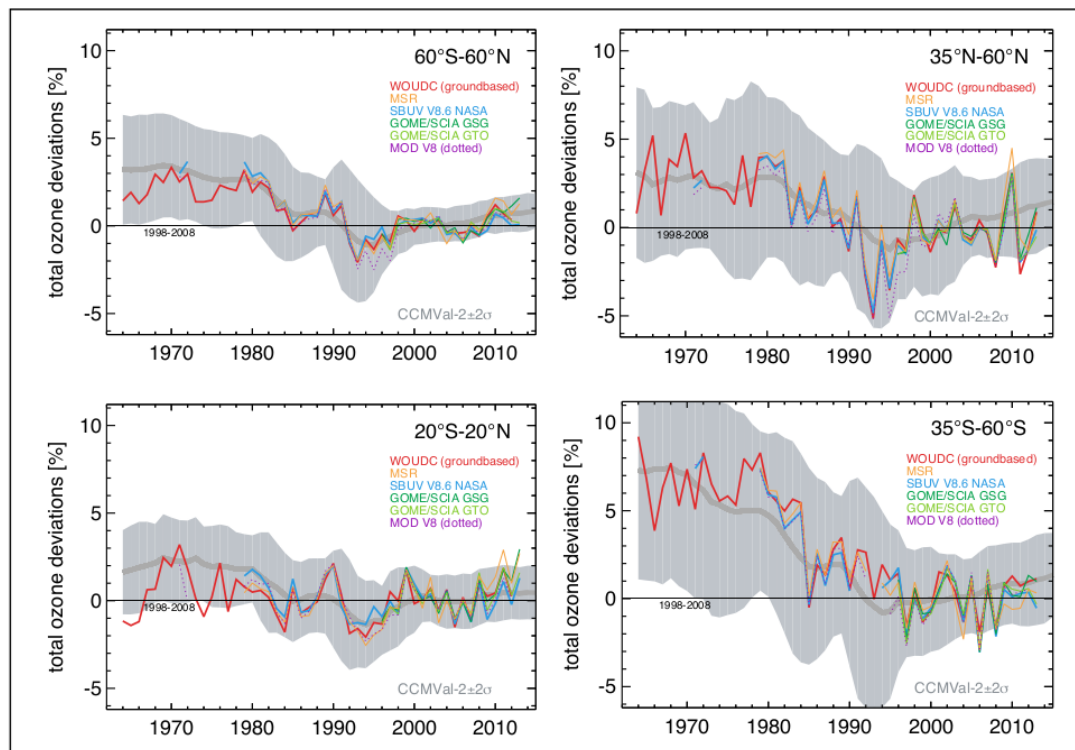
de nombreuses transformations à plus hautes altitudes et deviennent une source majeure de chlore (Molina and Rowland, 1974; Farman et al., 1985; Solomon, 1999). Celui-ci participe activement à la destruction de l’ozone.

La molécule de chlore possède un effet catalytique et un seul atome de chlore peut détruire jusqu’à 100000 molécules d’ozone, plus particulièrement dans les conditions froides des pôles. Une chute importante des niveaux d’ozone a été observée lors de l’hiver austral, jusqu’à moins 120 à 140 DU, soit une baisse de presque 35%. La découverte du trou d’ozone fût le déclenchement du protocole de Montréal, un traité international limitant la production de substances destructives d’ozone (ozone depleting substances ODS) composés de chlore et brome. Le pic de concentration de CFCs a été observé en 1997-1998, à environ 3.6 partie par milliard (ppbv). Il décroît depuis de manière assez lente, la durée de vie de ses substances étant de plusieurs décennies (Ko2, 2013).

Le trou d’ozone en Antarctique est toujours aujourd’hui observé à chaque hiver austral. L’absence de chlore dans la stratosphère antarctique n’est prévue que pour les années 2050. En Arctique, des chutes d’ozone sont aussi observées. Le niveau le plus bas fut observé en 2010 (Manney et al., 2011).

La figure 1.19 présente la moyenne annuelle des anomalies de la colonne totale d’ozone depuis 1964 pour quatre régions : de 60°S à 60°N, moyennes latitudes des deux hémisphères et tropiques. L’anomalie est calculée à partir de la moyenne sur la période 1998-2008. Les valeurs proviennent de modèles issus de l’exercice CCMVal-2 en violet (Eyring et al., 2010). En rouge sont les observations issues du réseau WUDC. En bleu, vert et vert clair, les observations satellites provenant respectivement de SBUV v8.6 (McPeters et al., 2013), GSG (GOME/SCIAMACHY/GOME2 (Chiou et al., 2014), (Lerot et al., 2014)) et une réanalyse TOMS, SBUV, GOME, SCIAMACHY et OMI (van der A et al., 2010). En ligne grise et en fond gris sont la moyenne multimodel et la dispersion à $\pm 2\sigma$. Comme il est discuté dans le dernier rapport WMO sur l’ozone, aux moyennes latitudes et hautes latitudes, on peut observer une chute importante des niveaux d’ozone jusqu’aux années 1990 où l’on observe une certaine stabilisation.

FIGURE 1.19 – Anomalies moyennes annuelles de la colonne totale d’ozone depuis les années 1960. Les anomalies sont calculées à partir de la moyenne de 1998 à 2008. [Ozone Assessment, 2014, Chapitre 2, Figure 2-2]



1.5.2.2 Récupération de l’ozone aujourd’hui

Suite à la mise en place du protocole de Montréal on s’attend aujourd’hui à observer un retour des niveaux d’ozones à ceux de 1960 ou 1980. La confirmation de ce retour reste un challenge pour la communauté scientifique. Le climat étant un système complexe emprunt de nombreuses rétroactions, la variabilité de l’ozone ne dépend pas uniquement des ODS, elle est aussi influencée par de nombreux facteurs comme la concentration de GHGs, l’émission d’aérosols volcaniques, la dynamique atmosphérique ou la variabilité solaire.

La régression multilinéaire est utilisée afin de relier changement de concentrations d’ODS ou de GHGs et changement de concentrations d’ozone. Le rapport WMO (2011) utilise les simulations issues de l’exercice CCMVal-2 afin de distinguer l’effet des ODS de l’effet de l’augmentation des GHG. Plusieurs études (Li et al., 2009; Waugh et al., 2009; Plummer et al., 2010; Fleming et al., 2011) ont montré que les changements récents de colonne totale d’ozone étaient dominés par les changements de concentrations d’ODS.

1.5.2.3 Évolution future

La question de l'évolution de l'ozone au cours du 21ème siècle est toujours importante. Les exercices comme CCMVal-2 (Eyring et al., 2010) ont permis une estimation du retour des colonnes d'ozone aux niveaux de 1980. Sur l'ensemble du globe la moyenne des modèles estime un retour moyen aux niveaux de 1980 dans les années 2017-2038 (WMO, 2014). Pour les tropiques un retour moyen dans les années 2040 est attendu tandis que 2021-2026 et 2030-2040 sont les années attendues pour les moyennes latitudes nord et sud (WMO, 2014).

Malgré la baisse des ODSs et une récupération de l'ozone, le changement climatique affecte l'évolution de l'ozone au cours de la deuxième moitié du 21ème siècle. La circulation de Brewer-Dobson semble être impactée, Rind et al. (1990) ont montré qu'un doublement de CO_2 sur trois ans de simulations d'un GCM résultait en une circulation moyenne résiduelle plus importante. Ces conclusions ont été confirmées plus récemment par Butchart (2014) et Hardiman et al. (2014). Le réchauffement troposphérique dû aux GHGs renforce et déplace le jet subtropical en basse stratosphère. Les ondes de Rossby déferlent alors à plus hautes altitudes et plus près de l'équateur, ce qui conduit au renforcement de la BDC ((Garcia and Randel, 2008), (Oberländer-Hayn et al., 2016)). La majorité des simulations font alors état d'une augmentation de la remontée d'air dans la basse stratosphère tropicale. Les tendances sont moins claires pour la moyenne et haute stratosphère (WMO, 2014). Cette remontée aux tropiques serait contre balancée par une descente plus rapide en dehors des tropiques ((Hardiman et al., 2014), (Palmeiro et al., 2014), (Lin and Fu, 2013)). Néanmoins, comme discuté précédemment dans l'introduction, ces résultats issues de simulations ne sont pas encore confirmés par les observations (Solomon et al., 2012; WMO, 2014). L'intensité de la BDC n'est mesurable qu'à travers des proxys (âge de l'air, distribution de constituants chimiques, ...). Les tendances obtenues via ces proxys sont très faibles et difficiles à distinguer significativement de la variabilité naturelle (Forster et al., 2011). Il est encore donc difficile de se prononcer sur l'évolution de la BDC.

1.5.3 Nuages

Les nuages ont aussi un rôle dans le forçage radiatif, l'absorption et l'émission du rayonnement UV et IR, le déplacement de chaleur et le transport d'espèce chimiques et d'aérosols. Les rétroactions entre nuages et climat sont nombreuses. Des changements de couvertures ou de caractéristiques de nuages auront un impact sur le climat et ce changement aura aussi une rétroaction sur les nuages.

Les nuages de haute altitude, comme les cirrus, sont très transparents aux UVs mais absorbent le rayonnement IR. Suite à cette absorption, ils émettent dans l'IR vers l'espace et vers la surface de la Terre. Comme ils sont de faible température, l'énergie émise vers l'espace est plus faible que si ces nuages étaient absents. La portion renvoyée vers le sol s'ajoute donc à celle des courtes longueurs d'onde. Ces nuages réchauffent donc l'atmosphère et la surface de la Terre et participent à l'effet de serre.

Les nuages bas, comme les stratocumulus, sont épais et peu transparents, ils réduisent la réception du rayonnement UV émis par le soleil à la surface. Toutefois ils ont un effet plus faible sur le rayonnement IR car ils sont proche de la surface, ils ont donc une température proche de la celle de la surface et émettent vers l'espace à la même intensité. Ces nuages refroidissent la surface (Boucher et al., 2013).

Selon Bais et al. (2011), lors de la seconde partie du 21ème siècle, les changements de rayonnement UV seront dépendants des changements de l'ozone et des nuages (Voir section 1.4.1.1). Les changements dus aux nuages sont dépendants du scénario climatique utilisé (Watanabe et al., 2011). Une baisse attendue du rayonnement UV dans les hautes latitudes pourrait être attribuée à une augmentation de la nébulosité (Liu et al., 2012) tandis qu'une augmentation de l'UV aux tropiques serait due à une baisse de nébulosité ainsi qu'à l'accélération de la circulation de Brewer-Dobson ((Heglin and Shepherd, 2009), (Butchart, 2014)).

Ces conclusions sont toutefois incertaines. En effet l'évolution future de la couverture nuageuse ou des caractéristiques des nuages reste difficile à prévoir (Boucher et al., 2013). De plus, une augmentation de la couverture nuageuse peut avoir un effet négatif (Bais et al., 2015a) mais aussi un effet positif sur le rayonnement UV dans certains cas de nébulosité fractionnée (Palancar et al., 2011).

1.5.4 Aérosols

De même que pour les nuages, l'influence des aérosols sur le climat, notamment sur le forçage radiatif, n'est pas encore pleinement comprise. De nombreuses études se penchent aujourd'hui sur ce problème mais l'amplitude et le signe de la réponse varie.

Si l'on considère les aérosols d'origines naturelles, la rétroaction sur le forçage radiatif est de l'ordre de $\pm 0.1 \text{ W.m}^{-2}\text{C}^{-1}$ (Carslaw et al., 2010). L'effet des aérosols d'origine anthropique est lui encore débattu. Liao et al. (2009) ont montré une importante rétroaction, de 0.04 à 0.15 $\text{W.m}^{-2}\text{C}^{-1}$. Bellouin et al. (2011) ont trouvé une rétroaction négative variant de -0.08 à -0.02 $\text{W.m}^{-2}\text{C}^{-1}$. Pour les aérosols stratosphériques, Solomon et al. (2011) ont obtenu un forçage radiatif de -0.1 W.m^{-2} . Le dernier rapport de l'IPCC (Boucher et al., 2013) considère une faible rétroaction pour un indicateur de confiance assez bas. Ces valeurs font état d'une valeur moyenne pour le globe : à l'échelle régionale, l'effet des aérosols peut être plus important (Wang et al., 2010).

La contribution des aérosols peut aussi intervenir à travers leur interaction avec les nuages. En effet, les aérosols impactent les propriétés radiatives des nuages, leur intensité ainsi que les précipitations (Rosenfeld et al., 2008). La compréhension de cette interaction reste encore aujourd'hui un challenge.

1.5.5 Changement climatique et rayonnement ultraviolet

Les indicateurs du changement climatique sont nombreux ; la température de surface, les précipitations, les concentrations de gaz à effet de serre, le contenu atmosphérique en vapeur d'eau, l'étendue des glaces, le niveau de la mer ou encore la fréquence d'événements extrêmes (IPCC, 2013). Depuis la signature du protocole de Montréal régulant l'émission de substance destructrices d'ozone (ODS), et même si la phase de récupération des niveaux d'ozone a été engagée (Voir section 1.4.2), l'évolution future du rayonnement UV reste incertaine.

D'une part le rayonnement UV joue un rôle pour la composition de l'atmosphère. D'autre part les changements liés aux nuages, aux aérosols, à l'ozone ou à l'albédo de surface affectent directement le rayonnement UV au sol. La chimie de l'atmosphère et le climat sont couplés. Les GHGs sont pour la plupart éliminés par des processus photochimiques, à l'exception de CO_2

et H_2O . La concentration d'OH dépend de la concentration de NO_x , CH_4 , CO , O_3 , H_2O et du rayonnement UV atteignant la troposphère (Delmas et al., 2005). Cette dernière dépendance est importante car OH est le principal oxydant de l'atmosphère et participe à la destruction de GHGs comme le CH_4 (Lelieveld et al., 2004). Par exemple, dans le cas d'une augmentation de concentration du CH_4 , il y a diminution de la concentration d'OH et ainsi la durée du vie du CH_4 dans l'atmosphère augmente. Ce dernier a alors un effet important sur le forçage radiatif et donc sur le changement climatique (Forster et al., 2007).

De plus des molécules comme N_2O et CH_4 une fois arrivées en stratosphère réagissent et entraînent la formation de NO et d' H_2O qui participent à la destruction de l'ozone. La température de la stratosphère dépend d'une part du réchauffement radiatif lors de l'absorption par O_3 du rayonnement UV, et d'autre part de l'absorption du proche-infrarouge par le CO_2 et l' H_2O .

L'augmentation du CO_2 dans l'atmosphère induit un réchauffement dans la troposphère. En effet cette molécule augmente l'émission du rayonnement IR et participe pleinement à l'effet de serre dans la troposphère. Néanmoins dans la stratosphère l'émission des grandes longueurs d'ondes vers l'espace est aussi plus importante, il y a alors un effet de refroidissement (Manabe and Wetherald, 1975). Ainsi alors que les températures à la surface augmentent, la température en haute stratosphère diminue (Thompson and Solomon, 2009). Un refroidissement de la stratosphère ralentit les réactions de destructions en phase gazeuse et réduit alors la perte de l'ozone. La présence d'ODS dans la stratosphère réduit les niveaux d'ozone. Le rayonnement UV est alors moins absorbé et mène à un refroidissement de la stratosphère, et donc une diminution des réactions de destructions. En réalité ces deux phénomènes ne peuvent être considérés séparément. Il est d'ailleurs prévu que le refroidissement induit par le CO_2 permette un retour plus rapide de l'ozone que la simple réduction de l'émission des composés chlorés (WMO, 2014).

Comme vu précédemment, l'augmentation des GHGs entraînent aussi une possible accélération de la BDC et ainsi une redistribution de l'ozone. Le changement climatique affectent aussi les nuages, aérosols et albédo de surface. Le rayonnement UV est donc dépendant de l'évolution future de ces différents éléments et des nombreuses rétroactions existantes.

1.5.6 Les exercices d'intercomparaison CCMval, ACCMIP, CCMi et AerChemMIP

Le projet SPARC (Stratospheric Processes And their Role in Climate) dépend du World Climate Research Programme (WCRP) et a initié la réalisation de plusieurs exercices d'intercomparaison entre les modèles de Chimie-Climat.

Le premier exercice, Chemistry-Climate Model Validation (CCMVal) (Eyring et al., 2008) avait pour objectif d'améliorer la connaissance des CCMs et GCMs. Plusieurs expériences types sont alors réalisés par différentes équipes représentant différents modèles. L'inter-comparaison des résultats permet l'analyse et l'évaluation des modèles. CCMVal a servi à la réalisation d'un des chapitres du rapport de la World Meteorological Organisation (WMO) sur l'évolution de l'ozone (WMO Ozone Assesment), les autres chapitres intégrant observations, évaluations d'ODS, etc ...

ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project) est l'exercice suivant CCMVal (Lamarque et al., 2013), cet exercice centré sur la troposphère a participé à la réalisation du 5ème rapport de l'Intergovernmental Panel On Climate Change (IPCC).

CCMI-Phase I (Chemistry-Climate Model Initiative) (Eyring et al., 2013) est le dernier

exercice en date et se place dans le cadre de la communauté CCMI, l'attention a ici été portée sur le couplage stratosphère-troposphère et la réponse de l'atmosphère à l'océan. Suite à CCMI, un nouvel exercice d'intercomparaison est en cours de réalisation : AerChemMIP (Aerosol Chemistry Model Intercomparison Project) (Collins et al., 2017a). À partir des expertises récentes acquises au cours des projets AEROCOM (Aerosol Comparisons between Observations and Models), CCMI et ACCMIP, AerChemMIP a pour objectif de quantifier l'impact des aérosols et de la chimie sur le climat et la qualité de l'air.

1.5.7 Conclusion et perspectives sur l'évolution du Rayonnement UV

Les premières projections de rayonnement UV pour le 21ème siècle indiquent une première phase pilotée par la récupération de l'ozone suivie d'une seconde pilotée par les changements de couverture nuageuse et de transport de l'ozone attribué aux GHGs (Bais et al., 2015a). Toujours selon l'étude de Bais et al. (2015a), l'irradiance érythémateuse montre une baisse de 2 à 10 % aux moyennes latitudes en 2050 pour ensuite en 2100 rester en dessous des niveaux de 1960. Dans les hautes latitudes une baisse de 20% et de 50% est observée respectivement pour l'hémisphère nord et sud. Cette chute continuerait jusqu'à la fin du 21ème siècle. Dans les tropiques une augmentation de 3 à 8% de l'UV érythémateux est attendue pour la fin du siècle. Celle-ci est la conséquence d'une réduction de la couverture nuageuse et des plus faibles niveaux d'ozone causés par l'augmentation de la concentration des GHGs.

CHAPITRE 2

Modélisation du Rayonnement UV à la Réunion.

Sommaire

2.1	Résumé de l'article	65
2.2	Article	68

Ce chapitre s'appuie sur l'article de (Lamy et al., 2018) publié dans la revue *Atmospheric Chemistry and Physics*. La section 2.1 résume l'article en français, la section 2.2 présente l'article tel qu'il a été publié en anglais.

2.1 Résumé de l'article

La première problématique de cette thèse a été l'évaluation du rayonnement Ultraviolet pour un site tropical, la Réunion, à partir de données prises au sol mais aussi de données satellites.

L'objet de cet article est le rayonnement UV érythémateux pour un site se trouvant dans les tropiques sud. Malgré le fait qu'on observe pour cette région un rayonnement UV érythémateux très élevé, peu de recherches ont été effectuées précédemment à ces latitudes dans l'hémisphère sud. Cet étude présente d'une part les méthodes de filtrage ciel-clair appliquées à un site tropical ayant un cycle diurne et saisonnier de nébulosité caractéristique. D'autre part, la modélisation de l'UVI est examinée à travers une étude de sensibilité d'un modèle de transfert radiatif (TUV) aux paramètres d'entrées. Elle se termine par une validation de la modélisation de l'UVI, les différents cas de modélisation sont comparés à des observations d'UVI en ciel clair.

Comme il a été explicité dans la section 1.1, le rayonnement ultraviolet dépend de nombreux facteurs géométriques (angle solaire zénithal, distance Terre-Soleil, intensité du rayonnement solaire au sommet de l'atmosphère ...) et physico-chimiques (absorption par l'ozone, diffusion des nuages, des aérosols, albédo de la surface,...). Il faut ainsi prendre en compte ces nombreux paramètres si l'on souhaite modéliser précisément le rayonnement UV. Le site de La Réunion est un site idéal pour réaliser cet exercice de modélisation, puisque quasiment toutes les mesures nécessaires à une étude sur la modélisation de l'UV sont réunies (voir section 1.1.3 pour plus de détails sur l'instrumentation). On peut noter que la majorité des instruments de mesure de l'OPAR (Observatoire de Physique de l'Atmosphère de la Réunion) sont labélisés et font partie de réseau internationaux, ce qui garanti la qualité des mesures.

La première section de l'article présente plus en détail les données utilisées lors de cette étude. Le rayonnement UV y est mesuré grâce à un spectroradiomètre Bentham DTMc300 de 0.5nm de résolution. Des mesures de colonne totale d'ozone sont effectuées quotidiennement grâce au spectroradiomètre SAOZ, ce dernier mesure aussi la colonne totale de NO₂. Ces deux instruments font partie du réseau NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change). Des radiosondages hebdomadaires permettent la mesure de la distribution verticale de l'ozone et de température, ces radiosondages font partie du réseau Southern Hemisphere ADditional OZonesondes (SHADOZ) (Thompson et al. (2003), Witte et al. (2017)) et NDACC. Un photomètre CIMEL effectue des mesures de l'épaisseur optique d'aérosol et du coefficient d'Ångström toutes les 20 minutes environ. Le coefficient d'Ångström (α) décrit la dépendance de l'AOD à la longueur d'onde λ , $\frac{AOD_\lambda}{AOD_{\lambda_0}} = (\frac{\lambda}{\lambda_0})^{-\alpha}$. La seule mesure indirectement prise ici est celle concernant la couverture nuageuse, pour la période d'études, seuls des rapports d'observateurs horaires étaient disponibles à une dizaine de kilomètres du site du Moufia. Cette mesure a été complétée à l'aide de mesures réalisées toutes les minutes de flux global et diffus au Moufia. De plus des mesures satellitaires de colonne totale d'ozone sont utilisées, elles proviennent des instruments OMI (Ozone Monitoring Instrument) et SBUV (Solar Backscatter Ultraviolet Radiometer).

L'absence de mesures précises de couverture nuageuse nous a poussés à réaliser notre étude pour le ciel clair. La modélisation du rayonnement UV est réalisée en ciel clair. Afin de valider

cette modélisation, il est nécessaire de filtrer les mesures d'UV pour éliminer les cas de couverture nuageuse. La seconde section de l'article porte sur la méthode de filtrage ciel-clair.

À partir des rapports d'observateurs délivrés en octas, $\frac{0}{8}$ définissant un ciel complètement dégagé et $\frac{8}{8}$ un ciel complètement couvert, les données de rayonnements sont filtrées et nommées dans l'article UV_{SYNOPSIS} . Toutes les mesures prises pour une nébulosité inférieure ou égale à $\frac{1}{8}$ sont considérées ciel-clair. Les mesures de flux global et diffus permettent aussi de dériver la couverture nuageuse, on utilise ici l'algorithme de Long and Ackerman (2000) afin d'obtenir la couverture nuageuse. Cette nouvelle indication de couverture nuageuse permet un filtrage du rayonnement UV similaire à UV_{SYNOPSIS} , on obtient alors une mesure ciel clair nommé UV_{SWF} .

Ces deux variables, UV_{SYNOPSIS} et UV_{SWF} , sont comparées entre elles et analysées au regard du cycle journalier de l'indice UVI (Figure 1) pour plusieurs jours. UV_{SWF} apparaît alors plus consistant et sensible à l'évolution de la couverture nuageuse, pour la suite cette mesure est ainsi retenue comme mesure d'UV ciel-clair. Une description de la répartition journalière et mensuelle des mesures d'UV en tout temps et en temps ciel clair est ensuite effectuée. Moins de mesures ciel-clair sont disponibles pour l'été austral, en effet cette période correspond à la saison des pluies pour le site étudié. De même, la topographie du site et le flux d'alizés dessinent un cycle nuageux journalier caractéristique, une matinée plutôt dégagée suivie d'une couverture nuageuse de plus en plus importante au cours de la journée. Les mesures ciel-clair sont ainsi moins disponibles au cours de l'après-midi.

La section 4 présente le modèle de transfert radiatif utilisé lors de cette étude, le Tropospheric Ultraviolet Model (TUV) développé par (Madronich et al., 1998), et sa configuration. Une étude de sensibilité est réalisée sur les différents paramètres d'entrée. Cela nous amène à définir plusieurs configurations du modèle, celles-ci sont définies dans la Table 3.

L'influence de deux spectres d'irradiance du soleil hors atmosphère différents sur l'UVI est de l'ordre de $\sim 2\%$ à $\sim 5\%$. Cette différence apparaît comme dépendante de l'angle solaire zénithal et de la distribution verticale de l'ozone.

Un résultat similaire est obtenu pour la section efficace d'ozone. La différence est toutefois plus faible, elle varie de $\sim 2.5\%$ à $\sim 3\%$ environ, elle est aussi fonction de l'angle solaire zénithal.

Le choix des colonnes totales utilisées en entrée, provenant de mesures SAOZ au sol ou de mesures satellitaires (OMI et SBUV), a un impact faible sur l'UVI modélisé. En effet ces mesures sont très proches, en moyenne différente de moins de un pourcent. La différence sur l'UVI modélisé pour les différents cas est aussi inférieure à 1%.

La différence entre l'utilisation d'une climatologie mensuelle et la moyenne journalière des paramètres aérosols est aussi analysée. Même si la différence moyenne entre ces deux variables est très faible, $\sim 0.4\%$, certains points montrent une différence de l'ordre de 30%, ces points particuliers correspondent notamment aux périodes de feux de biomasse.

La validation de la modélisation du rayonnement UV est présentée dans la section 5. Une première analyse est faite à travers le RAF (Radiative Amplification Factor) (Madronich, 1993), ce facteur permet généralement de définir la relation entre une variation de la colonne totale d'ozone et une variation de l'indice UV.

L'incertitude sur les observations ne nous permet pas ici de déterminer si c'est une relation linéaire ou une relation de puissance qui lie ces deux variables. Les résultats sont présentés en Figure 8 pour plusieurs cas ; les observations filtrées (UV_{SWF}), l'UVI modélisé correspondant

le mieux à l'observation (RTUV07), et un cas modélisé idéal (i-RTUV). Dans ce dernier cas, tout les paramètres sont fixes, seule la colonne totale d'ozone varie. Toutefois, dans les deux cas, le RAF décroît, d'une valeur d'environ 1.4 pour un SZA de 25° jusqu'à une valeur de moins de 1.2 lorsque l'angle solaire zénithal augmente. En effet, si l'angle solaire zénithal augmente, le chemin emprunté dans l'atmosphère par le rayonnement est plus long. Certains processus comme la diffusion Rayleigh ont alors plus d'impact sur l'UVI. La distribution verticale de l'ozone impacte aussi la valeur du RAF, son impact peut être apprécié en comparant le cas i-RTUV et RTUV07.

Afin de comparer l'UVI modélisé à la mesure d'UVI ciel-clair UV_{SWF} , on calcule la différence relative entre ces deux quantités. La figure 9 présente une régression entre ces deux variables (première colonne), ainsi que la différence relative moyenne en fonction de l'angle solaire zénithal (seconde colonne) pour les différentes configurations du modèle. La configuration la plus proche des observations est RTUV03, avec une différence relative moyenne de 0.43 ± 5.60 %. La différence entre ces différents résultats n'est pas significative car l'incertitude de mesure de l'UVI est de 5% pour un facteur d'élargissement $k = 2$. L'incertitude de modélisation est du même ordre.

Le cycle diurne de cette différence est représenté en figure 10 pour toute l'année et pour deux saisons, été et hiver austral. Comme noté précédemment, le site d'étude possède un cycle diurne caractéristique de formation nuageuse. Cela a un impact direct sur la modélisation, en effet la différence relative entre observation et modèle augmente au cours de la journée. L'écart-type est aussi plus important pendant la saison pluvieuse, l'été austral. Lors de cette saison, moins de mesures ciel-clair sont disponibles (Fig. 2), la comparaison modèle et observation est alors statistiquement plus faible. La situation inverse peut-être constaté pour l'hiver austral.

La première partie a permis de montrer la validité des deux méthodes de filtrage ciel-clair, rapports d'observateurs ou mesures de flux solaire. Les mesures de flux se sont montrées plus robustes que les rapports d'observateurs. On peut attribuer cet écart à la résolution temporelle et à la localisation des mesures (Fig. 1). Les mesures de flux ont une résolution temporelle d'une minute et sont colocalisées avec les mesures de rayonnement UV. Les rapports d'observateurs sont effectués toutes les heures et sont réalisées à une dizaine de kilomètre des mesures UV. À partir de ces observations une climatologie mensuelle ainsi qu'un cycle diurne climatologique de la nébulosité et de la mesure UV en ciel clair sont présentés (Fig. 2).

La seconde partie dresse les conclusions suivantes.

Les mesures de colonne totale d'ozone au sol et par satellite sont très proches, une différence d'environ 1% en moyenne est observée. L'impact sur la modélisation de l'UVI est ainsi du même ordre (1%).

Le spectre d'irradiance du soleil hors atmosphère et la section efficace d'ozone utilisés dans le modèle peuvent mener respectivement à une différence d'environ 2.5 à 5% et 2.5 à 3%. Cette différence est dépendante de la distribution verticale et de l'angle solaire zénithal.

Dans le cas d'étude climatologique, une climatologie mensuelle des paramètres associés aux aérosols (AOT, SSA, α) peut être utilisée. La différence moyenne entre une climatologie mensuelle et la mesure journalière est de l'ordre de 0.30%. Toutefois des pics ponctuels peuvent être observés allant jusqu'à près de 30%, ainsi si l'on souhaite réaliser de la prévision et de la prévision journalière il est préférable d'utiliser une mesure journalière des paramètres d'aérosols.

Le RAF permettant de lier une variation de colonne totale d'ozone à une variation d'UVI a

été analysé, des valeurs similaires à d'autres études pour des régions différentes du globe sont observées.

La dernière partie montre ainsi qu'il est possible de modéliser l'UVI ciel clair, la différence relative moyenne entre modélisation et observations est de 0.43 ± 5.60 %.

Les observations ont permis aussi de mettre en avant des cas de rayonnement UV amplifié. Les maxima d'UVI sont observés lors de la présence de nuages, une nébulosité fractionnée peut donc amplifier le rayonnement UV grâce à des réfractions multiples. Ce dernier point est à développer pour de futures études à l'aide d'une observation plus détaillée de la couverture nuageuse, l'installation récente de caméra All-Sky permettra de répondre à cette problématique.

2.2 Article



Ultraviolet radiation modelling from ground-based and satellite measurements on Reunion Island, southern tropics

Kévin Lamy¹, Thierry Portafaix¹, Colette Brogniez², Sophie Godin-Beekmann³, Hassan Bencherif^{1,4}, Béatrice Morel⁵, Andrea Pazmino³, Jean Marc Metzger⁶, Frédérique Auriol², Christine Deroo², Valentin Duflo¹, Philippe Goloub², and Charles N. Long⁷

¹LACy, Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (UMR 8105 CNRS, Université de La Réunion, Météo-France), Saint-Denis, Reunion Island, France

²Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA), Université Lille 1 Sciences et Technologies, Villeneuve d'Ascq, France

³Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales, Service d'Aéronomie (LATMOS), CNRS, Institut Pierre Simon Laplace, Pierre et Marie Curie University, Paris, France

⁴School of Chemistry and Physics, University of KwaZulu Natal, Durban, South Africa

⁵Laboratoire d'Energétique, d'Electronique et Procédés (LE2P), Université de la Réunion, Saint-Denis, Reunion Island, France

⁶Observatoire des Sciences de l'Univers Réunion (OSU-R), UMS 3365, Université de la Réunion, Saint-Denis, Reunion Island, France

⁷National Oceanographic and Atmospheric Administration, Earth System Research Laboratory, Boulder, Colorado, USA

Correspondence: Kévin Lamy (kevin.lamy@univ-reunion.fr)

Received: 20 June 2017 – Discussion started: 24 July 2017

Revised: 30 October 2017 – Accepted: 9 November 2017 – Published: 9 January 2018

Abstract. Surface ultraviolet radiation (SUR) is not an increasing concern after the implementation of the Montreal Protocol and the recovery of the ozone layer (Morgenstern et al., 2008). However, large uncertainties remain in the prediction of future changes of SUR (Bais et al., 2015). Several studies pointed out that UV-B impacts the biosphere (Erickson et al., 2015), especially the aquatic system, which plays a central part in the biogeochemical cycle (Hader et al., 2007). It can affect phytoplankton productivity (Smith and Cullen, 1995). This influence can result in either positive or negative feedback on climate (Zepp et al., 2007).

Global circulation model simulations predict an acceleration of the Brewer-Dobson circulation over the next century (Butchart, 2014), which would lead to a decrease in ozone levels in the tropics and an enhancement at higher latitudes (Hegglin and Shepherd, 2009). Reunion Island is located in the tropics (21° S, 55° E), in a part of the world where the amount of ozone in the ozone column is naturally low. In addition, this island is mountainous and the marine atmosphere is often clean with low aerosol concentrations. Thus, measurements show much higher SUR than at other sites at

the same latitude or at midlatitudes. Ground-based measurements of SUR have been taken on Reunion Island by a Bentham DTMc300 spectroradiometer since 2009. This instrument is affiliated with the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC). In order to quantify the future evolution of SUR in the tropics, it is necessary to validate a model against present observations. This study is designed to be a preliminary parametric and sensitivity study of SUR modelling in the tropics.

We developed a local parameterisation using the Tropospheric Ultraviolet and Visible Model (TUV; Madronich, 1993) and compared the output of TUV to multiple years of Bentham spectral measurements. This comparison started in early 2009 and continued until 2016.

Only clear-sky SUR was modelled, so we needed to sort out the clear-sky measurements. We used two methods to detect cloudy conditions: the first was based on an observer's hourly report on the sky cover, while the second was based on applying Long and Ackerman (2000)'s algorithm to broadband pyranometer data to obtain the cloud fraction and then discriminating clear-sky windows on SUR measurements.

Long et al. (2006)'s algorithm, with the co-located pyranometer data, gave better results for clear-sky filtering than the observer's report.

Multiple model inputs were tested to evaluate the model sensitivity to different parameters such as total ozone column, aerosol optical properties, extraterrestrial spectrum or ozone cross section. For total column ozone, we used ground-based measurements from the SAOZ (Système d'Analyse par Observation Zénithale) spectrometer and satellite measurements from the OMI and SBUV instruments, while ozone profiles were derived from radiosoundings and the MLS ozone product. Aerosol optical properties came from a local aerosol climatology established using a Cimel photometer. Since the mean difference between various inputs of total ozone column was small, the corresponding response on UVI modelling was also quite small, at about 1 %. The radiative amplification factor of total ozone column on UVI was also compared for observations and the model. Finally, we were able to estimate UVI on Reunion Island with, at best, a mean relative difference of about 0.5 %, compared to clear-sky observations.

1 Introduction

Ozone recovery prevented a significant increase in SUR level (e.g. Morgenstern et al., 2008; van Dijk et al., 2013; Newman et al., 2009...). However, large uncertainties remain in the prediction of the future changes of SUR (Bais et al., 2015). Overexposure to this radiation is the main cause of the development of non-melanoma and melanoma skin cancers. Non-melanoma skin cancer is induced by chronic exposure and melanoma is induced by repeated burning and chronic exposure (Matsumura and Ananthaswamy, 2004). Holick et al. (1980) studied the beneficial effect of UV radiation on health through the synthesis of pre-vitamin D and numerous studies have assessed the balance between benefits and risks. McKenzie et al. (2009) looked at the relation between erythemal-weighted UV (McKinlay and Diffey, 1987) and vitamin-D-weighted UV (MacLaughlin et al., 1982). This work showed that, during summer at midlatitudes, vitamin D can be produced in a few minutes while avoiding the skin damage that occurs after an hour of exposure; of course this depends on the skin area exposed. Behavioural studies have also been conducted in order to understand human activities in relation to UV intensity. Participating in outdoor sports activities without sufficient solar protection has been shown to increase the risk of developing skin lesions in childhood (Mahé et al., 2011). Tourism in northern midlatitude cities in summer can also present a non-negligible risk of skin cancer (Mahé et al., 2013). UV exposure and sun-protective practices during childhood were also investigated in New Zealand (Wright et al., 2007), and differences in children's exposure were explained by their different

activities. Sunburn risks among children and outdoor workers were evaluated on Reunion Island and in South Africa. High values of cumulative daily ambient solar UV radiation were found for the three sites studied (Wright et al., 2013).

Total solar irradiance at the top of the atmosphere is, of course, the source of surface UV radiation. Its intensity varies directly with sun radiative intensity. The sun has an 11-year solar cycle period (Willson and Hudson, 1991) which has a direct influence on total solar irradiance at the top of the atmosphere. Total solar irradiance at the top of the atmosphere is also modulated by the variation in Earth's orbital parameters, which should be taken into account in very long-term climate studies but can be neglected in multi-decadal studies such as ours.

SUR is attenuated by absorbing and scattering processes in the atmosphere from the top of the atmosphere to the surface. By investigating SUR variability from 1 year of ground-based measurements, McKenzie et al. (1991) showed that the dominant variation of SUR was linked to SZA, while attenuation by clouds could exceed 50 % and a total ozone column reduction of 1 % could induce an increase in SUR of 1.25 ± 0.20 %.

Due to the depletion of the ozone layer by human-made halogenated substances and the significant impact of ozone on climate change, a major observing programme was set up to monitor atmospheric ozone in the last decades. The latest assessment of the state of the ozone layer (WMO, 2014) reported the end of the stratospheric ozone decline since the end of the 1990s, with a stabilisation of ozone levels at about 2 % below those observed in the early 1980s. However, global circulation model simulations predict an acceleration of the Brewer-Dobson circulation over the next century (Butchart, 2014), which would lead to a decrease in ozone levels in the tropics and an enhancement at higher latitudes (Hegglin and Shepherd, 2009). Clouds and aerosols are also being intensively investigated, given their role in the climate energy budget and the fact that their radiative forcing remains the main uncertainty for climate studies (Boucher et al., 2013). They also are the main uncertainty factors in the future projections of the solar UV irradiance (Bais et al., 2015). Global maps of UV-absorbing aerosols were derived by Herman et al. (1997). Later Krzyścin and Puchalski (1998) showed that a 10 % decrease in aerosol optical thickness (AOT) at 550 nm induced a ~ 1.5 % increase in UV erythemal daily dose. More recently Kazadzis et al. (2009) investigated the aerosol forcing efficiency in the UVA region, between 325 nm and 340 nm and found a mean reduction of irradiance of 15.2 % per unit of AOT slant column at 340 nm during autumn. Correa et al. (2013) looked at the influence of aerosol properties on projected changes in clear-sky erythemal UV doses throughout the 21st century. It has been shown that clouds usually reduce SUR variability (Bais et al., 1993; Calbó et al., 2005), but broken clouds can also enhance it under specific conditions (Mayer et al., 1998).

Those three time-evolving parameters being important sources of variability of UV radiation, we need to better understand their effects on surface UV. Radiative transfer modelling plays a key role in deducing UV evolution over the next century, but it needs to take into account a fair projection of those parameters. Climate models associated with radiative transfer models or empirical methods have been used to assess SUR evolution over the coming century. Bais et al. (2011) and McKenzie et al. (2011) respectively found decreases of 12 and 20 % in UVI at high latitude, 3 to 5 % at midlatitudes and increases of 1 to 3 % in the tropics. These projections depend strongly on the evolution of future climate, and Butler et al. (2016) presented the complexities associated with future ozone change and therefore surface UV change.

The ultraviolet index (UVI) (WHO, 2002) is one of the most common parameters used to investigate the impact of SUR on human health. It is the weighted integral of the ultraviolet irradiance between 280 and 400 nm, with the weight depending on the human skin's response to erythema determined by McKinlay and Diffey (1987). UVI modelling was investigated thoroughly by Badosa et al. (2007), who tested multiple inputs and compared the results to observations at four different sites (Lauder, 45.04° S; Boulder, 40.01° N; Mauna Loa, 19.53° N; and Melbourne, 37.63° S). They found mean relative differences in UVI between the model and observations ranging from 10 % to less than 0.1 %.

Following these studies, the present work tries to improve the understanding of surface UV variability in the southern tropical region, a sensitive area where very few studies have been conducted. This article is intended to improve surface UV modelling by analysing the model sensitivity to different inputs. Six years of ground surface UV measurements made with a Bentham DTMc300 spectroradiometer are analysed in comparison to ozone, cloud and aerosol data derived from ground and satellite measurements spanning the same time period. As discussed previously, climate model simulations predict a decrease in ozone levels in the tropics and their enhancement at higher latitudes. This study is designed to establish a fine parameterisation of UVI modelling in the tropics in order to later couple radiative transfer modelling and a chemistry climate model to obtain precise UVI projections.

Reunion Island is a small tropical island located in the Indian Ocean at a latitude of 20.90° S and a longitude of 55.50° E. This island is very mountainous with a peak at 3070 m a.s.l. and a mean altitude of ~ 600 m a.s.l.. Almost all of the ground measurements were made at Reunion Island University, which is situated in the north of the island at an altitude of 80.0 m and less than 2 km from the coast. The atmosphere in the boundary layer is dominated by the ocean and is often clean with low aerosol concentration. The usual weather follows a typical pattern during the day due to the trade winds: the sky is usually free of clouds at sunrise, but clouds start to appear during the day as the trade winds

blow onto the mountain. There is a strong contrast between the east and west sides of the island, because the accumulation of clouds leads to more precipitation on the east coast, while the west coast is mostly dry.

Surface UV measurements show a very high UV index compared to other sites at the same latitude (Lee-Taylor et al., 2010). Aerosol optical thickness shows a mean value of ~ 0.07 at 440 nm, with an occasional maximum at ~ 0.3 . These multiple conditions – mountainous, tropical island with low aerosol concentrations – makes Reunion Island an interesting site for studying surface UV radiation. Since the island presents a very high UVI, and the population lives at low to relatively high altitudes, the highest cities being located at about 1.5 km a.s.l., surface UV radiation is a significant health concern. Note that the time zone of the site is UTC + 04:00.

In Sect. 2, we will first present the different data and the radiative transfer model used in this study. As discussed previously, clouds are an important factor of UV variability and, since clouds are not well resolved in the radiative transfer model, we chose to work only on clear-sky UVI modelling here. The data sets used in this study will also be presented.

In Sect. 3, we will address the filtering method used to select only UVI observations for clear-sky conditions with the use of broadband pyranometer global and diffuse solar irradiances and Long et al. (2006) algorithm. A brief comparison will be made with a human observer's report on cloud coverage.

In Sect. 4, we will discuss the radiative transfer model sensitivity to various input parameters. Multiple modelling cases were run using different ozone and aerosol data at the time of the UV measurements and with different input ozone cross sections and solar irradiance spectra at the top of the atmosphere. The impact on the UVI modelled will be analysed.

In Sect. 5, the model will be validated against the clear-sky UVI observations on Reunion Island. We will investigate the model's ability to reproduce diurnal and seasonal variation of UVI, and its ability to reproduce the effect of total ozone column (TO_3) variation on UVI. Lastly we will discuss the results and draw some conclusions. A glossary of all abbreviated terms is available as a Supplement.

2 Data sets

The multiple types of measurements used in this study, as input for the radiative transfer model or as reference to validate the model output, are summarised in Table 1.

UVI measurements were taken with a Bentham DTMc300 spectroradiometer affiliated with NDACC. This spectroradiometer is composed of two monochromators and scans the wavelength range of 280–450 nm. According to Brogniez et al. (2016), Bentham DTMc300 UVI measurements have an expected uncertainty of about 5 % for a coverage factor of 2. Recalibration is made every 3 to 4 months with a 150 W

Table 1. Data sets.

Data	Instrument	Location	Frequency	Contact (PI)	Affiliation
UV index (UV spectrum integrated following McKinlay and Diffey, 1987)	Bentham DM300	Saint-Denis Réunion Island University	dt = 15 min dw = 0.5 nm [280–450 nm]	C. Brogniez	LOA ^a (Lille, France)
Aerosol optical thickness at 340 nm (AOT) Single-scattering albedo at 438 nm (SSA) Ångström exponent at 340–440 nm (α)	Cimel Sunphotometer	Saint-Denis Réunion Island University	Daily mean	P. Goloub	LOA ^a (Lille, France)
Cloud	Observer report	Saint-Denis Gillot	dt = 1 h	F. Bonnardot	MF ^b (Saint-Denis)
Global and diffuse total irradiance	SPN1 Shaded Pyranometer	Saint-Denis Réunion Island University	dt = 1 min	B. Morel P. Jeanty	LE2P ^c (Saint-Denis)
Total ozone column (TO ₃)	SAOZ	Saint-Denis Réunion Island University	Daily	A. Pazmino T. Portafaix	LATMOS (Paris, France) LACy ^e (Saint-Denis)
	SBUV2	Satellite	Daily overpass	Richard McPeters	NASA
	OMI-DOAS	Satellite	Daily overpass	P. Veefkind	KNMI (Netherlands)
Total nitrogen dioxide column (TNO ₂)	SAOZ	Saint-Denis Réunion Island University	Daily	A. Pazmino T. Portafaix	LATMOS ^d (Paris, France) LACy ^e (Saint-Denis)
Ozone and temperature profiles	Ozone sonde	Saint-Denis Réunion Island University	Weekly	F. Posny	LACy ^e (Saint-Denis) Réunion Island University
	MLS	Satellite	Daily overpass	L. Froidevaux	NASA-JPL

^a LOA: Laboratoire d'Optique Atmosphérique. ^b MF: Météo France. ^c LE2P: Laboratoire d'Energétique, d'Electronique et Procédé. ^d LATMOS: Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales. ^e LACy: Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones.

lamp and a 1000 W quartz tungsten halogen lamp traceable to National Institute of Standards and Technology. In this study, we used the standard erythemal action spectrum published by the International Commission on Illumination to calculate erythemal-weighted UV (Commission Internationale de l'Eclairage, 1998). Simulation experiments under clear-sky conditions were conducted over the time period covered by SUR measurements, i.e. from 2009 to 2015. The data used in this study for modelling are described below.

TO₃ measurements are as follows:

- ground-based measurements from the SAOZ (Système d'Analyse par Observation Zenithal) (Pommereau and Goutail, 1988) UV-visible spectrometer collocated with the Bentham,
- satellite measurements from OMI (OMTO3 product) and SBUV (Bhartia and Wellemeyer, 2002).

Extraterrestrial solar spectra (ETS) were obtained from

- Chance and Kurucz (2010),
- Dobber et al. (2008).

Several data sets are available of ozone cross sections (O3XS) absorption:

- Malicet et al. (1995) and Brion et al. (1998) (BDM) works are currently used for SBUV instruments:
 - 280–345 nm at 295, 243, 228 and 218 K from Malicet et al. (1995).
 - 345–450 nm at 195 K from Brion et al. (1998).
- Bass and Paur (1985) (BP) are used currently for OMTO3.
- Gorshchev et al. (2014) and Serdyuchenko et al. (2014) obtained high spectral resolution ozone absorption cross sections (called SER hereafter) from a combination of Fourier transform and Echelle spectrometers. Measurements, data analysis and comparisons are presented in the first paper (Gorshchev et al., 2014), and temperature dependence is investigated throughout the second paper (Serdyuchenko et al., 2014).

Orphal et al. (2016) published a recent report on the evaluation of different absorption cross sections of ozone. They

found that BP data should no longer be used for retrieval of atmosphere ozone measurements. Either BDM or SER should be used in ground-based or satellite retrieval. These findings led us to choose BDM and SER O3XS in our current study.

Ozone and temperature profiles came from radiosoundings that have been taken weekly on Reunion Island since 1993, and from MLS satellite measurements (Froidevaux et al., 2008). Nitrogen dioxide measurements were obtained with the SAOZ spectrometer. Aerosol measurements were derived from Cimel sun photometer measurements between 2009 and 2016. Cloud observer reports were made on Reunion Island every hour at about 10 km north of the UVI measurements, while global and diffuse total irradiance were measured every minute at the same location as the UVI measurements.

3 Clear-sky filtering

Clouds are known to play an important role in surface UV variability (Bais et al., 1993; Calbó et al., 2005 and Mayer et al., 1998). As mentioned previously, this study was limited to clear-sky UV observations and simulations. In order to filter out cloudy conditions, two different methods were used. The first, commonly used one was based on synoptic observer reports (SYNOP) made at a Météo France weather station located about 10 km from the UV measurements site. The observer reports follow WMO guidelines for cloud observations (<http://worldweather.wmo.int/oktas>). Sky observations are made every hour and are quantified on a scale in oktas from 0 (clear-sky) to 8 (totally overcast sky). We kept only UV measurements made for cloudiness ≤ 1 okta. Since the UV measurements are made every 15 min and sky observer reports are hourly, we interpolated these observations every 15 min. The effect of interpolation is taken into consideration and analysed below. The second method used Long and Ackerman (2000) and Long et al. (2006) algorithms. As input for this algorithm we used 1 min data of global and diffuse total irradiances measured at the same location as the UV measurements, with a SPN1 shaded pyranometer. These algorithms performed multiple tests on the global, diffuse and direct irradiance in order to identify periods of clear skies. They have been validated against a whole sky imager, lidar data and observer reports (Long et al., 2006).

In order to compare the two methods, we tried multiple thresholds of the cloud fraction for the Cloud Observer Report (CF-SYNOP) and cloud fraction obtained with the Long et al. (2006) algorithm, called CF-SWF hereafter. We considered that clear-sky conditions prevailed when the cloud fraction was less than or equal to the CF-SYNOP or CF-SWF thresholds. From these we obtained UVI filtered data, called UV-SYNOP and UV-SWF hereafter.

We investigated numerous days and found CF-SWF to be more responsive and consistent with the UVI measurements.

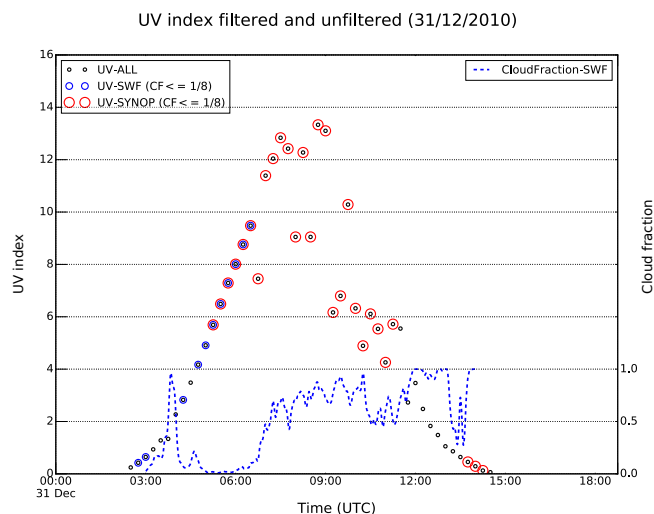


Figure 1. Daily UV index at Reunion Island on 31 December 2010; for UV-ALL Benthalm measurements in black circles, UV-SWF: UV data filtered with CF-SWF in blue circles, UV-SYNOP: UV data filtered with CF-SYNOP in red circles. Cloud fraction (CF-SWF) is also represented by the blue dashed line.

An example of a typical day with varying cloud fractions is represented in Fig. 1. UVI corresponding to all-sky conditions (UV-ALL) are marked in black circles. The blue circles represent UV-SWF and the red ones UV-SYNOP. CF-SWF is also represented by the blue dashed line. A clear-sky day would produce a UVI diurnal cycle resembling a Gaussian-shaped function centred on the solar noon, while moderate to high cloud fractions would generally reduce UVI. In some cases, broken cloud conditions may increase UVI by 20 % relative to clear-sky conditions (Cede et al., 2002). Early in the day, at about 04:00 UTC, both UV-SYNOP and UV-SWF are absent, as no clear-sky conditions are detected: cloud fraction at that time is quite high and impacts the UVI slightly. At around 09:00 UTC we clearly see the impact of a rising CF on UV-ALL, which rapidly decreases. UV-SWF is absent, but CF-SYNOP still labels UV-ALL measurements (UV-SYNOP) as clear-sky while they are clearly not. This example, among many others, made us decide to use only UV-SWF for the UVI clear-sky measurements in all further work.

We then investigated the daily and monthly densities of UVI measurements. In Fig. 2a, average UVI data distribution through the day represents UV-ALL (green bars) and UV-SWF (blue bars), along with the mean CF-SWF (black dashed line). We can see that UV-ALL is equally distributed through the day, since UVI measurements are made every day at 15 min intervals. In contrast, for clear-sky data UV-SWF, there are more measurements available in the morning than in the afternoon, which is anti-correlated with the mean climatological CF-SWF. As clouds tend to form during the day, clear-sky UV measurements are less frequent in

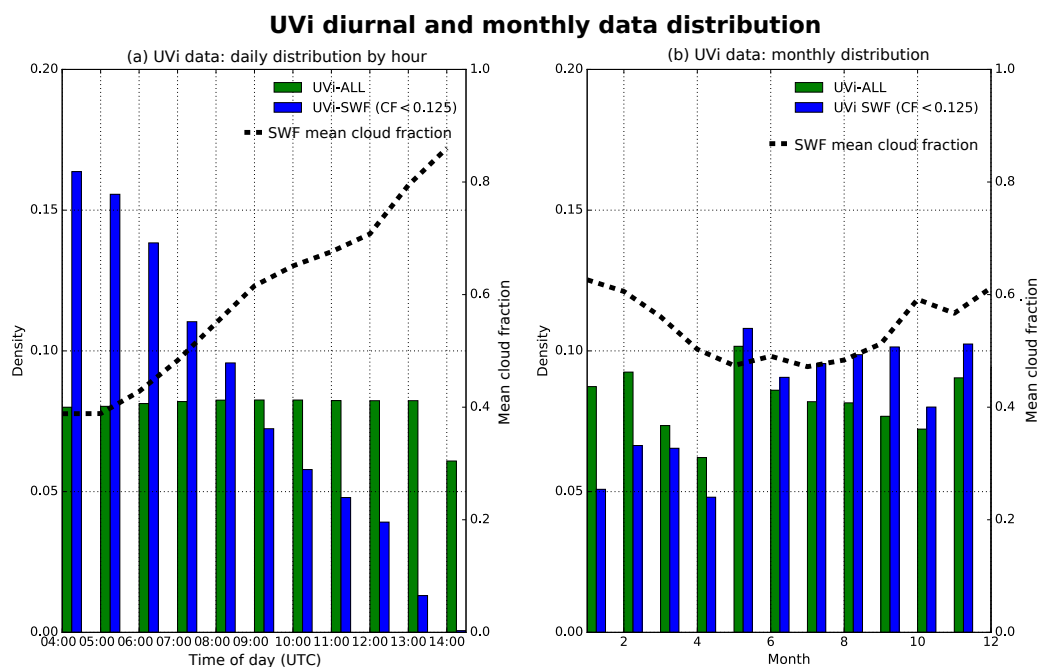


Figure 2. UVI data distribution and cloud fraction for 1 h bins. UVI-ALL is in green, UVI-SWF is in blue, cloud fraction is indicated by the dotted line.

the afternoon. In Fig. 2b, which represents UVI data distribution during the year, we see that UV-ALL are not equally distributed. There are fewer UV-ALL data for the first 4 months, especially during March and April, due to a few failures and technical maintenance of the Bentham spectroradiometer during the 6 years analysed here. We then see a seasonal variation of the availability of clear-sky UVI measurements. During the austral summer, there is an increasing mean cloud fraction and therefore fewer clear-sky measurements. Since the solar zenith angle and total ozone column also follow a diurnal and annual variability, respectively, the uneven clear-sky UVI distribution through the day or through the year will induce a statistical bias on the following comparisons. The threshold chosen for the rest of the study is one-eighth. There was 85 412 measurements. After clear-sky filtering only 16 390 remained.

4 UV modelling

4.1 Radiative transfer model

For UVI modelling, we used the Tropospheric Ultraviolet Visible (TUV) radiative transfer model version 5.3 (Madronich, 1993). TUV is available with two different radiative transfer schemes. We used the pseudo-spherical 8-stream discrete ordinates (psndof) (Stamnes et al., 1988) method to solve the radiative transfer equation. The computation time is higher than with the generalised 2-stream method (Toon et al., 1989), also available in TUV, but psndof

is more accurate (Petropavlovskikh and Brasseur, 1995). N -stream discrete ordinates schemes use analytical treatment before computation. The radiative transfer equation is decomposed into a $2N$ differential equation. Then, with appropriate boundary conditions, the system is numerically solved for each layer of the atmosphere. No approximation is made on the vertical inhomogeneity of the atmosphere or on the phase function. Without computational time requirement, these schemes can have high levels of accuracy. On the other hand, 2-stream methods assume an irradiance independent of the azimuth angle and divide it into upward and downward components. These approximations induce errors, specifically in the lower troposphere and on the diffuse part of the irradiance.

The following parameters were modified in the model in order to reproduce the UVI measurements and site-specific climatology:

- extraterrestrial spectrum (ETS),
- solar zenith angle (SZA),
- total ozone column amount (TO_3),
- total nitrogen dioxide (TNO_2),
- ozone profile (OP),
- temperature profile (TP),
- aerosol optical thickness (AOT) at 340 nm,

- aerosol Ångström exponent (α) between 340 and 440 nm,
- single-scattering albedo (SSA) (Takemura et al., 2002 and Lacagnina et al., 2015; see below for more details),
- ground surface albedo (alb),
- altitude (z).

Due to the lack of reliable data, total column sulfur dioxide (TSO₂) was set to zero, which could induce a modelling error during a volcanic eruption. Between 2009 and 2015, there were a few volcanic eruptions from the Piton de la Fournaise, which is located on the opposite coast of Reunion Island to the site where the UVI measurements were taken. Unfortunately there are no TSO₂ data available for this period. Following McPeters and Labow (2012), a monthly climatology of ozone and temperature profile was derived from ozone soundings and MLS satellite measurements. Single-scattering albedo from the Cimel sun photometer was not usable, as Dubovik et al. (2000) showed that SSA has a large uncertainty if the AOT is lower than 0.3, which was almost always the case here. As proposed by Lacagnina et al. (2015) and Takemura et al. (2002), a fixed SSA of 0.95 was set. The errors due to the use of a standard SSA were not investigated here and should be investigated in the future (Correa et al., 2013).

Following Koelemeijer et al. (2003), surface albedo was taken to be constant at 0.08. According to Koepke et al. (1998), the UVI modelling error is about 5 % for a coverage factor of 2.

4.2 Influence of input parameters

To study the impact of various inputs on surface UV calculations, we tested multiple inputs from a baseline configuration (Table 2). Then different RTUV (Reunion Tropospheric Ultraviolet) cases were run with only one parameter varying in each (Table 3).

4.2.1 Earth–Sun distance and extra-terrestrial spectrum

In order to take into account the varying Earth–Sun distance (ESD, in astronomical unit), a time dependent coefficient (ESF) is used in TUV: $ESF(t) = 1/ESD^2$. The new extraterrestrial spectrum ET', which is the spectrum at the top of the atmosphere corrected for any instant of time (it) is then (1):

$$ET' = ESF(it) \times ET. \quad (1)$$

For convenience, we will now refer to the corrected extraterrestrial spectrum simply as ET. The ESD correction is done when RTUV is used for time series studies but, in order to study the sensitivity to the ET spectrum (or to the O3XS later in Sect. 4.2.2), we chose to run TUV in an idealised state

Table 2. Baseline configuration of the TUV model.

Parameter	
Period	2009–2016
Latitude	−20.90
Longitude	55.50
Temporal resolution (dt)	15 min
Vertical scale	0–80 km
Vertical resolution (dz)	1 km
Wavelength	280–450 nm
Wavelength resolution (dw)	0.5 nm
Albedo	Koelemeijer et al. (2003)
TNO ₂	SAOZ
TSO ₂	0
Cloud fraction	0
OP	McPeters and Labow (2012)
TP	McPeters and Labow (2012)
SSA	0.95
Aerosol profile	Elterman (1968)

(i-RTUV), with constant Earth–Sun distance, total ozone column varying from 250 to 350 DU, solar zenith angle varying from 0 to 60° and mean values of aerosol representing the entire study period (see Table 3).

Since we want to understand the sensitivity to the ET spectrum, i-RTUV was run with the Dobber et al. (2008) or Chance and Kurucz (2010) ET spectrum. From there we took UVI output and defined the UVI relative difference (RD) between these two cases as

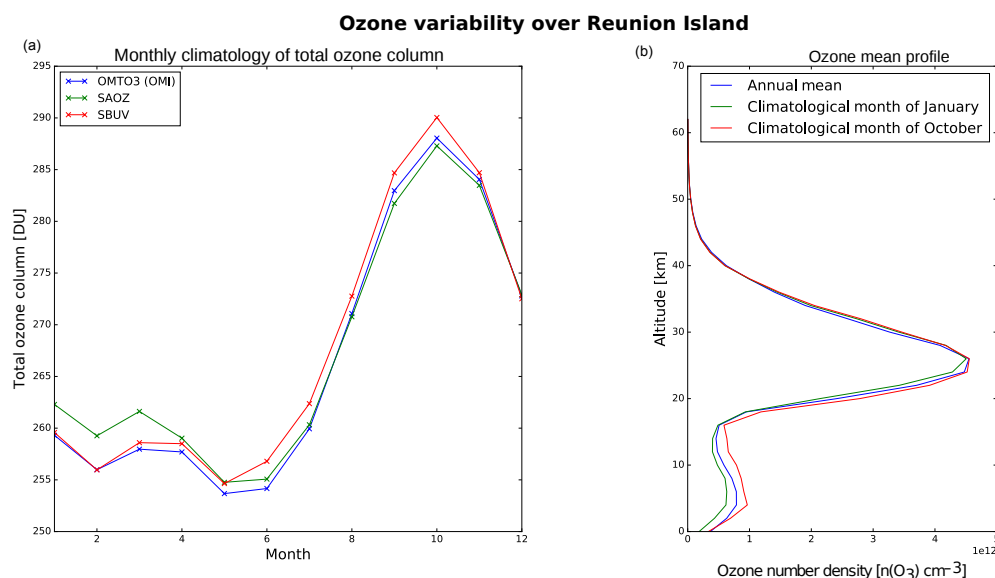
$$RD[\%] = 200 \times \frac{UVI_{\text{dobber}} - UVI_{\text{chance}}}{UVI_{\text{dobber}} + UVI_{\text{chance}}}. \quad (2)$$

RD on the surface UVI modelled between the two ET spectra for the SZA and TO₃ studied is represented in a monthly climatological OP and TP in Fig. 4a for January and in Fig. 4b for October. The highest RD appears to occur for low SZA and low TO₃, at about 5 % for January and about 4 % for October. Minima of RD are for high SZA and high TO₃, at about 3 and 2 % for January and October, respectively. At fixed TO₃, when SZA increases, the path length travelled by the radiation crossing the atmosphere is longer and other processes, such as Rayleigh scattering, have more impact on the surface UVI modelled than different ET spectra. At fixed SZA, when TO₃ increases, the RD decreases, or when ozone molecular absorption increases the differences in the ET spectra are less important.

During the month of October, OP shifts from the annual mean (Fig. 3). There is an increase in tropospheric ozone through the arrival of emissions due to biomass burning over the western part of the Indian Ocean zone (Baldy et al., 1996). The absorption effectiveness of tropospheric ozone relative to stratospheric ozone depends on SZA (Brühl and Crutzen, 1989). This is why there is a small difference (about 1 %) between January and October. This difference is only due to the shift in ozone and temperature profiles.

Table 3. Case configurations.

Case	TO ₃	Aerosols	ETS	O ₃ XS	ESD
RTUV01	SAOZ	Cimel daily	Dobber et al. (2008)	SER	f(t)
RTUV02	OMI	Cimel daily	Dobber et al. (2008)	SER	f(t)
RTUV03	SBUV	Cimel daily	Dobber et al. (2008)	SER	f(t)
RTUV04	SAOZ	Cimel monthly Clim	Dobber et al. (2008)	SER	f(t)
RTUV05	SAOZ	Cimel daily	Chance and Kurucz (2010)	SER	f(t)
RTUV06	SAOZ	Cimel daily	Dobber et al. (2008)	BDM	f(t)
RTUV07	SAOZ	AOT: 0.05 SSA: 0.95 α : 0.90	Dobber et al. (2008)	SER	esfact = 1
i-RTUV	250–345 DU	AOT: 0.05 SSA: 0.95 α : 0.90	Dobber et al. (2008) or Chance and Kurucz (2010)	SER or BDM	Constant esfact = 1 SZA = [0,60]°

**Figure 3.** Ozone variability over Reunion Island. (a) Monthly climatology of total ozone column for three data sets (OMI in blue, SAOZ in green and SBUV in red). (b) Mean ozone profile from McPeters and Labow (2012) climatology. Annual mean in blue, January in green and October in red.

In Fig. 4c, the monthly mean of UVI RD between RTUV05 and RTUV01 is represented by a dashed blue line. These two RTUV cases have the same configuration except for the ET spectrum. The sign of the RD here is coherent with Eq. (2), i.e. RTUV05 (Chance ET) minus RTUV01 (Dobber ET). The monthly mean of RD between these cases oscillates between 2.7 and 3.4 %, these values being of the same order as the i-RTUV cases. The oscillation observed here is anti-correlated with the maximum of SZA at solar noon at the site studied.

To conclude, UVI dependency on the ET spectra is higher at low SZA and low TO₃, which are also the conditions where we find the maximum of UVI, i.e. where the health risk is highest. While the RD is dependent on SZA and TO₃ (at about 3.0 %), OP and TP also constitute factors of vari-

ability (about 1 %). RD is modulated through the year with the variation of SZA. Finally, Chance's spectrum impact on the surface UVI modelled will be an increase of about 3.0 % with respect to Dobber's.

4.2.2 Ozone cross sections

Following these studies we investigated the impact on simulated UV irradiance modelled with different absorption cross sections of ozone (O₃XS). As mentioned previously we used BDM and SER and defined the relative difference between the two modelling cases as

$$\text{RD}[\%] = 200 \times \frac{x_{\text{BDM}} - x_{\text{SER}}}{x_{\text{BDM}} + x_{\text{SER}}}. \quad (3)$$

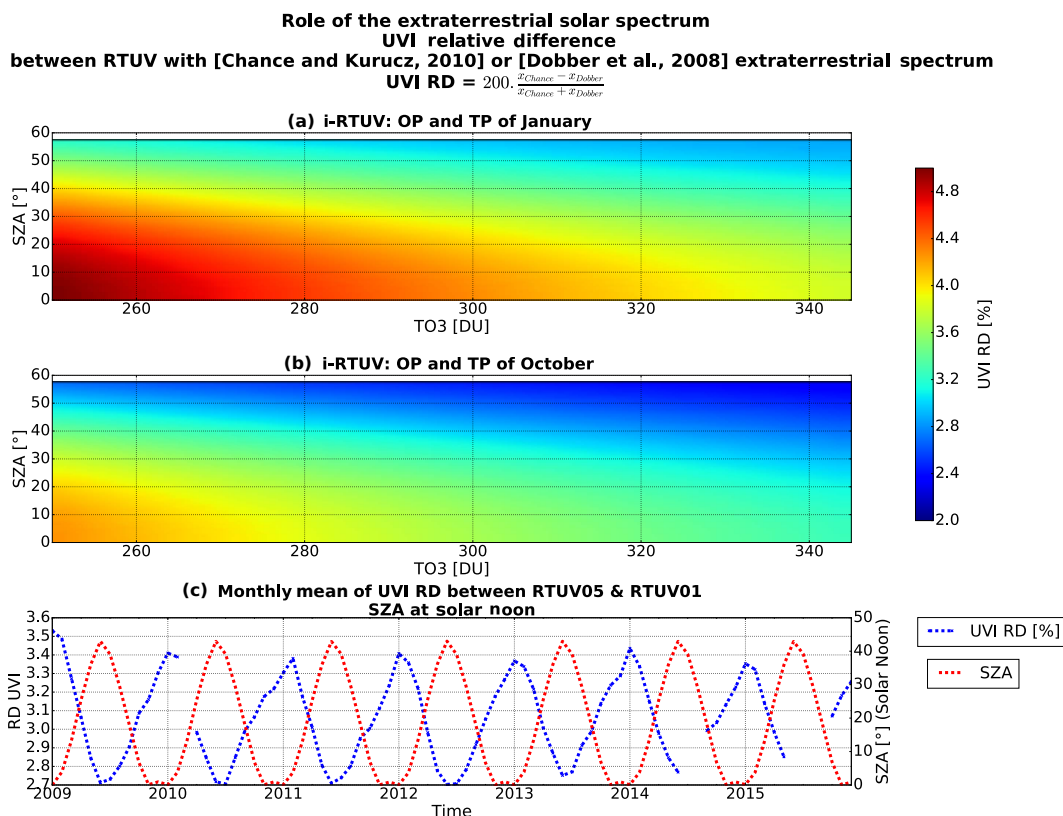


Figure 4. (a) UVI relative difference between two idealised runs with different ET spectra for a varying TO_3 and SZA for a climatological OP and TP of January. (b) Same as panel (a) but for OP and TP of October. (c) Monthly mean of UVI RD between RTUV05 and RTUV01 (blue dashed line). Monthly mean of SZA at solar noon. (red dashed line).

Figure 5a represents the UVI RD using two different O3XS (Eq. 3) in an idealised run (i-RTUV) for October OP and TP climatologies. Here, RD ranges from 2.4 to 2.9 %. We observe the same variability as for the ET sensitivity: the highest values of RD correspond to low SZA and low TO_3 , and as either SZA or TO_3 increases, UVI RD will decrease. Figure 5b shows the role of the varying Earth–Sun distance by using the corresponding RTUV cases (RTUV06 with BDM and RTUV01 with SER), which differ only by O3XS. There is also a yearly UVI RD oscillation anti-correlated with the maxima of SZA at solar noon. The mean RD is about 2.7 %, which is consistent with the i-RTUV case. The oscillation around the annual mean is smaller here than for the ET spectra (about 0.5 %) but so is the mean RD.

To summarise O3XS for this studied site, using SER O3XS instead of BDM O3XS increases the mean surface UVI by about 2.7 %. This UVI RD is modulated by the SZA, TO_3 , OP and TP.

4.2.3 Total ozone column

Three different TO_3 data sets covering the period 2009 to 2016 in RTUV01 (SAOZ), RTUV02 (OMTO3) and RTUV03 (SBUV) were investigated. In contrast to the simulations in

the idealised state, these simulations were conducted with varying Earth–Sun distance. The relative difference distributions for TO_3 and UVI are represented in Fig. 6 with 1 % bins. Mean RD between TO_3 data sets is smaller than 0.3 % with a standard deviation of about 2 %. The impact on the surface UVI modelled is slightly higher. There is a small mean relative difference of $\approx 0.1 \pm 2.3$ % between SBUV and OMTO3, 0.4 ± 2.0 % between SAOZ and OMTO3 and -0.3 ± 1.8 % between SAOZ and SBUV.

Since TO_3 and surface UVI are anti-correlated, a positive RD in TO_3 will lead to a negative RD on UVI and vice versa. This is expressed by the opposite sign of the mean RD between TO_3 and UVI and by the RD distribution. If the distribution of RD of TO_3 tends to shift towards positive values, the distribution of UVI RD will shift towards negative values.

4.2.4 Aerosol climatology and observations

Aerosol concentrations are usually very low in this region except during a specific period of biomass burning or volcanic eruption. Here the objective is to evaluate the impact of the aerosol variability on UVI modelling.

Figure 7a, b and c represent the monthly climatological values of AOT, SSA and Ångström exponent provided by

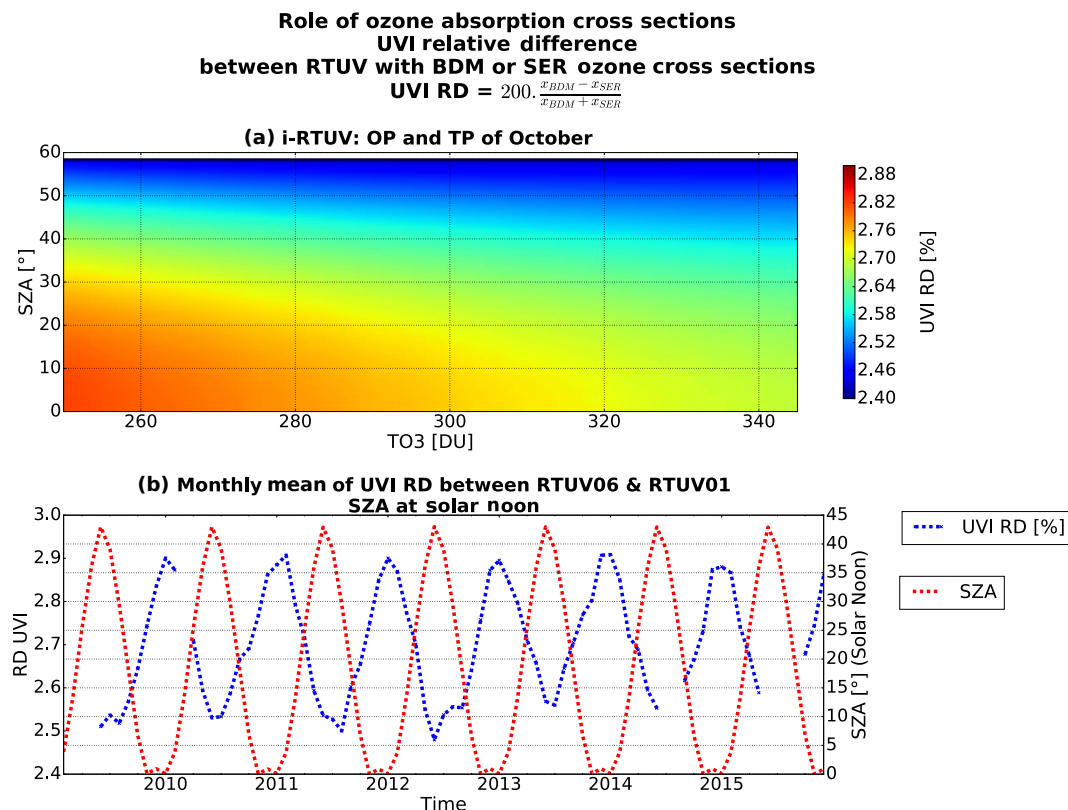


Figure 5. (a) UVI relative difference between two idealised runs with different O3XS for a varying TO₃ and SZA and for climatological OP and TP of October. (b) Monthly mean of UVI RD between RTUV06 and RTUV01 (blue dashed line). Monthly mean of SZA at solar noon (red dashed line).

a Cimel instrument. Aerosol optical thicknesses are usually quite low. There is a peak centred around October. It coincides with the arrival of biomass burning emissions over the western part of the Indian Ocean zone (Baldy et al., 1996). In Fig. 7b, the monthly climatologies of SSA (at 438 nm) derived from Cimel measurements are represented. These values are very uncertain as mentioned previously. Ångström exponent represents 340–440 nm and describes the spectral dependence of the AOT.

As aerosol input for UVI modelling, two data sets were used in this study, one being a monthly climatology derived from the Cimel sun photometer measurements from 2009 to 2016 and hereafter called Cimel Clim, and the other being the daily mean derived from the same instrument and hereafter called Cimel daily. RTUV01 was run with Cimel daily and RTUV 04 with Cimel Clim (see Table 3). We define the AOT anomaly as the difference between AOT daily mean and monthly climatology:

$$\text{AOTANOM} = \text{AOT}_{\text{Cimel daily}} - \text{AOT}_{\text{Cimel Clim}}. \quad (4)$$

Figure 7d represents the aerosol daily anomaly for the entire study period. We can observe few sharp peaks of a 0.25 AOT anomaly and several decreases to about a 0.1 AOT anomaly. The maximum anomaly usually appears at the end

of the year. Most of these anomalies are due to biomass burning emissions. Figure 7e shows UVI RD between RTUV04 and RTUV01. The succession of AOT anomalies has a direct impact on surface UVI; for the 0.25 increase in AOT, during the end of 2010, there is a $\approx 30\%$ relative difference between the two surface UVI modelled. This is better observed on Fig. 7f and g, which represent the monthly distribution of positive AOT anomalies and negative UVI relative difference split into three categories. Quantitatively more AOT anomalies (more than 0.15 AOT daily anomalies) are centred around October, which leads to higher values of UVI relative difference.

To summarise the aerosol findings, even though the mean relative differences in surface UVI for the two cases are very low for the entire studied period (-0.40%), there is still a punctual effect where surface UVI could be overestimated by $\sim 30\%$ when using aerosol climatology.

5 Model validation

In this section, we compare observations made only in clear-sky conditions against the different RTUV modelling cases (Table 3).

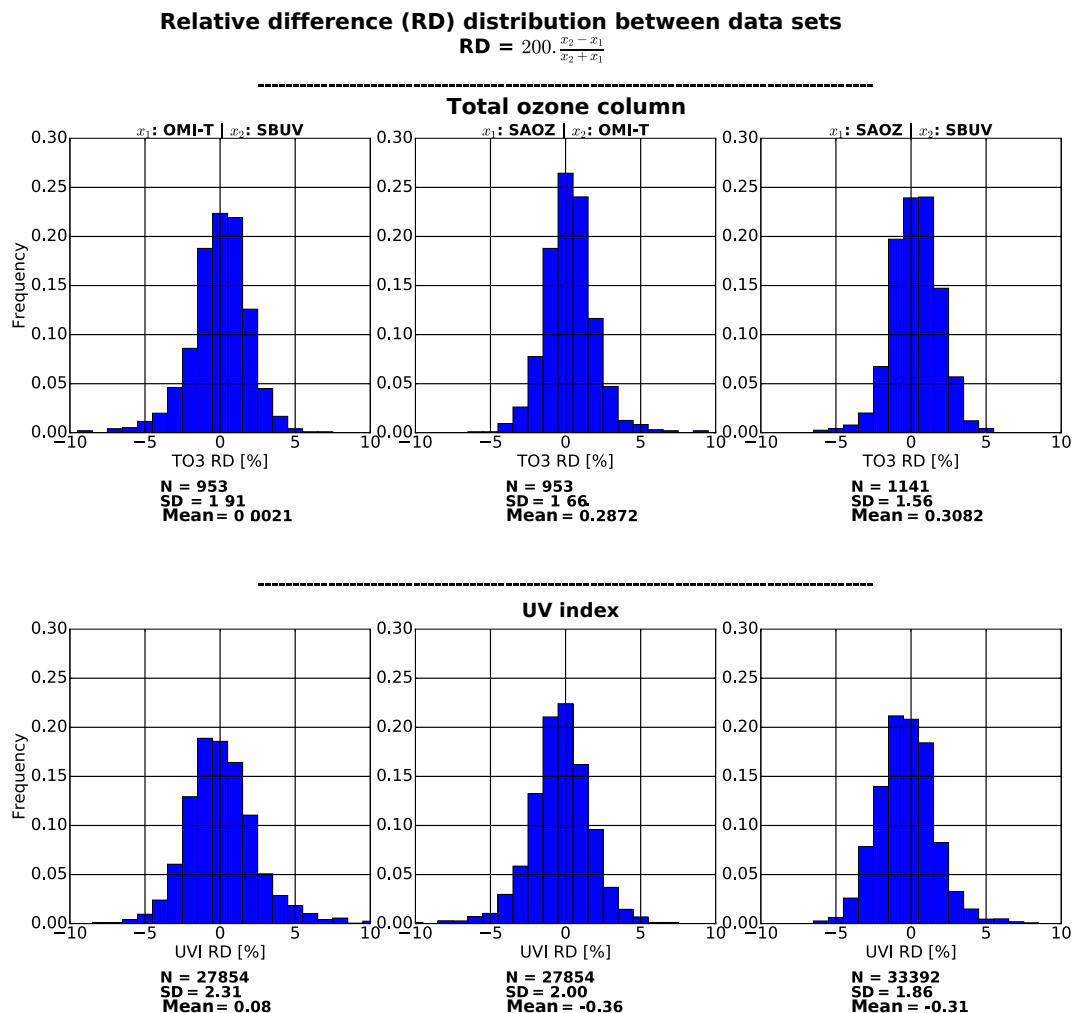


Figure 6. Distribution of relative difference (%) between different TO₃ data sets and between the corresponding surface UVI modelled at all SZA.

5.1 Radiative amplification factor

To study the sensitivity of the modelling output to TO₃, we need to understand the variability of UVI and ozone. The scaling function between UVI and ozone is commonly described as the radiative amplification factor (RAF). Following Madronich (1993), we define the RAF as a power law:

$$\frac{UVI_{t_1}}{UVI_{t_2}} = \left(\frac{TO_{3t_1}}{TO_{3t_2}} \right)^{-RAF_P} \quad (5)$$

$$RAF_P = \ln \left(\frac{UVI_{t_1}}{UVI_{t_2}} \right) / \ln \left(\frac{TO_{3t_2}}{TO_{3t_1}} \right). \quad (6)$$

From there we can take every total ozone column measurement at a specific date t and the corresponding UVI and compute ratio.

If we derive the power law we can obtain a linear form of the RAF (Booth and Madronich, 1994):

$$RAF_L = - \frac{\Delta UVI}{UVI_{t_1}} / \frac{\Delta TO_3}{TO_{3t_1}}. \quad (7)$$

Since the derivative is local, only a small percent change should be used, here we choose to select a percent change smaller than 10 %. We proceed by considering every total ozone column measurement at a specific date t and the corresponding UVI. We then compute the relative difference for a specific SZA interval between all pairs of UVI and TO₃, such as at two dates t_1 and t_2 :

$$\frac{\Delta UVI}{UVI_{t_1}} = \frac{UVI_{t_1} - UVI_{t_2}}{UVI_{t_1}} \quad (8)$$

$$\frac{\Delta TO_3}{TO_{3t_1}} = \frac{TO_{3t_1} - TO_{3t_2}}{TO_{3t_1}}. \quad (9)$$

Influence of aerosol climatology against aerosol daily measurements for UVI modeling

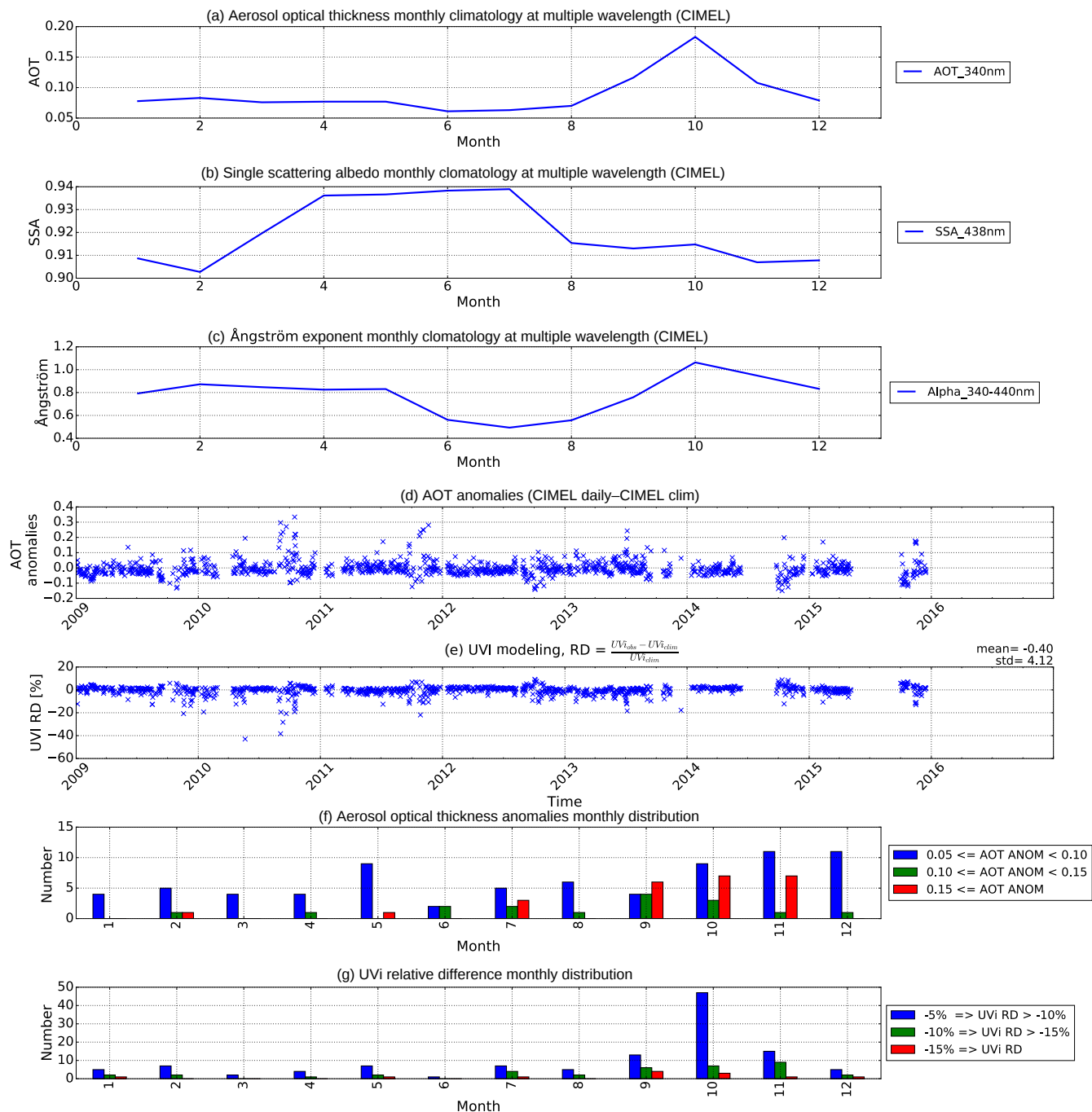


Figure 7. Impact of aerosols on UVI modelling. (a) AOT monthly climatology. (b) SSA monthly climatology. (c) Ångström exponent monthly climatology. (d) AOT anomalies during the study period. (e) UVI relative difference between a run with climatological aerosols and daily aerosols. (f) AOT anomalies distribution. (g) UVI relative difference monthly distribution.

In previous works, Booth and Madronich (1994) found a RAF_L of 1.1 from broadband measurements in Antarctica. More recently, from a theoretical point of view, Herman (2010) found a RAF_P of 1.25 at low SZA, decreasing to 1.1 at higher SZA. These values correspond to a mid-

latitude profile. Bodhaine et al. (1997) analysed 1 year of UV measurements at Mauna Loa, Hawaii and found RAF_P values between about 1.3 at a SZA of 15° and 0.6 at 85° SZA. At a SZA of 45° , while Bodhaine et al. (1997) found a

Radiative amplification factor: TO3 and UVi

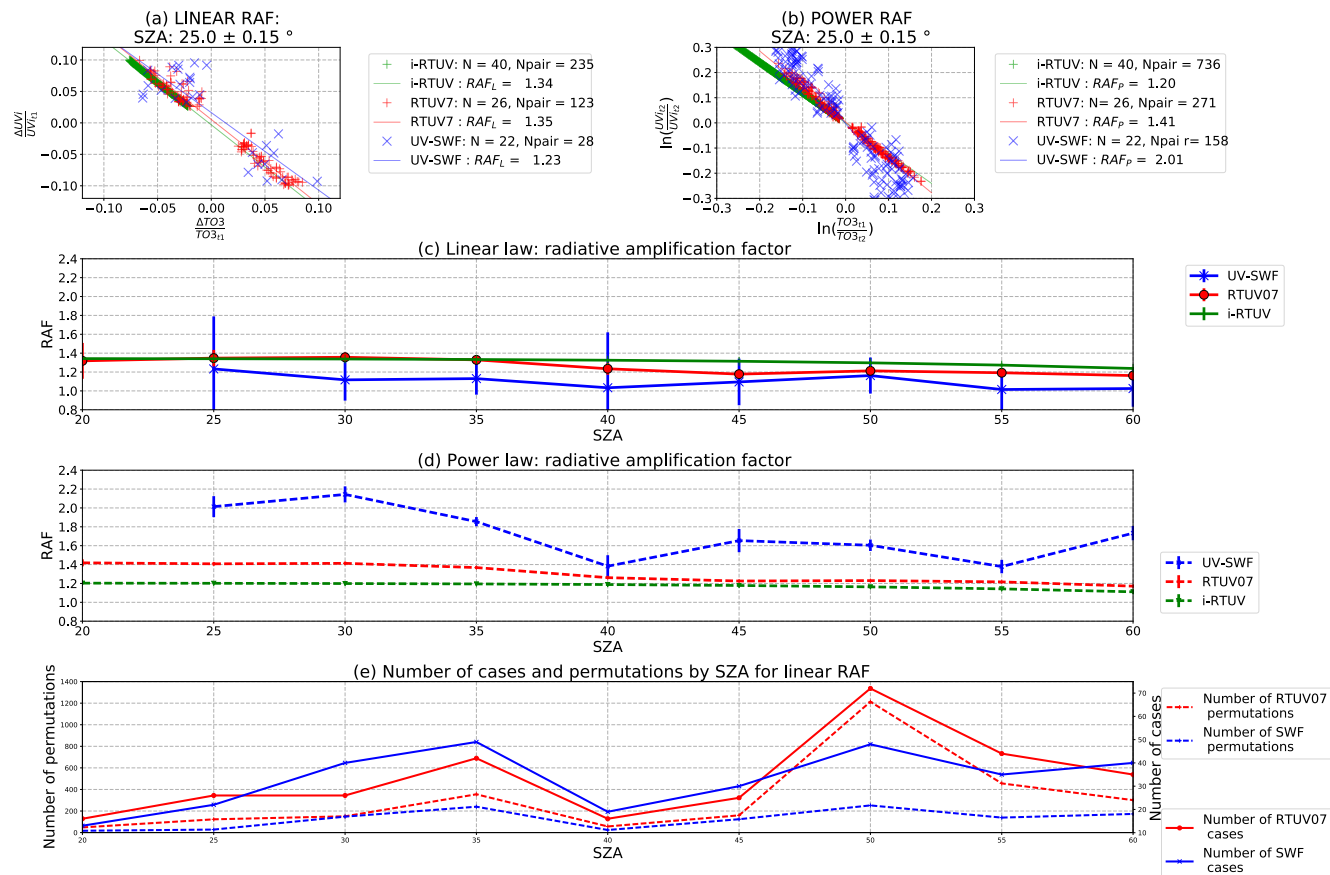


Figure 8. Radiative amplification factor. **(a)** $\Delta UV_i / UV_{i1}$ versus $\Delta TO_3 / TO_{3i1}$ for UV-SWF (blue crosses), RTUV07 (red crosses) and i-RTUV (green crosses). Linear fitted functions are in coloured curves of corresponding colours. **(b)** Same as panel **(a)** but for a power-law fit between $\ln(UV_i / UV_{i1})$ and $\ln(TO_{3i} / TO_{3i1})$. **(c, d)** Linear and power RAF_L and RAF_P deduced from the previous fit for a varying SZA with a 2σ dispersion bar. **(e)** Number of permutations (N_{pair}) and number of cases (N) available in comparison to SZA for the linear RAF.

RAF_P of 1.38 ± 0.20 , McKenzie et al. (1991) found a RAF_P of 1.25 ± 0.20 at Lauder, New Zealand (45° S).

Here, both RAF_L and RAF_P are calculated for an ideal modelling case (i-RTUV) with SER O3XS and Dobber ET spectrum, for the observations (UV-SWF) and for a real-condition modelling case (RTUV07) where we fixed every parameter except TO_3 and monthly ozone and temperature profiles. Observations are multiplied by the inverse of the ESF to bring them to constant ESD and be more similar with modelling at constant ESD. The first objective is to evaluate the RAF of TO_3 on the UVI for the three cases, to see how they compare to each other and to determine whether RTUV07 is close to the observations (UV-SWF) by being able to reproduce the RAF of TO_3 . The second objective is to compare the RAF s found here with those found previously in other studies at other sites.

In Fig. 8a, $\Delta UV_i / UV_{i1}$ is plotted against $\Delta TO_3 / TO_{3i1}$ for a SZA of $25^\circ \pm 0.1^\circ$ for the three cases. The best-fitting curve of each case is obtained from a least squares fitting method,

from which RAF_L is also deduced (Booth and Madronich, 1994). This range of SZAs is chosen due to the availability of measurements. Because of the annual variation of the SZA, lower values of SZA occur during the rainy season, when we filter out most of our data. UV-SWF is in blue, RTUV07 in red and i-RTUV in green. In Fig. 8b, the same method is used to retrieve RAF_P (Madronich, 1993). Figure 8c and d represent RAF_L and RAF_P plotted against SZA for the three cases, with a 2σ dispersion bar. Figure 8e represents the number of cases and permutations used for the regression. Even if the number of permutations which are used for computation of the RAF s are high, the number of cases compared with each other are quite low.

For i-RTUV, RAF_P (dashed green line) are at about 1.20 for a SZA of 25° decreasing to 1.11 for a SZA of 60° , RAF_L (solid green line) decreases from 1.34 to 1.23. Between the same SZAs, while RAF_P derived from the clear-sky observations (UV-SWF, dashed blue line) decreases from 2.01 ± 0.11 to 1.73 ± 0.07 , RAF_L (solid blue line) de-

creases from 1.23 ± 0.27 to 1.02 ± 0.09 . From RTUV07, RAF_p (dashed red line) ranged between 1.40 ± 0.02 and 1.17 ± 0.07 . At a SZA of 45° from the observations, the RAF_p obtained was 1.65 ± 0.12 . This value is higher than the one that found by Bodhaine et al. (1997), of 1.38 ± 0.20 , for a similar site in the tropics.

RAF tends to decrease as SZA increases. When the SZA increases the path travelled through the atmosphere will be longer and other processes, such as Rayleigh scattering, will have a higher impact on the UVI. Since the absorption effectiveness of tropospheric ozone relative to stratospheric ozone depends on SZA (Brühl and Crutzen, 1989), the ozone distribution and the temperature profile have an impact on the RAF value. This is one of the reasons why both RAFs deduced from i-RTUV cases present a smooth line. In i-RTUV, nothing changes except TO₃ and SZA. However, in UV-SWF, variations in aerosols, TNO₂, ESD, OP and TP between t_1 and t_2 are naturally included. In RTUV07 only TO₃, SZA, ozone and temperature profiles are not constant. The impact of OP and TP can be appreciated if we look at the difference between RTUV07 and i-RTUV.

RAF_L determined by the observations (UV-SWF) is always lower than i-RTUV, by about 0.2. However, RAF_p determined by the observations (UV-SWF) is higher than the idealised case by about 0.6 at low SZA, between 25 and 35° . It is closer at higher SZA. The result from the observations should be considered carefully. When two cases are compared the relative difference between every other parameters associated with these cases (such as AOT, TNO₂ and OP) are selected to be smaller than 10 %. Uncertainties are still important for the corresponding TO₃, AOT, TNO₂, OP, TP and clear-sky filtering associated with each UVI measurement. It is difficult to determine whether observations are better represented by a linear law or a power law as dispersion is high and the number of cases are low (Fig. 8e) for both.

5.2 Validation against observed clear-sky UVI

In order to validate UVI modelling for the southern tropics, we compared the output of multiple model cases against UVI clear-sky measurements. Table 4 presents relative difference and standard deviation for the six Reunion Tropospheric Ultraviolet (RTUV) model cases.

We define the relative difference between RTUV and UV-SWF as

$$RD[\%] = 100 \times \frac{UVI_{RTUV} - UVI_{OBS}}{UVI_{OBS}}. \quad (10)$$

The closest agreement between the measurements and model is found for the RTUV03 case. This corresponds to a configuration with daily aerosol measurements, Dobber ET spectrum, TO₃ from SBUV and SER ozone cross sections. We compared measurements at $SZA \leq 60^\circ$. Of the three sets of ozone total column, the agreement between the measured and modelled UVIs is optimal when SBUV data set is used

as input (RTUV03), with a mean relative difference (MRD) of 0.43 ± 5.60 %. It is 0.11 % lower than RTUV02 (OMI) and 0.51 % lower than the run with SAOZ measurements as input (RTUV01). Standard deviations (SDs) are about the same for the five cases, around 5.7 %. RTUV03 obtains the lowest median (MED) at 0.44 %. Nonetheless, some of those results are not significant because they are lower than the uncertainty of the UVI measurements (± 5 %).

For different extraterrestrial spectra in RTUV01 (Dobber et al., 2008) and RTUV05 (Chance and Kurucz, 2010), a 3.24 % difference is found between both MRD and MED. The difference is consistent with the one found in Sect. 4.2.1.

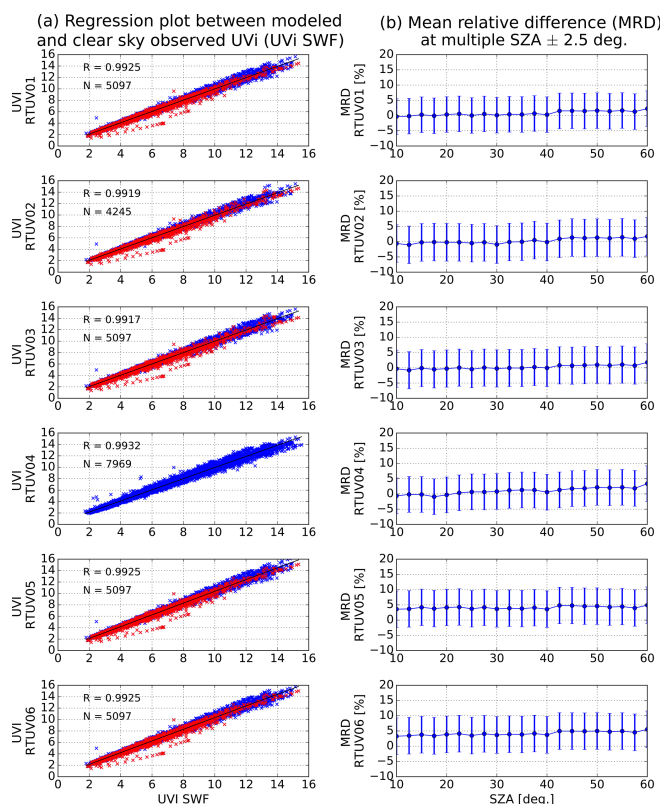
The influence of the choice of ozone cross sections on UVI modelled can be analysed with RTUV01 (SER) and RTUV06 (BDM). The first is 3.44 % lower than the second. The difference between the two is higher here than the difference found previously (Sect. 4.2.2) in an idealised run, where only one profile of temperature and one of ozone were used for the sensitivity test. BDM O3XS (Brion et al., 1998 and Malicet et al., 1995) were calibrated for four temperatures, 295, 243, 228 and 218 K, while SER was run with temperatures ranging from 193 to 293 K with a 10 K step. Since UVI is sensitive to the ozone and temperature profiles, different O3XS can induce higher differences in surface UVI than we calculated previously during the sensitive test. This needs to be investigated further, in particular the impact of O3XS and ozone and temperature profiles on the surface UVI.

A linear regression representation and mean relative difference plots versus SZA are given in Fig. 9 for all RTUV cases. On all subplots of Fig. 9a, data corresponding to a daily mean AOT higher than the monthly mean AOT are represented in red. All conditions are in blue. RTUV01 and RTUV04 use different aerosol inputs, RTUV01 was modelled with an aerosol daily mean and RTUV04 used a monthly climatology. The MRD of RTUV01 is lower than that of RTUV04, whereas the opposite is true for the MED. Unlike the mean, the median is insensitive to outliers. In Sect. 4.2.4 it was noted that, even if MRD is very low, there are also singular peaks that can reach up to 30 % MRD. These are the outliers that are taken into account in RTUV04. Close examination of Fig. 9a reveals consistent outliers under the fitted curves for RTUV01, 02, 03, 05 and 06, which correspond to an underestimation of the UVI (due to an overestimation of AOT). For RTUV04, which is the case with monthly climatological values of AOT, there are of course only blue crosses. Bottom outliers on every other RTUV case can be explained by the use of an AOT daily mean. Since the Cimel sun photometer only takes measurements when the sun is directly visible, and we have previously shown a strong presence of clouds, using an AOT monthly climatology can sometimes be better than the daily mean.

The optimised input configuration is RTUV03. The corresponding statistical values are consistent with those found in other studies. Badosa et al. (2007) found a MRD lower than 10 % concerning observations with a similar instrument and

Table 4. RTUV Cases against clear-sky UVI observations.

Parameter	RTUV01	RTUV02	RTUV03	RTUV04	RTUV05	RTUV06
Mean relative difference (%)	0.94	0.54	0.43	1.29	4.18	4.38
Standard deviation	5.60	5.86	5.83	5.32	5.77	5.78
Median of the RD	1.07	0.70	0.44	0.73	4.31	4.51

**Figure 9.** Comparisons of RTUV modelling cases with UVI-SWF observations. **(a)** UVI RTUV against UVI SWF. Linear regression shown with a black line, all RTUV data against UVI SWF are marked with blue crosses, and RTUV data modelled with an AOT higher than the monthly mean AOT are represented in red. **(b)** Mean relative difference for a varying SZA with dispersion bar $\pm 1 \sigma$ (standard deviation).

filtering techniques at Lauder (45.04° S), Boulder (40.01° N), Mauna Loa (19.53° N) and Melbourne (37.63° S). Mauna Loa can be compared with Reunion Island as both sites are in the tropics and have similar weather conditions. MRD between Badosa et al. (2007) model cases and observations ranged from -1.8 to 3.6 %. In the present study comparable values of MRD were found (ranging from 0.43 to 4.38 %, which is well within the modelling uncertainty of 5 %). The filtering method at Mauna Loa was probably stronger due to the use of a whole sky imager.

Diurnal cycles of RD between RTUV01 and UV-SWF are represented in Fig. 10 for the entire year and for two seasons,

austral winter (June, July and August) and austral summer (December, January and February). Since the SAOZ instrument is colocated with the Bentham spectrometer we chose to use RTUV01 for the comparison even if RTUV03 gave better results. RD tends to increase during the day for the whole year and both seasons due to the formation of clouds. The standard deviation is higher in the afternoon during summer due to the strong presence of clouds in this period (see Fig. 2). Since there are fewer clear-sky measurements for this period, the comparison is statistically weaker here, which increased the dispersion. In winter, there is more data available and less filtering (see Fig. 2), so standard deviations are smaller.

In Fig. 11 the diurnal cycle of the UVI seasonal mean and maximum are represented. Consistent results are obtained. Mean non-filtered UVIs are always lower than mean clear-sky values. As mentioned before, the model tends to overestimate clear-sky UVI. Both filtered data sets (UVI-SWF and UVI-SYNOP) are in agreement: UVI-SYNOP diverges from UVI-SWF during the afternoon for the austral summer but, as stated before, SYNOP observer reports are less accurate than SWF cloud fractions. This is probably due to the distance between SYNOP observer reports, which are about 10 km from SWF, and UVI measurements, and the sampling difference: 1 h for SYNOP, 1 min for SWF and 15 min for UV measurements. It would be very interesting to add an all-sky camera to the same site for more accurate indications of cloudiness. Austral summer is usually a very cloudy season in this southern tropical region. A maximum of UVI appears for unfiltered data (green dashed line) with strong values, usually up to 18 , around $08:00$ UTC (local noon time). This is probably due to UV enhancement by cloud fractional sky cover. This phenomenon has been described before, for example by Calbó et al. (2005) and Jégou et al. (2011), and its quantification in the southern tropics will be the subject of a future study.

6 Conclusions

The physics of radiative transfer is well understood but the modelling of surface UV radiation is still a challenge since multiple parameters need to be taken into account. For clouds, we can simply filter observations and work under clear-sky conditions.

We investigated the sensitivity of clear-sky UV radiation modelling to various input parameters. The impact of dif-

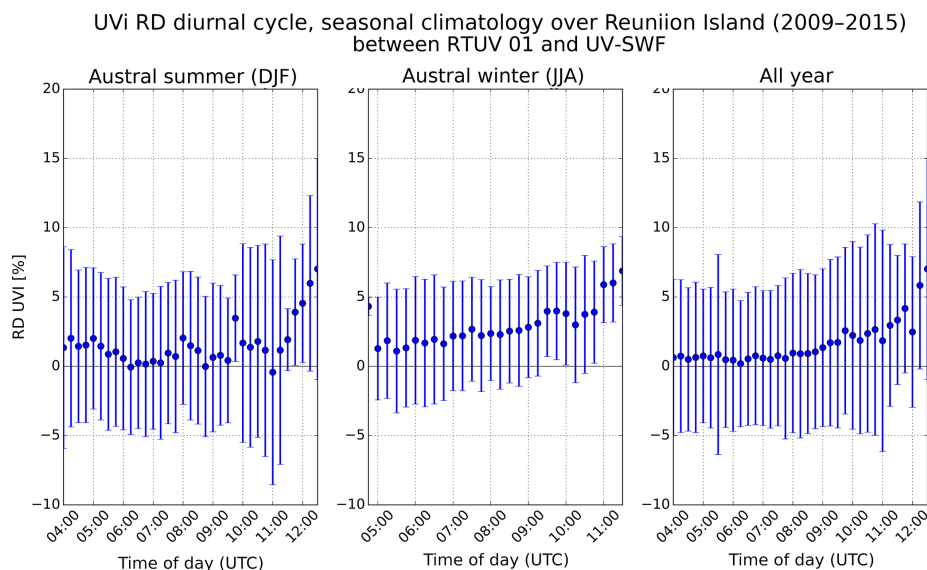


Figure 10. Diurnal cycle of UVI relative difference between RTUV01 and UV-SWF for austral winter, summer and all year. Climatological values of UVI relative differences obtained every 15 min are in blue dots with dispersion bar ($\pm 1\sigma$, standard deviation).

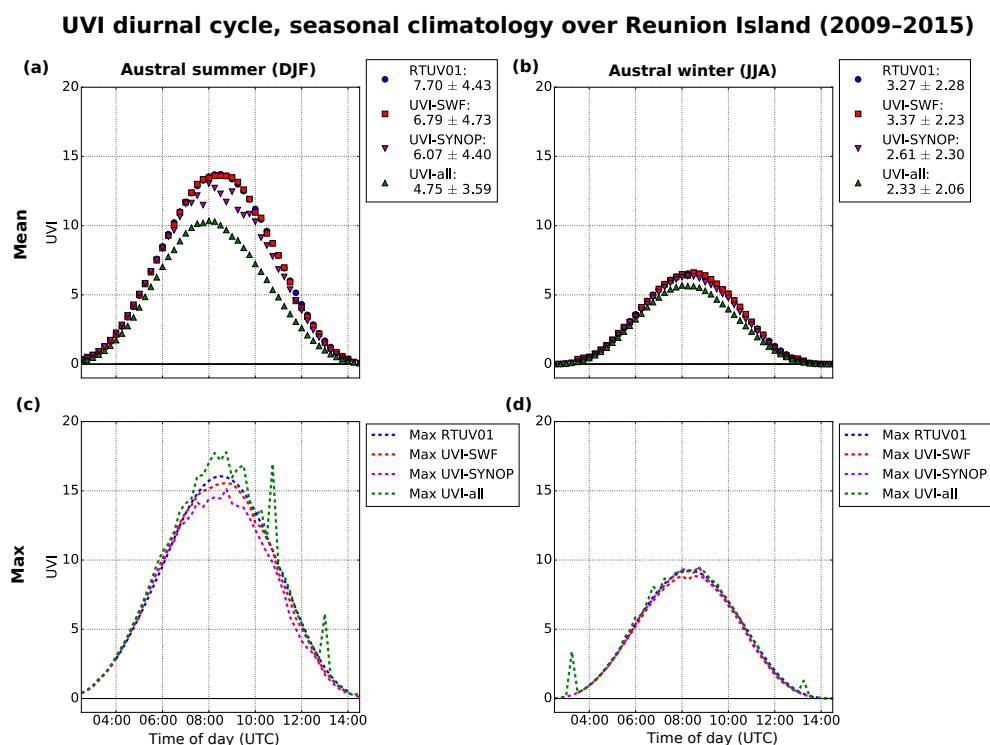


Figure 11. UVI diurnal cycle, seasonal climatology. Mean diurnal UVI on the top row and maximum diurnal UVI on the bottom row. Austral summer on the left side and austral winter on the right. RTUV01 in blue, UVI-SWF in red, UVI-SYNOP in purple and UVI-ALL in green.

ferent extraterrestrial spectra or ozone cross sections has not been investigated previously. For the extraterrestrial spectrum, we found a relative difference between 2.7 and 3.5 % depending on the total ozone column and solar zenith angle. For the ozone cross sections, the relative difference ranged

from 2.4 to 2.9 %, also with a dependency on total ozone column and solar zenith angle.

The impact was higher for low solar zenith angle and low total ozone column during the diurnal and seasonal maximum of UVI, i.e. when the burning efficiency of the radia-

tion on human skin is higher. This difference was found to be dependent on the ozone and temperature profile.

For total ozone column and aerosols, the results were close to those of other studies carried out at different latitudes (Badosa et al., 2007). Badosa et al. (2007) also investigated the impact of ozone total column and aerosol optical thickness for four different sites: Lauder, New Zealand (45.04° S, 169.68° E); Boulder, Colorado (40.01° N, 105.25° W); Mauna Loa, Hawaii (19.53° N, 155.58° W); and Melbourne, Australia (37.69° S, 144.95° E). They found that different sources of input for total ozone column (SBUV or TOMS satellite measurements or Dobson ground measurements) had an impact of ~ 2 to 5 % on the surface UVI modelled. Here we found monthly mean differences between -2.5 and 7.5 % (Fig. 4). The mean difference in UVI sensitivity to the total ozone column was smaller than 0.4 % between any two data sets. UVI RTUV01 (SAOZ) was higher than RTUV02 (OMTO3). OMTO3 was on average the lowest total ozone column, which led to the highest modelled values of UVI. Brogniez et al. (2016) found that OMI-UVI products were higher than local measurements of UVI on Reunion Island with a mean relative bias of about 2 % and median relative bias of 4 %. OMI-UVI products are based on the OMTO3 product, but also take other OMI products (aerosols, surface albedo) into account (Krotkov et al., 2002). Here, using OMTO3 as the only input parameter to retrieve UVI did not produce a strong positive bias. Following the same study for aerosol (Badosa et al., 2007), it was found that AOT was very low at Mauna Loa, with values centred around 0.08, and the ratio between UVI modelled with and without aerosol was always between 0.96 and 1.02. Here, we found small mean differences between UVI modelled using daily measurements and monthly climatological values of AOT (about -0.40 %), but strong peaks in AOT could be missed and would yield UVI overestimations of ~ 30 %. Aerosol monthly climatology could be used for climatic studies of surface UVI but should be avoided for short-term predictions and preventive action for the population concerned, especially during the biomass burning season.

We also investigated the relationship between total ozone column and UVI variations through the radiative amplification factor (from a linear and a power law). At a SZA of 25° for the observations (UVI-SWF), model (RTUV07) and idealised model (i-RTUV), RAF_L of respectively 1.23, 1.34 and 1.34 was found. At a higher SZA, 60° lower RAF_L were found at 1.02, 1.16 and 1.23. RAF_p was higher than in other studies (Booth and Madronich, 1994; Herman, 2010) but these were done at higher latitudes. Here we found a RAF_p of 1.65 ± 0.12 for UVI-SWF at a SZA of 45°. Bodhaine et al. (1997) found 1.38 ± 0.2 for a similar site in the tropics. In general RAF tends to decrease as SZA increases. The significant dispersions on the observations make it impossible to make conclusions on the linear or power relation between total ozone column and UVI.

As previously noted, RAF tends to decrease as SZA increases, presumably because of various effects such as the influence of ozone, temperature profiles and Rayleigh scattering, which would reduce the impact of TO_3 on UVI.

Clear-sky UVI in the southern tropics was modelled with a MRD of 0.43 ± 5.83 up to 4.38 ± 5.78 % when comparing to ground-based measurements, which is within the modelling uncertainty of 5 %. MED values ranged from 0.44 to 4.51 %.

Monthly climatology of filtered and unfiltered clear-sky conditions revealed a few maximum values of UVI during all-sky conditions. This phenomenon is due to multiple reflections on cloud edges in the case of broken cloud cover.

Future study will be needed to take this into account. TUV is a one-dimensional model, but to consider backscattering we need to have at least two-dimensional radiative transfer modelling. Following these results, the next step will be a projection of UV changes in the southern tropics.

Data availability. The data sets generated and/or analysed during the current study are available from the corresponding author on request.

The Supplement related to this article is available online at <https://doi.org/10.5194/acp-18-227-2018-supplement>.

Competing interests. The authors declare that they have no conflict of interest.

Special issue statement. This article is part of the special issue “Quadrennial Ozone Symposium 2016 – Status and trends of atmospheric ozone (ACP/AMT inter-journal SI)”. It is a result of the Quadrennial Ozone Symposium 2016, Edinburgh, United Kingdom, 4–9 Sep 2016.

Acknowledgements. The authors acknowledge the Région Réunion, CNRS and Université de la Réunion for support and contribution within the research infrastructure OPAR (Observatoire de Physique de l’Atmosphère à la Réunion). OPAR is currently funded by CNRS (INSU) and Université de la Réunion and managed by OSU-R (Observatoires des Sciences de l’Univers à la Réunion, UMS 3365). The authors acknowledge Photon Aeronet and the NDACC network for the aerosols and ozone data. Marcel Dobber (KNMI, NL) is acknowledged for providing the Dobber et al. (2008) extraterrestrial solar spectrum.

Edited by: Stelios Kazadzis

Reviewed by: two anonymous referees

References

- Badosa, J., McKenzie, R. L., Kotkamp, M., Calbó, J., González, J. A., Johnston, P. V., O'Neill, M., and Anderson, D. J.: Towards closure between measured and modelled UV under clear skies at four diverse sites, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2817–2837, <https://doi.org/10.5194/acp-7-2817-2007>, 2007.
- Bais, A. F., Zerefos, C. S., Meleti, C., Ziomas, I. C., and Tourpali, K.: Spectral measurements of solar UVB radiation and its relations to total ozone, SO₂, and clouds, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 98, 5199–5204, <https://doi.org/10.1029/92JD02904>, 1993.
- Bais, A. F., Tourpali, K., Kazantzidis, A., Akiyoshi, H., Bekki, S., Braesicke, P., Chipperfield, M. P., Dameris, M., Eyring, V., Garny, H., Iachetti, D., Jöckel, P., Kubin, A., Langematz, U., Mancini, E., Michou, M., Morgenstern, O., Nakamura, T., Newman, P. A., Pitari, G., Plummer, D. A., Rozanov, E., Shepherd, T. G., Shibata, K., Tian, W., and Yamashita, Y.: Projections of UV radiation changes in the 21st century: impact of ozone recovery and cloud effects, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 7533–7545, <https://doi.org/10.5194/acp-11-7533-2011>, 2011.
- Bais, A. F., McKenzie, R. L., Bernhard, G., Aucamp, P. J., Ilyas, M., Madronich, S., and Tourpali, K.: Ozone depletion and climate change: Impacts on UV radiation, *Photochem. Photobio. S.*, 14, 19–52, <https://doi.org/10.1039/c4pp90032d>, 2015.
- Baldy, S., Ancellet, G., Bessafi, M., Badr, A., and Luk, D. L. S.: Field observations of the vertical distribution of tropospheric ozone at the island of Reunion (southern tropics), *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 101, 23835–23849, <https://doi.org/10.1029/95jd02929>, 1996.
- Bass, A. M. and Paur, R. J.: The ultraviolet cross-sections of ozone. I. The measurements. II – Results and temperature dependence, in: *Atmospheric ozone; Proceedings of the Quadrennial*, edited by: Zerefos, C. S. and Ghazi, A., 606–616, Springer Netherlands, Dordrecht, the Netherlands, 1985.
- Bhartia, P. K. and Wellemeyer, C.: TOMS-V8 total O₃ algorithm, OMI Algorithm Theoretical Basis Document, 2, 15–31, 2002.
- Bodhaine, B. A., Dutton, E. G., Hofmann, D. J., McKenzie, R. L., and Johnston, P. V.: UV measurements at Mauna Loa: July 1995 to July 1996, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 102, 19265–19273, <https://doi.org/10.1029/97jd01391>, 1997.
- Booth, C. R. and Madronich, S.: Radiation amplification factors: Improved formulation accounts for large increases in ultraviolet radiation associated with Antarctic ozone depletion, in: *Ultraviolet Radiation in Antarctica: Measurements and Biological Effects*, edited by: Weiler, C. S. and Penhale, P. A., American Geophysical Union, Washington, D. C., <https://doi.org/10.1029/AR062p0039>, 1994.
- Boucher, O., Randall, D., Artaxo, P., Bretherton, C., Feingold, G., Forster, P., Kerminen, V.-M., Kondo, Y., Liao, H., Lohmann, U., Rasch, P., Satheesh, S., Sherwood, S., Stevens, B., and Zhang, X.: Clouds and Aerosols, climate change 2013: the physical science basis. contribution of working group I to the fifth assessment report of the intergovernmental panel on climate change, section 7, Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, USA, 571–658, <https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324.016>, 2013.
- Brion, J., Chakir, A., Charbonnier, J., Daumont, D., Parisse, C., and Malicet, J.: Absorption spectra measurements for the ozone molecule in the 350–830 nm region, *J. Atmos. Chem.*, 30, 291–299, 1998.
- Brognez, C., Auriol, F., Deroo, C., Arola, A., Kujanpää, J., Sauvage, B., Kalakoski, N., Pitkanen, M. R. A., Catalfamo, M., Metzger, J.-M., Tournois, G., and Da Conceicao, P.: Validation of satellite-based noontime UVI with NDACC ground-based instruments: influence of topography, environment and satellite overpass time, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 15049–15074, <https://doi.org/10.5194/acp-16-15049-2016>, 2016.
- Brühl, C. and Crutzen, P. J.: On the disproportionate role of tropospheric ozone as a filter against solar UV-B radiation, *Geophys. Res. Lett.*, 16, 703–706, <https://doi.org/10.1029/GL016i007p00703>, 1989.
- Butchart, N.: The Brewer-Dobson circulation, *Rev. Geophys.*, 52, 157–184, <https://doi.org/10.1002/2013rg000448>, 2014.
- Butler, A. H., Daniel, J. S., Portmann, R. W., Ravishankara, A. R., Young, P. J., Fahey, D. W., and Rosenlof, K. H.: Diverse policy implications for future ozone and surface UV in a changing climate, *Environ. Res. Lett.*, 11, 064017, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/11/6/064017>, 2016.
- Calbó, J., Pagès, D., and González, J.-A.: Empirical studies of cloud effects on UV radiation: A review, *Rev. Geophys.*, 43, RG2002, <https://doi.org/10.1029/2004RG000155>, 2005.
- Cede, A., Blumthaler, M., Luccini, E., Piacentini, R. D., and Nuñez, L.: Effects of clouds on erythema and total irradiance as derived from data of the Argentine Network, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 76-1–76-4, <https://doi.org/10.1029/2002gl015708>, 2002.
- Chance, K. and Kurucz, R.: An improved high-resolution solar reference spectrum for earth's atmosphere measurements in the ultraviolet, visible, and near infrared, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 111, 1289–1295, 2010.
- Commission Internationale de l'Eclairage: CIE STANDARD: Erythema Reference Action Spectrum and Standard Erythema Dose, CIE S007E-1998, CIE Central Bureau, Vienna, Austria, 1998.
- Correa, M. d. P., Godin-Beekmann, S., Haeffelin, M., Bekki, S., Saiag, P., Badosa, J., Jegou, F., Pazmino, A., and Mahe, E.: Projected changes in clear-sky erythema and vitamin D effective UV doses for Europe over the period 2006 to 2100, *Photochem. Photobio. S.*, 12, 1053–1064, <https://doi.org/10.1039/C3PP50024A>, 2013.
- Dobber, M., Voors, R., Dirksen, R., Kleipool, Q., and Levelt, P.: The high-resolution solar reference spectrum between 250 and 550 nm and its application to measurements with the Ozone Monitoring Instrument, *Sol. Phys.*, 249, 281–291, 2008.
- Dubovik, O., Smirnov, A., Holben, B. N., King, M. D., Kaufman, Y. J., Eck, T. F., and Slutsker, I.: Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 105, 9791–9806, <https://doi.org/10.1029/2000jd900040>, 2000.
- Elterman, L.: UV, Visible, and IR Attenuation for Altitudes to 50 km, 1968, Tech. rep., DTIC Document, Environmental Research Paper No. 285, Air Force Cambridge Research Laboratories, Hanscom Air Force Base, 1968.
- Erickson III, D. J., Sulzberger, B., Zepp, R. G., and Austin, A. T.: Effects of stratospheric ozone depletion, solar UV radiation, and climate change on biogeochemical cycling: interactions and feedbacks, *Photochem. Photobio. S.*, 14, 127–148, <https://doi.org/10.1039/C4PP90036G>, 2015.
- Froidevaux, L., Jiang, Y. B., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Browell, E. V., Hair, J. W., Avery, M. A.,

- McGee, T. J., Twigg, L. W., Sumnicht, G. K., Jucks, K. W., Margitan, J. J., Sen, B., Stachnik, R. A., Toon, G. C., Bernath, P. F., Boone, C. D., Walker, K. A., Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Fuller, R. A., Manney, G. L., Schwartz, M. J., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Perun, V. S., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., and Wagner, P. A.: Validation of Aura Microwave Limb Sounder stratospheric ozone measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S20, <https://doi.org/10.1029/2007jd008771>, 2008.
- Gorshchelev, V., Serdyuchenko, A., Weber, M., Chehade, W., and Burrows, J. P.: High spectral resolution ozone absorption cross-sections – Part 1: Measurements, data analysis and comparison with previous measurements around 293 K, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 609–624, <https://doi.org/10.5194/amt-7-609-2014>, 2014.
- Hader, D.-P., Kumar, H. D., Smith, R. C., and Worrest, R. C.: Effects of solar UV radiation on aquatic ecosystems and interactions with climate change, *Photochem. Photobio. S.*, 6, 267–285, <https://doi.org/10.1039/B700020K>, 2007.
- Hegglin, M. I. and Shepherd, T. G.: Large climate-induced changes in ultraviolet index and stratosphere-to-troposphere ozone flux, *Nat. Geosci.*, 2, 687–691, <https://doi.org/10.1038/ngeo604>, 2009.
- Herman, J. R.: Use of an improved radiation amplification factor to estimate the effect of total ozone changes on action spectrum weighted irradiances and an instrument response function, *J. Geophys. Res.*, 115, D23119, <https://doi.org/10.1029/2010jd014317>, 2010.
- Herman, J. R., Bhartia, P. K., Torres, O., Hsu, C., Seftor, C., and Celarier, E.: Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus 7/TOMS data, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 102, 16911–16922, <https://doi.org/10.1029/96JD03680>, 1997.
- Holick, M. F., MacLaughlin, J., Clark, M., Holick, S., Potts, J., Anderson, R., Blank, I., Parrish, J., and Elias, P.: Photosynthesis of previtamin D3 in human skin and the physiologic consequences, *Science*, 210, 203–205, 1980.
- Jégou, F., Godin-Beekman, S., Corrêa, M. P., Brogniez, C., Auriol, F., Peuch, V. H., Haeffelin, M., Pazmino, A., Saiag, P., Goutail, F., and Mahé, E.: Validity of satellite measurements used for the monitoring of UV radiation risk on health, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 13377–13394, <https://doi.org/10.5194/acp-11-13377-2011>, 2011.
- Kazadzis, S., Kouremeti, N., Bais, A., Kazantzidis, A., and Meleti, C.: Aerosol forcing efficiency in the UVA region from spectral solar irradiance measurements at an urban environment, *Ann. Geophys.*, 27, 2515–2522, <https://doi.org/10.5194/angeo-27-2515-2009>, 2009.
- Koelemeijer, R., De Haan, J., and Stammes, P.: A database of spectral surface reflectivity in the range 335–772 nm derived from 5.5 years of GOME observations, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 108, 4070, <https://doi.org/10.1029/2002JD002429>, 2003.
- Koepeke, P., Bais, A., Balis, D., Buchwitz, M., Backer, H., Cabo, X., Eckert, P., Eriksen, P., Gillotay, D., Heikkilä, A., Koskela, T., Lapeta, B., Litynska, Z., Lorente, J., Mayer, B., Renaud, A., Rugaber, A., Schauburger, G., Seckmeyer, G., Seifert, P., Schmalwieser, A., Schwander, H., Vanicek, K., and Weber, M.: Comparison of models used for UV index calculations, *Photochem. Photobiol.*, 67, 657–662, 1998.
- Krotkov, N. A., Herman, J., Bhartia, P. K., Seftor, C., Arola, A., Kaurolo, J., Taalas, P., and Vasilkov, A.: OMI Surface UV Irradiance Algorithm, in: OMI Algorithm Theoretical Basis Document, Volume III: Clouds, Aerosols, and Surface UV Irradiance, ATBD-OMI-03, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, Maryland, USA, 2002.
- Krzyścin, J. W. and Puchalski, S.: Aerosol impact on the surface UV radiation from the ground-based measurements taken at Belsk, Poland, 1980–1996, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 103, 16175–16181, <https://doi.org/10.1029/98JD00899>, 1998.
- Lacagnina, C., Hasekamp, O. P., Bian, H., Curci, G., Myhre, G., van Noije, T., Schulz, M., Skeie, R. B., Takemura, T., and Zhang, K.: Aerosol single-scattering albedo over the global oceans: Comparing PARASOL retrievals with AERONET, OMI, and AeroCom models estimates, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 120, 9814–9836, <https://doi.org/10.1002/2015jd023501>, 2015.
- Lee-Taylor, J., Madronich, S., Fischer, C., and Mayer, B.: A Climatology of UV Radiation, 1979–2000, 65S–65N, UV Radiation in Global Climate Change, Springer Berlin Heidelberg, 1–20, https://doi.org/10.1007/978-3-642-03313-1_1, 2010.
- Long, C. N. and Ackerman, T. P.: Identification of clear skies from broadband pyranometer measurements and calculation of downwelling shortwave cloud effects, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 105, 15609–15626, 2000.
- Long, C. N., Ackerman, T. P., Gaustad, K. L., and Cole, J.: Estimation of fractional sky cover from broadband shortwave radiometer measurements, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 111, D11204, <https://doi.org/10.1029/2005JD006475>, 2006.
- MacLaughlin, J. A., Anderson, R., and Holick, M. F.: Spectral character of sunlight modulates photosynthesis of previtamin D3 and its photoisomers in human skin, *Science*, 216, 1001–1003, 1982.
- Madronich, S.: UV radiation in the natural and perturbed atmosphere, Lewis Publisher, Boca Raton, USA, 1993.
- Mahé, E., Beauchet, A., de Paula Corrêa, M., Godin-Beekmann, S., Haeffelin, M., Bruant, S., Fay-Chatelard, F., Jégou, F., Saiag, P., and Aegerter, P.: Outdoor sports and risk of ultraviolet radiation-related skin lesions in children: Evaluation of risks and prevention., *Brit. J. Dermatol.*, 165, 360–367, <https://doi.org/10.1111/j.1365-2133.2011.10415.x>, 2011.
- Mahé, E., Corrêa, M. P., Godin-Beekmann, S., Haeffelin, M., Jégou, F., Saiag, P., and Beauchet, A.: Evaluation of tourists' UV exposure in Paris., *J. Eur. Acad. Dermatol.*, 27, 294–304, <https://doi.org/10.1111/j.1468-3083.2012.04637.x>, 2013.
- Malicet, J., Daumont, D., Charbonnier, J., Parisse, C., Chakir, A., and Brion, J.: Ozone UV spectroscopy. II. Absorption cross-sections and temperature dependence, *J. Atmos. Chem.*, 21, 263–273, 1995.
- Matsumura, Y. and Ananthaswamy, H. N.: Toxic effects of ultraviolet radiation on the skin, *Toxicol. Appl. Pharm.*, 195, 298–308, 2004.
- Mayer, B., Kylling, A., Madronich, S., and Seckmeyer, G.: Enhanced absorption of UV radiation due to multiple scattering in clouds: Experimental evidence and theoretical explanation, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 103, 31241–31254, <https://doi.org/10.1029/98JD02676>, 1998.
- McKenzie, R. L., Matthews, W. A., and Johnston, P. V.: The relationship between erythral UV and ozone, derived from spectral irradiance measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 18, 2269–2272, <https://doi.org/10.1029/91GL02786>, 1991.

- McKenzie, R. L., Liley, J. B., and Björn, L. O.: UV radiation: balancing risks and benefits, *Photochem. Photobiol.*, 85, 88–98, 2009.
- McKenzie, R. L., Aucamp, P. J., Bais, A. F., Björn, L. O., Ilyas, M., and Madronich, S.: Ozone depletion and climate change: impacts on UV radiation, *Photochem. Photobiol. S.*, 10, 182–198, <https://doi.org/10.1039/c0pp90034f>, 2011.
- McKinlay, A. F. and Diffey, B. L.: A reference action spectrum for ultraviolet induced erythema in human skin, *CIE J*, 6, 17–22, 1987.
- McPeters, R. D. and Labow, G. J.: Climatology 2011: An MLS and sonde derived ozone climatology for satellite retrieval algorithms, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 117, D10303, <https://doi.org/10.1029/2011JD017006>, 2012.
- Morgenstern, O., Braesicke, P., Hurwitz, M. M., O'Connor, F. M., Bushell, A. C., Johnson, C. E., and Pyle, J. A.: The World Avoided by the Montreal Protocol, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L16811, <https://doi.org/10.1029/2008GL034590>, 2008.
- Newman, P. A., Oman, L. D., Douglass, A. R., Fleming, E. L., Frith, S. M., Hurwitz, M. M., Kawa, S. R., Jackman, C. H., Krotkov, N. A., Nash, E. R., Nielsen, J. E., Pawson, S., Stolarski, R. S., and Velders, G. J. M.: What would have happened to the ozone layer if chlorofluorocarbons (CFCs) had not been regulated?, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2113–2128, <https://doi.org/10.5194/acp-9-2113-2009>, 2009.
- Orphal, J., Staehelin, J., Tamminen, J., et al.: Absorption cross-sections of ozone in the ultraviolet and visible spectral regions: Status report 2015, *J. Mol. Spectrosc.*, 327, 105–121, <https://doi.org/10.1016/j.jms.2016.07.007>, 2016.
- Petropavlovskikh, I. and Brasseur, G.: Evaluation of photodissociation coefficient calculations for use in atmospheric chemical models, PhD Thesis, University of Brussels and NCAR/CT-159, Boulder, USA, 1995.
- Pommereau, J. P. and Goutail, F.: O₃ and NO₂ ground-based measurements by visible spectrometry during Arctic winter and spring 1988, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 891–894, <https://doi.org/10.1029/gl015i008p00891>, 1988.
- Serdychenko, A., Gorshelev, V., Weber, M., Chehade, W., and Burrows, J. P.: High spectral resolution ozone absorption cross-sections – Part 2: Temperature dependence, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 625–636, <https://doi.org/10.5194/amt-7-625-2014>, 2014.
- Smith, R. C. and Cullen, J. J.: Effects of UV radiation on phytoplankton, *Rev. Geophys.*, 33, 1211–1223, <https://doi.org/10.1029/95RG00801>, 1995.
- Stamnes, K., Tsay, S.-C., Wiscombe, W., and Jayaweera, K.: Numerically stable algorithm for discrete-ordinate-method radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media, *Appl. Optics*, 27, 2502–2509, 1988.
- Takemura, T., Nakajima, T., Dubovik, O., Holben, B. N., and Kinne, S.: Single-Scattering Albedo and Radiative Forcing of Various Aerosol Species with a Global Three-Dimensional Model, *J. Climate*, 15, 333–352, [https://doi.org/10.1175/1520-0442\(2002\)015<0333:ssaarf>2.0.co;2](https://doi.org/10.1175/1520-0442(2002)015<0333:ssaarf>2.0.co;2), 2002.
- Toon, O. B., McKay, C., Ackerman, T., and Santhanam, K.: Rapid calculation of radiative heating rates and photodissociation rates in inhomogeneous multiple scattering atmospheres, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 94, 16287–16301, 1989.
- van Dijk, A., Slaper, H., den Outer, P. N., Morgenstern, O., Braesicke, P., Pyle, J. A., Garny, H., Stenke, A., Dameris, M., Kazantzidis, A., Tourpali, K. and Bais, A.: Skin Cancer Risks Avoided by the Montreal Protocol – Worldwide Modeling Integrating Coupled Climate-Chemistry Models with a Risk Model for UV, *Photochem. Photobiol.*, 89, 234–246, 2013.
- WHO: Global solar UV index: a practical guide, in: *Global Solar UV Index*, World Health Organization, Geneva, Switzerland, 2002.
- Willson, R. C. and Hudson, H. S.: The Sun's luminosity over a complete solar cycle, *Nature*, 351, 42–44, 1991.
- WMO: Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014, in: *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014*, 55, p. 416, Geneva, Switzerland, 2014.
- Wright, C. Y., Reeder, A. I., Bodeker, G. E., Gray, A., and Cox, B.: Solar UVR Exposure, Concurrent Activities and Sun-Protective Practices Among Primary Schoolchildren, *Photochem. Photobiol.*, 83, 749–758, <https://doi.org/10.1562/2006-08-22-ra-1010>, 2007.
- Wright, C. Y., Brogniez, C., Ncongwane, K. P., Sivakumar, V., Coetzee, G., Metzger, J.-M., Auriol, F., Deroo, C., and Sauvage, B.: Sunburn Risk Among Children and Outdoor Workers in South Africa and Reunion Island Coastal Sites, *Photochem. Photobiol.*, 89, 1226–1233, <https://doi.org/10.1111/php.12123>, 2013.
- Zepp, R. G., Erickson III, D. J., Paul, N. D., and Sulzberger, B.: Interactive effects of solar UV radiation and climate change on biogeochemical cycling, *Photochem. Photobiol. S.*, 6, 286–300, <https://doi.org/10.1039/B700021A>, 2007.

CHAPITRE 3

Projection des niveaux d'UV pour la fin du 21ème siècle

Sommaire

3.1	Résumé de l'article	91
3.2	Article	96

Ce chapitre s'appuie sur l'article de Lamy et al., (2018) soumis à la revue *Atmospheric Chemistry and Physics*. La section 3.1 résume l'article en français, la section 3.2 présente l'article tel qu'il a été soumis en anglais.

3.1 Résumé de l'article

L'état de l'art effectué précédemment a permis d'établir l'état des connaissances, en premier lieu théorique, sur le rayonnement UV. Nous avons ensuite détaillé l'instrumentation et la modélisation de ce rayonnement, mais aussi le contexte climatique et sa modélisation. Le second chapitre a permis d'étudier la sensibilité du modèle de transfert radiatif pour le cas d'un site tropical, l'île de La Réunion. En comparant avec des mesures instrumentales d'une résolution de 0.5nm, nous avons montré l'importance des facteurs géométriques et physico-chimiques au cours du processus de modélisation de transfert radiatif. Ces étapes étant validées, nous pouvons désormais nous intéresser à l'objectif final de cette thèse ; obtenir des projections climatiques du rayonnement UV sur le globe au cours du 21ème siècle.

La première section du présent article introduit le rayonnement UV ; son rôle sur l'homme et la biosphère y est présenté. L'histoire climatique récente ayant un impact sur le rayonnement UV est ensuite développée avec notamment le rôle du protocole de Montréal dans le contrôle de l'émission des ODS. Par la suite, l'article décrit l'avenir climatique attendu selon l'état des connaissances actuelles. Comme nous l'avons explicité en section 4 du premier chapitre de ce manuscrit et selon les modèles climatiques le changement climatique devrait mener à une accélération de la circulation de Brewer-Dobson. Plus précisément, l'augmentation de la concentration des GHGs amène une réponse de la dynamique ondulatoire de l'atmosphère, celle-ci est moteur de la circulation de Brewer-Dobson. On s'attend ainsi à une modification de la distribution de l'ozone sur le globe. Une modification de la distribution de l'ozone aura un impact direct sur le rayonnement UV de surface.

À partir de ce constat, l'article énonce sa problématique : la modélisation du rayonnement UV de surface au cours du 21ème siècle à partir du couplage entre un modèle de transfert radiatif et un modèle climatique global de chimie. Ce travail permet alors d'évaluer les changements possibles des niveaux de rayonnement UV selon différents scénarios climatiques. Le rôle des GHG, ODS et aérosols est aussi analysé à travers cet effort de modélisation.

La seconde section de l'article présente la méthodologie utilisée. Le modèle de transfert radiatif utilisé est le Tropospheric Ultraviolet Model (TUV) (Madronich et al., 1998). Ce modèle a besoin de plusieurs paramètres d'entrée afin de modéliser le rayonnement UV ; colonne totale d'ozone, albédo de surface, angle solaire zénithal, paramètres orbitaux, aérosols, etc ... On utilise alors les sorties des GCMs ayant participé à l'exercice d'intercomparaison CCMI (section 1.3.2) ce qui correspond à 18 GCMs ou CTMs. Leurs caractéristiques sont présentés dans la Table 1 de l'article.

Plusieurs simulations y sont réalisées (Eyring et al., 2013), la principale refC2 est la modélisation du climat sur le globe de 1960 à 2100 selon le scénario d'émission RCP 6.0 (Meinshausen et al., 2011). Des études de sensibilité sont aussi effectuées : senC2rcp26, senC2rcp45, senC2rcp85, senC2fODS et senC2fGHG. À partir de ces simulations, trois expériences sont définies.

Les trois premières simulations ; senC2rcp26, senC2rcp45 et senC2rcp85 sont similaire à refC2

mais pour les scénarios d'émissions respectifs suivant : RCP2.6, RCP4.5 et RCP8.5 (Meinshausen et al., 2011). Ce premier set de simulations (refC2, senC2rcp26, senC2rcp45 et senC2rcp85), utilisé en entrée du modèle de transfert radiatif, permet d'obtenir le rayonnement UV de surface pour quatre futurs climatiques. On nomme cette expérience EXP1. Pour cette expérience l'AOD et le coefficient d'Ångström (440-870nm) sont obtenus des sorties de trois GCMs ayant fourni ces variables (CHASER MIROC-ESM, CCSRNIES MIROC3.2 et MRI-ESM1r1). Le SSA n'étant pas disponible, on utilise des valeurs climatologiques d'aujourd'hui (Kinne et al., 2013).

Les deux dernières simulations ; senC2fODS et senC2fGHG sont similaires à refC2. Ces simulations utilisent le scénario RCP6.0, comme refC2, mais dans un cas les ODS sont fixés à leur niveaux de 1960 (senC2fODS), dans l'autre cas, les GHGs sont fixés à leur niveaux de 1960 (senC2fGHG). Ce deuxième set nous permet d'étudier l'impact des GHGs ou des ODS sur l'évolution du rayonnement UV. L'utilisation de ce set de données CCMI en entrée à TUV est définie comme EXP2. Ces simulations d'étude de sensibilité étant optionnelles, les modèles participant à CCMI ne les ont pas toutes réalisées (Table 2). Les paramètres aérosols (AOD, SSA, α) sont tous ici fixés à l'aide d'une climatologie contemporaine (Kinne et al., 2013).

Afin d'étudier l'impact de l'AOD sur l'évolution de l'UVI, on définit une troisième expérience (EXP3). Les données CCMI issues de refC2 sont utilisées encore une fois en entrée à TUV, on distingue ici trois cas ; dans le premier cas, AOD et TOZ varie tout au long du 21ème siècle (EXP3A), dans le second cas, TOZ varie mais AOD reste fixe à ses niveaux de 2000-2010 (EXP3FAOD) et dans le dernier cas TOZ est fixé à ses niveaux de 2000-2010 et l'AOD varie (EXP3FTOZ). Ces trois sous-expériences nommées EXP3A, EXP3FTOZ et EXP3FAOD sont résumées dans la Table 2.

Les modèles participant à CCMI ont des grilles très différentes, les sorties des différentes simulations sont ainsi réinterpolées sur une grille de $2^\circ \times 2^\circ$. On utilise des sorties mensuelles qui servent alors de paramètres d'entrée à TUV. Pour TUV, la modélisation est aussi mensuelle, l'UVI est calculé pour des paramètres orbitaux et une position du Soleil correspondant au 15ème jour de chaque mois. Le rayonnement au midi solaire est alors calculé. En effet pour des raisons de temps de calcul, il n'était possible de réaliser que des projections tous les mois sur 100 à 140 ans, pour l'ensemble du globe. Une moyenne et une médiane des sorties de l'ensemble des modèles CCMI sont calculées et servent aussi d'entrée au modèle TUV. Les sorties d'UVI correspondantes sont nommées UVI_{MEAN} et UVI_{MEDIAN} .

La section 3 de l'article décrit la validation de la modélisation UV à partir des données CCMI (GCM + TUV). Six stations sol faisant parties du réseau NDACC sont utilisées afin de valider les niveaux mensuels climatologique d'UVI obtenus sur la période 2000-2017. Ces six stations sont choisies afin de représenter six bandes latitudinales de largeur 30° allant du pôle sud au pôle nord, leurs positions sont décrites dans la Table 4. À partir des mesures ciel-clair de ces stations, un UVI climatologique mensuel au midi solaire ($\pm 2.5^\circ$) est calculé pour la période 2000-2017, il est nommé UVI_{GB} . Le produit satellitaire OMUVBd est aussi utilisé lors de cette étape de validation. OMUVBd est dérivé des mesures de l'instrument OMI embarqué sur le satellite Aura (Krotkov et al., 2002) ; un algorithme d'inversion estime l'UVI à la surface à partir de mesures retrodiffusée de l'UV à certaines longueurs d'ondes. De même, un UVI climatologique mensuel au midi solaire est calculé à partir du produit global journalier OMUVBbd, il sera nommé par la suite UVI_{OMI} .

UVI_{GB} est représenté sur la Figure 1 pour les six stations sols (courbe noire) accompagné d' UVI_{MEAN} (courbe rouge), UVI_{MEDIAN} (courbe verte), UVI_{OMI} (courbe orange) et pour l'UVI obtenu pour chaque modèle CCMI (courbes bleues claires). On peut constater ici que l' UVI_{MEAN}

et UVI_{MEDIAN} sont les plus proches des données au sol. Les différences moyennes relatives et absolues entre ces différentes sorties d' UVI modélisées et les mesures d' UVI au sol sont présentées dans la Table 4. L'écart relatif entre l' UVI_{MEAN} et les données sol varie de -4 % à 11%, soit un écart absolu de -0.2 à 0.3 UVI. Le même ordre de grandeur est obtenu pour UVI_{MEDIAN} . UVI_{OMI} surestime systématiquement l' UVI au sol, on note des écarts relatifs de 6.7% à Lauder jusqu'à 29.3% à Barrow. UVI_{OMI} tend à surestimer l' UVI au sol, cette conclusion avait déjà été mise en avant par Tanskanen et al. (2007) et Brogniez et al. (2016). Selon Koepke et al. (1998) l'erreur de modélisation du transfert radiatif est de 5% pour un facteur de couverture de $k=2$, les résultats obtenus pour UVI_{MEAN} et UVI_{MEDIAN} sont donc significativement en accord avec les mesures au sol.

Afin d'évaluer la différence entre les modèles, on compare la différence relative entre l' UVI calculé via l'association (GCM + TUV) pour chaque modèle et le produit satellitaire UVI_{OMI} . On fait aussi ce travail pour la moyenne et médiane des modèles. Un diagramme en boîte résumant les résultats obtenus pour chaque modèle est présenté en Figure 2. La gauche et la droite de la boîte sont respectivement le premier et troisième quartile, la ligne à l'intérieur est la médiane, la gauche et la droite des moustaches sont respectivement la moyenne ± 1 déviation standard. Dans tout les cas, on constate qu'utiliser les sorties CCMI en entrée à TUV produit un UVI inférieur à UVI_{OMI} . Ceci est cohérent avec le fait qu' UVI_{OMI} surestime l' UVI mesuré par les stations au sol. Les différents modèles ont des réponses variées, dans le contexte des projections climatiques, un seul modèle ne représente généralement pas pleinement la réalité, celle-ci se trouve plutôt au milieu des différents modèles. C'est pour cela que l'on choisit par la suite de ne modéliser que l' UVI_{MEDIAN} . Pour des raisons de temps de calcul, on ne peut pas modéliser l' UV sur l'ensemble de la période d'étude, pour chaque modèle et chaque cas de simulation. La médiane est choisie à la place de la moyenne. De plus cette dernière ignore les outliers.

Un dernier test de sensibilité est réalisé. À partir des sorties des GCMs, on a calculé une médiane des paramètres d'entrées à TUV, on obtient alors l' UVI_{MEDIAN} . On se sert aussi de chaque sortie singulière des 18 GCMs en entrée à TUV afin d'obtenir 18 UVI . On calcule alors la médiane de ces 18 UVI s que l'on nomme UVI_{ALLM} . La différence relative entre UVI_{MEDIAN} et UVI_{ALLM} est représenté sur la Figure 3, cette différence relative prend des valeurs entre -2% et 2% et la différence relative moyenne est de $0.19 \pm 1.91\%$. On peut ainsi conclure qu'effectuer une statistique médiane sur les modèles climatiques avant de calculer l' UVI , à un impact très faible sur l' UVI final.

La section 4 de l'article présente en premier lieu les résultats des projections climatiques d' UVI pour les quatre scénarios d'émissions climatiques.

Les taux d'évolution au cours du 21ème de l' UVI et de la colonne totale d'ozone (TOZ) sont représentés sur la Figure 4 pour six bandes latitudinales et pour quatre scénarios d'émissions. De plus les différences relatives entre les années 2090-2100 et les années 1960-1970 sont reportés dans la Table 5 ainsi que les résultats obtenus par Bais et al. (2015a) et Hegglin and Shepherd (2009) lors d'études précédentes. Les changements négatifs d' UVI sont généralement anticorrélés avec les changements positifs de TOZ. Dans les régions polaires, la récupération de la couche d'ozone suite à la baisse des niveaux d'ODS implique une remontée des niveaux d'ozone et donc une baisse d' UVI dans ces régions. Entre 2000 et 2100, une baisse de 16% pour RCP2.6 à 26% pour RCP8.5 est observée dans l'hémisphère sud. Pour les moyennes latitudes de l'hémisphère sud, on observe aussi une baisse de l' UVI ($\sim 9\%$) pour une augmentation de TOZ ($\sim 12\%$) sur la même période. Pour les tropiques, une variation de moins d'un pourcent est observée pour l' UVI dans l'hémisphère sud et une augmentation de 2 à 4% de l' UVI est constatée dans l'hémisphère nord. Dans l'hémisphère nord, l'augmentation de TOZ n'est pas associée à une baisse de l' UVI .

On peut donc conclure que l'ozone n'est pas le seul paramètre dominant la variabilité de l'UVI dans cette région. Une analyse de l'impact des aérosols est détaillée dans les sections suivantes.

Bais et al. (2015a) et Hegglin and Shepherd (2009) ont trouvé précédemment des augmentations d'UVI dans les tropiques de 0.9 et 4% respectivement, entre les années 1960-1970 et les années 2090-2100. Nous avons ici obtenu des résultats très proches dans cette région : de 2.8% à 0.9% dans l'hémisphère nord et de 2.6 à 1.5% dans l'hémisphère sud. La plus faible augmentation est toujours obtenue pour RCP 8.5. Dans les autres régions et notamment dans l'hémisphère nord, les résultats de notre étude diffèrent de ceux de Bais et al. (2015a) et Hegglin and Shepherd (2009) pour tout les scénarios sauf RCP 8.5. (Bais et al., 2015a) ont utilisé les données issues de l'expérience refB2 de l'exercice CCM-Val en entrée à un modèle de transfert radiatif, les paramètres d'aérosols étaient toutefois fixées à une valeur climatologique. Hegglin and Shepherd (2009) ont utilisé la formule analytique de Sasha (2007) afin de calculer l'UVI à partir des simulations réalisées pour CCMVal par le modèle Canadian Middle Atmosphere Model (CMAM), cette formule n'utilise que les changements relatifs de TOZ. De plus, l'expérience refB2 de CCMVal n'est pas totalement équivalente à refC2 de CCMI. On peut donc expliquer les différences entre leurs études et la nôtre par la différence entre les expériences et la non prise en compte de l'évolution des aérosols.

Sur la Figure 5 sont représentés les changements latitudinaux pour les douze mois de l'année entre les niveaux de 2090-2100 et 2000-2010 et pour les quatre scénarios climatiques. La différence relative moyenne globale d'UVI la plus élevée est enregistrée pour le scénario RCP8.5 : elle est de -7.9%. Pour les mois de Septembre, Octobre et Novembre, on observe une chute importante des niveaux d'UVI dans l'hémisphère sud associée à une augmentation des niveaux d'ozone, c'est la récupération de l'ozone. De même dans l'hémisphère nord, aux moyennes et basses latitudes une augmentation de l'ozone est associée à une augmentation de l'UVI. La ligne nulle (ligne épaisse noire, Fig 5) séparant une baisse d'une augmentation d'UVI autour des tropiques tend à se rapprocher de l'équateur lorsque le forçage radiatif est plus important.

La section suivante de l'article (4.3) porte sur l'impact des ODS et des GHGs sur l'évolution de l'UVI (EXP2). Pour ces simulations, l'AOD a été fixée en prenant les valeurs climatologiques d'aujourd'hui (Kinne et al., 2013).

La Figure 6 présente l'évolution du changement relatif d'UVI et de TOZ de 1960 à 2100 pour ces trois simulations et pour six bandes latitudinales. Dans la région antarctique senC2fGHG et refC2 sont très proches, le rôle de l'augmentation des GHGs semble avoir moins d'impact sur l'UVI dans cette région (Dhomse et al., 2018). Le retour de l'ozone aux niveaux de 1960 sera le plus rapide dans un contexte d'émission importante de GHGs. Cette même observation peut être faite dans les moyennes latitudes nord et sud. Les GHGs provoquent une augmentation plus rapide de TOZ et donc une baisse plus rapide de l'UVI. Dans les tropiques, les ODS participent à $\sim 2\%$ de la variabilité de l'UVI et de TOZ.

Sur la Figure 7, les différences relatives moyennes entre les niveaux de 2090-2100 et 1960-1970 sont représentées pour les douze mois climatologiques et pour les trois simulations sensibles refC2, senC2fODS et senC2fGHG (trois premières rangées). Lorsque les ODS sont fixées à leur niveau de 1960, on note une augmentation relative moyenne de 3.8% sur le globe. Cette augmentation est due à l'augmentation de la concentration des GHGs qui entraînent une accélération de la BDC. Lorsque les GHG sont fixés à leur niveau de 1960, les effets sont minimales entre ces deux périodes situées avant dépletion et après récupération de l'ozone.

La section 4.4 de l'article examine l'impact de l'AOD sur l'UVI (EXP3). Sur les Figure 8 et 9, le taux d'évolution de l'UVI, de TOZ et de l'AOD sont représentés pour l'hémisphère nord

et sud respectivement. Dans le cas de l'UVI, la courbe orange est l'UVI avec TOZ et AOD variables, la courbe bleue est l'UVI avec TOZ variable et AOD fixe et la courbe verte est l'UVI avec TOZ fixe et AOD variable.

On constate qu'aux moyennes latitudes pour un AOD variable de près de $\sim 80\%$ (courbe verte en trait plein) et une colonne totale d'ozone en augmentation ($\sim 4\%$, courbe orange en trait plein), l'UVI augmente aussi ($\sim 4\%$, courbe orange Fig. 8b). L'UVI n'est plus ici anticorrélé avec TOZ, son évolution n'est donc plus dominé par les niveaux d'ozone. Dans la simulation avec AOD fixe, on retrouve bien un UVI anticorrélé avec TOZ (courbe bleue). La situation est similaire aux tropiques; pour une variation quasi constante de TOZ, l'UVI augmente ($\sim 4\%$) à la fin du 21ème siècle. Cette augmentation est liée à la diminution de l'AOD d'environ 16%. Les conclusions sont les mêmes au pôle nord.

Dans l'hémisphère sud (Figure 9), les variations d'AOD sont très faibles, moins de 5%, pour les trois bandes latitudinales. L'ozone apparait ici comme le facteur dominant dans les variations d'UVI.

Pour terminer cette section, on peut observer que la colonne totale d'ozone n'est pas toujours la variable définissant les niveaux de rayonnement Ultraviolet, notamment à la fin du 21ème siècle et dans l'hémisphère nord, l'AOD joue un rôle important. Ce rôle avait déjà été mis en avant dans une étude précédente qui projetait l'évolution de l'UVI sur l'Europe (Corrêa et al., 2013). En effet, nous avons aussi vu précédemment (Figure 4 et 5) qu'à la fin du siècle l'UVI n'est plus corrélé à TOZ aux moyennes et basses latitudes de l'hémisphère nord. Les scénarios RCPs prévoient tous une baisse d'émissions des précurseurs aérosols à partir des années 2050 environ (van Vuuren et al., 2011).

Afin de conclure, nous pouvons résumer les différents résultats obtenus.

L'utilisation des sorties de modèle de climat (CCMI) et de modèle de transfert radiatif nous permet d'obtenir, en conditions ciel clair, un UVI climatologique représentatif de ce que l'on observe actuellement permettant l'utilisation future de cette stratégie pour estimer le rayonnement UV à la fin du siècle, avec un bon niveau de confiance. Un écart relatif moyen de -3.93% à 10.55% est constaté entre modélisation de l'UVI et mesures au sol.

Le rôle des ODS et des GHGs sur l'UVI a été mis en avant. Les GHGs accélèrent le retour de l'ozone (Dhomse et al., 2018) aux niveaux de 1960 et donc l'UVI retourne aussi plus rapidement aux niveaux de 1960. Un monde sans ODS montre très peu de variation de l'UVI entre 1960 et 2100, toutefois à la fin du 21ème siècle, on y note une augmentation de l'UVI aux tropiques, ce résultat nécessite une analyse ultérieure.

Dans ce contexte de changement climatique, l'UVI varie sur tout le globe au cours du prochain siècle. Les variations les plus importantes sont attendues pour les scénarios climatiques prévoyant une augmentation du forçage radiatif la plus élevée (RCP 8.5).

Aux hautes latitudes dans l'hémisphère sud, entre 2000 et 2100, lorsque la récupération de l'ozone implique une augmentation de TOZ (10 à 16% pour RCP2.6 et RCP8.5), l'UVI décroît fortement (16 à 26% pour les mêmes scénarios). La situation est similaire dans l'hémisphère nord où l'amplitude des changements est plus faible, l'UVI ne diminue que de 10% environ pour RCP 8.5.

Aux moyennes latitudes, TOZ augmente dans les deux hémisphères. Au sud, l'UVI dépend des variations de TOZ ($\sim 9\%$), on observe ainsi une décroissance de l'UVI ($\sim -12\%$). Au nord,

la chute d'AOD contrebalance l'augmentation de TOZ, ainsi l'UVI ne montre pas de signe de décroissance. L'impact de l'AOD sur le rayonnement doit faire l'objet de futures études, l'Aerosol and Chemistry Intercomparison Project (Collins et al., 2017a) peut être un contexte idéal pour réaliser cette analyse.

Dans la bande tropicale, si l'on compare l'UVI à la fin du 21ème siècle aux niveaux de 2000-2010, on observe une augmentation assez faible de 0 à 4% environ selon les régions (Figure 5). Aux tropiques, l'UVI est, en valeur absolue, très élevé, une augmentation de l'ordre de 4% serait donc significative. L'impact de ces variations du rayonnement UV sur l'homme mais aussi sur la biosphère doit faire l'objet d'analyses futures.

3.2 Article

Ultraviolet Radiation modelling using output from the Chemistry Climate Model Initiative

Kévin Lamy¹, Thierry Portafaix¹, Béatrice Josse², Colette Brogniez³, Sophie Godin-Beekmann⁴, Hassan Bencherif^{1,5}, Laura Revell^{6,7,8}, Hideharu Akiyoshi⁹, Slimane Bekki⁴, Michaela I. Hegglin¹⁰, Patrick Jöckel¹¹, Oliver Kirner¹², Virginie Marecal², Olaf Morgenstern¹³, Andrea Stenke⁶, Guang Zeng¹³, N. Luke Abraham^{14,15}, Alexander T. Archibald¹⁴, Neil Butchart¹⁶, Martyn P. Chipperfield¹⁷, Glaucio Di Genova¹⁸, Makoto Deushi¹⁹, Sandip S. Dhomse¹⁷, Rong-Ming Hu⁴, Douglass Kinnison²⁰, Martine Michou², Fiona M. O'Connor¹⁶, Luke D. Oman²¹, Giovanni Pitari¹⁸, David A. Plummer²², John A. Pyle¹⁴, Eugene Rozanov^{6,23}, David Saint-Martin², Kengo Sudo²⁴, Taichu Y. Tanaka¹⁹, Daniele Visionsi¹⁸, and Kohei Yoshida¹⁹

¹LACy, Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (UMR 8105 CNRS, Université de La Réunion, Météo-France), Saint-Denis de La Réunion, France

²Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) UMR 3589, Météo-France/CNRS, Toulouse, France

³Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA), Université de Lille, Faculté des Sciences et Technologies, Villeneuve d'Ascq, France

⁴Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales, Service d'Aéronomie (LATMOS), CNRS, Institut Pierre Simon Laplace, Pierre et Marie Curie University, Paris, France

⁵School of Chemistry and Physics, University of KwaZulu Natal, Durban, South Africa

⁶Institute for Atmospheric and Climate Science, ETH Zürich (ETHZ), Zürich, Switzerland

⁷Bodeker Scientific, Christchurch, New Zealand

⁸School of Physical and Chemical Sciences, University of Canterbury, Christchurch, New Zealand

⁹National Institute of Environmental Studies (NIES), Tsukuba, Japan

¹⁰Department of Meteorology, University of Reading, Reading, UK

¹¹Institut für Physik der Atmosphäre, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR), Oberpfaffenhofen, Germany

¹²Steinbuch Centre for Computing, Karlsruhe Institute of Technology, Karlsruhe, Germany

¹³National Institute of Water and Atmospheric Research (NIWA), Wellington, New Zealand

¹⁴Department of Chemistry, University of Cambridge, Cambridge, UK

¹⁵National Centre for Atmospheric Science, U.K.

¹⁶Met Office Hadley Centre (MOHC), Exeter, UK

¹⁷School of Earth and Environment, University of Leeds, Leeds, UK

¹⁸Department of Physical and Chemical Sciences, Università dell'Aquila, L'Aquila, Italy

¹⁹Meteorological Research Institute (MRI), Tsukuba, Japan

²⁰National Center for Atmospheric Research (NCAR), Boulder, Colorado, USA

²¹National Aeronautics and Space Administration Goddard Space Flight Center (NASA GSFC), Greenbelt, Maryland, USA

²²Environment and Climate Change Canada, Montréal, Canada

²³Physikalisch-Meteorologisches Observatorium Davos World Radiation Centre, Davos Dorf, Switzerland

²⁴Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Nagoya, Japan

Correspondence to: K. Lamy (kevin.lamy@univ-reunion.fr)

Abstract.

We have derived values of the Ultraviolet Index (UVI) at solar noon from the Tropospheric Ultraviolet Model (TUV) driven by ozone, temperature and aerosol fields from the first phase of the Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI-1). Since clouds remain one of the largest uncertainties in climate projections, we simulated only clear-sky UVI. We compared the UVI climatologies obtained from CCMI and TUV against present-day climatological values of UVI derived from satellite data (the OMI-Aura OMUVBd product) and ground-based measurements (from the NDACC network). Depending on the region, relative differences between the UVI obtained from CCMI and TUV and ground based measurements ranged between -4% and 11%.

We calculated the UVI evolution throughout the 21st century for the four Representative Concentration Pathways (RCPs 2.6, 4.5, 6.0 and 8.5). Compared to 1960s values, we found an average increase in UVI in 2100 (of 2-4%) in the tropical belt (30°N-30°S). For the mid-latitudes, we observed a 1.8 to 3.4 % increase in the Southern Hemisphere for RCP 2.6, 4.5 and 6.0, and found a 2.3% decrease in RCP 8.5. Higher UV indices are projected in the Northern Hemisphere except for RCP 8.5. At high latitudes, ozone recovery is well identified and induces a complete return of mean UVI levels to 1960 values for RCP 8.5 in the Southern Hemisphere. In the Northern Hemisphere, UVI levels in 2100 are higher by 0.5 to 5.5% for RCP 2.6, 4.5 and 6.0 and they are lower by 7.9% for RCP 8.5.

We analysed the impacts of greenhouse gases (GHGs) and ozone-depleting substances (ODSs) on UVI from 1960 by comparing CCMI sensitivity simulations (1960-2100) with fixed GHGs or ODSs at their respective 1960 levels. As expected with ODS fixed at their 1960 levels, there is no large decrease in ozone levels and consequently no sudden increase in UVI levels. With fixed GHG, we observed a delayed return of ozone to 1960 values, the same signal is observed on UVI, and looking at the UVI difference between 2090s values and 1960s values, we found an 8 % increase in the tropical belt during the summer of each hemisphere.

Finally we show that, while in the Southern Hemisphere UVI is mainly driven by total ozone column, in the Northern Hemisphere both total ozone column and aerosol optical depth drive UVI levels, with aerosol optical depth having twice as much influence on UVI as total column does.

1 Introduction

After the implementation of the Montreal Protocol, emissions of chlorine and bromine-containing ozone depleting substances (ODSs) have started to decrease and the ozone layer is showing signs of recovery (Morgenstern et al., 2008; Solomon et al., 2016). Nonetheless, greenhouse gas (GHG) emissions generally are still increasing and are expected to affect future ozone levels (Fleming et al., 2011; Revell et al., 2012). Global circulation model simulations project that the Brewer Dobson circulation will accelerate over the next century (Butchart, 2014), which would lead to a decrease of ozone levels in the tropics and an enhancement at higher latitudes (Hegglin and Shepherd, 2009). Ozone is one of the major factors affecting surface ultraviolet radiation (SUR). Ultraviolet (UV) radiation on the surface is essential for life on earth. Overexposure to this radiation is the main cause of the development of non-melanoma (keratinocyte cancer) and melanoma skin cancers. Among keratinocyte cancer, Squamous Cell Carcinoma is caused by chronic exposure while Basal Cell Carcinoma is probably more similar to melanoma, i.e due to sunburns during childhood years (Matsumura and Ananthaswamy, 2004; Karimkhani et al., 2015; Krickler et al., 2017). Ecological studies on human health and UV generally use the UV Index (UVI) (Mc Kinlay and Diffey, 1987). UVI is commonly used for public health messages as a measure of ambient UV irradiance. There is also a beneficial effect of UV radiation on human health through the synthesis of pre-vitamin D (Holick et al., 1980). UV radiation also impacts the biosphere (Erickson III et al., 2015) including the aquatic system, which plays a central part in biogeochemical cycles (Hader et al., 2007). Phytoplankton productivity is strongly affected by UV (Smith and Cullen, 1995), which can result in either positive or negative feedback on climate (Zepp et al., 2007).

The implementation of the Montreal Protocol on Substances that Deplete the Ozone Layer which imposed reductions in stratospheric chlorine and bromine emissions alleviated increasing concerns about future surface UV radiation (Morgenstern et al., 2008). This protocol and its amendments drastically reduced the emissions of ODSs, i.e. the halocarbons. Nonetheless, recent studies on the evolution of ozone in a changing climate (Butchart, 2014) raised questions about future surface UV levels (Hegglin and Shepherd, 2009; Bais et al., 2011; Correa et al., 2013; Bais et al., 2015). Dhomse et al. (2018) found that a scenario with high radiative forcing change presents earlier ozone return dates.

Numerous chemistry-climate model (CCM) simulations found an acceleration of the Brewer-Dobson circulation (BDC) (Butchart, 2014) due to the increase in atmospheric GHG concentrations. The BDC circulation was proposed by Brewer (1949) and Dobson (1956) to explain the latitudinal distribution of ozone and the amount of water vapor in the stratosphere. The BDC corresponds to a meridional transport in the stratosphere, with ascending air in the tropics and subsidence in the polar latitudes. The mechanism which drives this circulation is the dissipation of Rossby and gravity waves (Holton et al., 1995). Therefore, the strength of the BDC depends on the propagation and breaking of planetary waves. Rind et al. (1990) found that a doubling of carbon dioxide (CO_2) would lead to an increase in the residual-mean circulation due to the response from planetary waves, hence the residual-mean circulation (Andrews et al., 1987) can be seen as a proxy for the BDC. From the doubled CO_2 experiment, Rind et al. (2001) found a 30% increase of the troposphere to stratosphere mass exchange. Consequently, an accelerated loss of CFCs will reduce the timescale for ozone to recover (Shepherd, 2008). A strengthening of the BDC and an accelerated recovery of ozone will modify the distribution of ozone in the stratosphere and impact UV radiation at the surface.

While the ozone layer in the stratosphere absorbs UV radiation, it is not the only factor affecting surface levels of UV. The distance between the Sun and Earth is responsible for about $\approx 7\%$ of the UV variability on the ground (Frederick et al., 1989). The 11-year solar cycle accounts for about 6% of the UV variability in the stratosphere (Gray et al., 2010). The solar cycle affects UV through changes in stratospheric ozone, the direct influence is negligible. Solar zenith angle (SZA) plays a key role for the intensity of surface UV radiation. For higher SZA the path travelled through the atmosphere is longer, hence absorption and scattering increase and the UV response to changes in total ozone column (TOZ) is affected (Brühl and Crutzen, 1989). Clouds and aerosols also cause variability (Bais et al., 1993). In most cases, clouds attenuate the UV signal on the surface by about 15 to 45% (Calbó et al., 2005). Broken cloud cover can also enhance the surface UV (Mayer et al., 1998). Krzyścin and Puchalski (1998) found a 1.5% increase in erythemal UV for a 10% decrease of aerosol optical depth (AOD) and up to a 30% decreases of UV erythemal can be observed due to biomass burning emissions (Lamy et al., 2018). In the UVA region, a mean reduction of irradiance of 15.2% per unit of AOD slant column has been observed by Kazadzis et al. (2009). Nitrogen dioxide and sulphur dioxide have also a small effect on UV irradiance (Solomon et al., 1999; Vaida et al., 2003).

In the context of a changing climate and with the use of stratospheric CCM simulations, Hegglin and Shepherd (2009) found a 3.8% increase of UVI in the tropics between 2090s and 1960s. In the Northern Hemisphere, they found a 9% decrease in UVI due to increased transport of ozone. As part of the precursor multi-model activity to CCMI, CCMVal-2, Bais et al. (2011) also calculated UVI evolution between 1960 and 2100 and reported a small increase in the tropics of 0.9%, a 7.5% and 9.8% decrease in northern and southern high latitudes and a 4.1% decrease in mid latitudes. In both of these studies the largest UV reduction was found in Antarctica. This is consistent with the recovery of the ozone layer.

Following from these studies, we investigate the evolution of surface UV radiation using the latest simulations from the first phase of the Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI-1), a project initiated by Future Earth's IGAC (International Global Atmospheric Chemistry) and the World Climate Research Programme's SPARC(Stratosphere-troposphere Processes and their Role in Climate) as a successor to the continuity of the Chemistry-Climate Model Validation Activity (CCMVal) and Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) (Eyring et al., 2013). We use CCMI data and the Tropospheric Ultraviolet Model (TUV) (Madronich et al., 1998) to calculate surface irradiance over the globe.

In Section 2, we will explain the methodology used to calculate ground surface irradiance from CCMI data and TUV, and describe the TUV model. We will briefly present the CCMI models along with the different experiments performed for CCMI. A validation of UVI, calculated with CCMI data and TUV, against satellite and ground-based measurements will be presented in Section 3. A discussion of the spread between CCMI models and on the resulting sensitivity of TUV will be conducted in Section 3. In Section 4, we examine the possible evolution of UVI at different latitudinal bands following the representative concentration pathways (RCPs) (Meinshausen et al. (2011)). We also analyze the difference between monthly values of UVI in the 1960s and 2090s. Sensitivity simulations using concentrations of ODSs and GHGs fixed at constant 1960 levels were also performed for the CCMI exercise. These allow us to assess the impact of GHGs and ODSs on UVI individually. An analysis of the impact of AOD on UVI is presented in Section 4.4. The last section will discuss and conclude the findings of the present study.

2 Data and methodology

2.1 Ultraviolet Modeling

UV irradiance at the Earth's surface is calculated with the TUV radiative transfer model (version 5.3) for the entire globe on a 2° by 2° grid. The spectral solar irradiance simulated at the Earth's surface ranges from 280 to 450 nm with a 1 nm resolution. The spectral irradiance is weighted according to the erythemal action spectrum (Mc Kinlay and Diffey, 1987) and then integrated to obtain the UVI. For the extra-terrestrial spectrum we used Dobber et al. (2008) spectrum, for the ozone cross section absorption we used the one from (Gorshchev et al., 2014) and (Serdyuchenko et al., 2014). The required inputs for the UV calculation are:

- Total Ozone Column (TOZ)
- Total Nitrogen Dioxide (TNO₂)
- Ozone Profile (OP)
- Temperature Profile (TP)
- Aerosol Optical Depth (AOD)
- Aerosol Ångström exponent (α)
- Single Scattering Albedo (SSA)
- Ground Surface Albedo (ALB)
- Altitude (z)

As input for TUV we used data from the latest CCM simulations (Hegglin and Lamarque, 2015). A brief description of the CTMs or CCMs used in this study is provided in Table 1 and Table 2, while more details are available in Morgenstern et al. (2017). From these models the monthly output from the refC2, senC2rcp26, senC2rcp45, senC2rcp85, senC2fODS and senC2fGHG simulations were retrieved. RefC2 is a transient "future reference" simulation covering the period 1960-2100 with a 10 year spin-up which starts in 1950. The aim of this simulation is to investigate the future evolution of the atmosphere. From 1960 to 2005 concentrations are prescribed from observations. After 2005, projections of GHGs from the RCP 6.0 scenario are used (Masui et al., 2011). The RCPs are scenarios used to study future Earth's climate. They are composed of four pathways representative of the GHG concentrations along the 21st century which lead to a radiative forcing of 2.6, 4.5, 6.0 or 8.5 $W.m^{-2}$ in 2100. While RCP 2.6 suppose strong effort to reduce GHG emissions. RCP 8.5 is based on large GHG emissions, CH₄ concentrations is particularly high in this scenario compared to others.

ODS concentrations are prescribed according to the A1 scenario for halogens (WMO, 2011). senC2rcp26, senC2rcp45 and senC2rcp85 are similar to refC2 but instead of following RCP 6.0 for GHGs, they follow RCP 2.6, 4.5 and 8.5 (Meinshausen

et al., 2011) respectively. The senC2fODS and senC2fGHG simulations are similar to refC2 but with ODSs or GHGs fixed at their respective 1960 levels. The senC2 simulations were optional for the intercomparison exercise. Therefore only a few models provided results for both senC2fGHG and senC2fODS experiments (Table 2). A complete description of all CCMI-1 simulations is given by Eyring et al. (2013) and Morgenstern et al. (2017).

5 From these CCMI simulations, we used the following monthly global fields to calculate UVI: total ozone column (TOZ), vertical distribution of ozone (OP), temperature (TP) and nitrogen dioxide (NO₂), ground surface albedo (ALB) and altitude or pressure. For TNO₂ we vertically integrated the volume mixing ratio of NO₂. As single scattering albedo (SSA) was not available, we choose here to use the latest global aerosol monthly climatology from Kinne et al. (2013) as input for the TUV model. We used the median AOD and the Ångström exponent (440-870 nm) from three models which provided these
10 variable; CHASER MIROC-ESM, MRI-ESM1r1 and GEOSCCM. The mean value may be more representative in general but the median was used to avoid eventually local erroneous values. Due to the lack of reliable data, total column sulphur-dioxide (TSO₂) was set to zero. Nonetheless TSO₂ could be an important factor of UVI variability (Zerefos et al., 1986).

Radiative transfer modelling in cloudy conditions is still a challenging task. Bais et al. (2011) used cloud modification factor along with UV irradiance projections in order to simulate future UV changes due to clouds. Here, our focus is on the UV
15 evolution for distinct RCP scenarios and on the influence of GHGs and ODSs. In addition, clouds and aerosols remain the main sources of uncertainties in climate projections (IPCC, 2013), and the accuracy of UV modelling depends strongly on the accuracy of the input parameters. For these reasons, we choose here to analyze only clear-sky conditions. There is also the uncertainty on the absolute mean value of the extra-terrestrial solar UV spectrum used at the top of the atmosphere in TUV. Differences between proposed solar UV spectra can reach 5% (Meftah et al., 2016).

20 The horizontal and vertical grids vary between the CCMI models. All of the required CCMI data are therefore interpolated to a 2° by 2° grid with 86 pressure levels, the highest pressure level is at 0.001 hPa. There were 18 models participating in the CCMI simulations. It was thus not possible to perform the same number of UV projections for the entire 21st century due to computational limitations. We choose to run only the ensemble model median. The error associated with this simplification on the UV projections is discussed in Section 4.1. A few other simplifications were made to reduce computational time. OP and
25 TP are averaged zonally but still vary through the 21st century. For each CCMI monthly output, we simulated UV irradiance at local solar noon and for the 15th of each month.

2.2 UVI modelling cases.

As stated above, we used four RCP scenarios and two sensitivity simulations, but not all models provided these specific runs (Table 2). To ensure that the resulting TUV simulations would be directly comparable with each other, we defined two
30 experiments from two sets of models. These are summarized in Table 2. The first set is composed of models which provided the refC2, senC2rcp26, senC2rcp45 and senC2rcp85 simulations (see Table 2). From this set of models, we can study the impact on UVI from different RCP scenarios (experiment 1, EXP1). Each model in this set provided simulations which cover 2000-2100 at minimum. The second set is composed of models which provided refC2, senC2fODS and senC2fGHG simulations. This set allows us to investigate the impact of fixing GHGs or ODSs on UV irradiance from 1960 to 2100 (experiment 2, EXP2). We

also designed a third experiment (EXP3), based on the models used in EXP1. We performed three simulations; the first one with transient TOZ and AOD (hereafter EXP3A), a second with TOZ fixed at its 2000s decadal mean value and transient AOD (EXP3FTOZ), and the last one with AOD fixed at present-days climatological values (Kinne et al., 2013) and transient TOZ (EXP3FAOD). For experiments we calculated the mean and median of the various input parameters of the different selected models, such as ozone, temperature or ground albedo, and used it as input for the radiative transfer model to obtain UVI_{MEAN} and UVI_{MEDIAN} .

3 Model Validation: present-days values

3.1 Model Validation

In this section, we first investigate the usage of CCMI model data as input for the TUV radiative transfer model. The results are compared against present-day climatological values of UV irradiance obtained from ground-based and satellite measurements. According to Koepke et al. (1998), the UVI modelling error is about 5 % for a coverage factor of 2 standard deviation.

We gathered UVI data spanning at least the period 2000 to 2017 for six stations representing six latitudinal bands. The various stations and their characteristics are presented in Table 3. They are all part of the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC) (De Mazière et al., 2018). UV measurements at these stations are made by a spectroradiometer. Just like UVI obtained by the model, UVI is obtained from the spectral irradiance. These types of measurements have an uncertainty of about 5%. All of these stations began measuring UV in the early 2000s, except for Reunion Island where observations started in 2009. In order to compare the ground-based measurements to our modelling results, we filter cloudy conditions with the clear-sky flag provided with each station's measurements. We also select data with a SZA as close as possible to the SZA at local noon, with no more than 2.5° difference. A 10 day average around the 15th of each month was made in order to be consistent with satellite data and avoid numerous missing values. From this we derive a monthly climatology for the 2005-2017 period (UVI_{GB}). From the closest grid point of the UVI_{MEAN} and UVI_{MEDIAN} simulation, we derive the same UVI monthly climatology. We do this only for the refC2 simulation. TUV calculations are made at sea level, stations measurements are made at an altitude ranging between 8m for Barrows up to 370m for Lauder. Mauna Loa is an exception with measurements made at 3397m above sea level.

We also derive a climatology for each station from the OMI OMUVBd product (Krotkov et al., 2002) which is represented by the orange curve in Figure 1 and it will be called hereafter UVI_{OMI} . OMUVBd is a level-3 daily global gridded UV-B irradiance product derived from the Ozone Monitoring Instrument (OMI), which is a nadir-viewing spectrometer. Measurements started in 2004. The instrument covers the spectral region 264-504 nm. The algorithm used to compute surface spectral UV irradiance is the TOMS Surface UV-B flux algorithm (Tanskanen et al., 2007). OMUVBd has previously been evaluated against ground based stations. Tanskanen et al. (2007) found a median overestimation of 0 to 10% of the erythemal doses calculated by OMI. Jégou et al. (2011) found a 12.8 ± 3.6 % mean relative difference between OMI clear-sky UV measurements and ground-based measurements made at the SIRTa observatory (Palaiseau, France) in 2008 and 2009. Brogniez et al. (2016) also analysed this product against three ground-based stations located at Villeneuve d'Ascq and the Observatoire de Haute-Provence, both in

France, and at Saint-Denis in Reunion island. They observed a systematic overestimation of UVI in the range of 4 to 8% at solar noon. Once more we select UVI only at local solar noon, which is provided in the OMUVBbd product. In order to be as close as possible to our simulation and since OMUVBbd has sometimes missing values over the ground based stations at the 15th of each month, we also always selected 10 days per month centred around the 15th of each month for ground based and satellite data. The results are presented in Figure 1.

For every station, the UVI_{MEAN} (red curve) and UVI_{MEDIAN} (green curve) are close to the observed climatological UVI (UVI_{GB} black curve) with the individual model (light blue curves) spreading around the observations. UVI_{OMI} tends to be a slightly higher than the observations. We also calculate the mean absolute and relative difference between these monthly climatological UVI and UVI_{GB} ground-based observations. Table 3 summarizes these statistics. Here, a similar conclusion can be drawn, except for the Palmer station, where UVI_{MEAN} and UVI_{MEDIAN} are always closer to ground-based observations than UVI_{OMI} . Discrepancies during summer between modelling results and Mauna Loa measurements could be due to the differences in altitude. UVI_{OMI} tends to overestimate UVI by 6.8% at Lauder, and up to 29.3% at Barrow. While the relative difference is large at high latitude stations, the absolute difference in UVI is small. For instance, the 10.5 % relative difference in UVI_{MEAN} at the Palmer station, translates into an absolute difference of about 0.33 UVI units. In the tropics, at Mauna Loa, a relative difference of 5.40% is equivalent to a similar absolute difference of UVI (0.29 UVI units). We have to be careful when we interpret UVI at high latitude stations, as the magnitude of UVI is quite small most of the time due to large solar zenith angles. Nonetheless, at low and mid-latitudes the UVI differences observed are fully compatible with the errors attached with the measurements and models (Koepke et al., 1998).

For short time scales of about 10 years, a part of the TOZ variability observed at ground-based stations is due to the stratospheric circulation above the station (Poulain et al., 2016). In the refC2 runs, models produce their own wind and temperature fields. In a separate simulation which we do not analyze here, the refC1SD simulation, the model is forced by boundary conditions obtained from reanalyses (Eyring et al., 2013). Unlike refC1SD, refC2 simulations are not designed to reproduce the interannual variability and trends in stratospheric dynamics and hence ozone which are observed over individual stations between 2000-2010. Differences between observed and simulated dynamical variability is possibly a significant source of the discrepancies between observed and modelled UVI, but it is difficult to estimate. The differences in the dynamics of the models certainly contribute to the spread in the model results. Although by using refC1SD, better agreement may be expected for the validation of CCMI models, the main objective of this study is to study the UVI evolution during the 21st century, which is not possible using refC1SD simulation; therefore we choose to only validate the result from the refC2 simulations.

Simulated UVI has also been compared to UVI_{OMI} satellite measurements. Boxplots summaries of the relative differences between each model and UVI_{OMI} are represented in Figure 2. Over the globe, UVI_{MEAN} and UVI_{MEDIAN} deviate from OMUVBd observations by respectively $-16.8 \pm 12.9 \%$ and $-17.3 \pm 12.5 \%$. The response is quite different amongst the individual models. While the closest mean relative difference is observed for the MOCAGE model, it is also the one with the highest variability. In all cases, CCMI models are lower than UVI_{OMI} . As stated before previous studies on UVI_{OMI} validation against ground-based spectral measurements found a systematic overestimation. Therefore, in the present study, it is coherent to find lower values of simulated UVI compared to the UVI_{OMI} .

As a last test, we took the TOZ fields from the 18 models which performed a refC2 simulation from 2000 to 2010 and used them as input for TUV. From there we obtained 18 UVI fields covering the same period and calculated the median, hereafter UVI_{ALLM} .

The global relative difference of the monthly difference between these two data sets (UVI_{ALLM} and UVI_{MEDIAN}) is presented in Fig. 3. This result allows us to assess the sensitivity of the radiative transfer model to different ozone inputs. Due to latitudinal and seasonal differences, this approach has limitations but we aimed at having a first idea of the global difference of behaviour between models. Between both UVI fields there is a mean relative difference of $0.19 \pm 1.9 \%$. Around the globe, the differences range from -2% up to 2%. Conclusively, we can say that averaging CCMI TOZ fields prior to using them as input for TUV induce only a small difference in the resulting average UVI.

Due to computational constraints, it was not possible to compute UVI for each scenario and for all models throughout the 21st century. UVI_{MEDIAN} and UVI_{MEAN} compare well to the ground-based observations (Figure 1) and have the lowest dispersion among the different models (Figure 2). We therefore calculate the UVI from the different simulations based on median input fields derived from the available models, rather than the single model fields in order to save computational time and show only UVI_{MEDIAN} in the next section.

4 UV Projection throughout the 21st century

In the following subsection (4.1), we will discuss the evolution of UVI and TOZ over the 21st century for six latitudinal bands and for the four RCP scenarios by analysing the results of EXP1. We will then (section 4.2) look at the zonal monthly difference in UVI and TOZ between the 2000s and 2090s. In Section 4.3 we evaluate the impact of GHGs and ODSs on the evolution of UVI and TOZ in EXP2. Again, we will start by looking at the percent change of UVI and TOZ from 1960 to 2100. We then investigate the differences between the 1960s and 2090s.

4.1 Temporal evolution of UVI during the 21st century according to different RCPs

To investigate the evolution of UVI and TOZ throughout the 21st century, we choose the following latitudinal bands. Southern and northern high latitudes are defined from 90° to 60° S and 60° to 90° N, respectively. Southern and northern mid-latitudes are defined from 60° to 30° S and 30° to 60° N, respectively. Finally, southern and northern tropical latitudes are defined from 30° to 0° S and 0° to 30° N, respectively. We then calculate the zonal mean percent change in the 2090s compared with the 1960s. This was done for the four RCP scenarios. Results are presented in Figure 4. Relative percent changes between the 1960s and 2090s are summarised in Table 4 for all latitudinal bands. In order to compare our results to previous studies we also reported results from Bais et al. (2011) and Hegglin and Shepherd (2009).

Figure 4 shows, as expected, that negative changes in UVI are usually correlated with positive changes in TOZ, and vice versa, except in the northern mid and tropical latitudes where both TOZ and AOD drives UVI variability at the end of the 21st century (section 4.4). In the southern polar region (Fig 4f), we observe the well known decrease of TOZ due to ODS. The ozone layer starts to recover around 2000. Between 2000 and 2100 there is a 10 % increase of TOZ for RCP 2.6 and a 16% increase

for RCP 8.5. Consequently, there is a significant decrease of UVI, between 16 to 26 % for these scenarios between 2000 and 2100. Generally, the higher the radiative forcing, the more pronounced is the TOZ increase and UVI decrease. Compared to the 1960s, UVI will still be higher in 2100 by approximately 6.7%, 5.7% and 3.9% for RCP 2.6, 4.5 and 6.0, respectively. Only RCP 8.5 allows a complete return of UVI values in this region. Most of the UVI variability should in theory be explained by the recovery of the ozone layer; which we will verify in Section 4.4. The same behaviour is observed in the northern high latitudes, however, the magnitude is weaker. Compared to 1960s values, UVI will be 5.5%, 1.7% and 0.5% higher for RCP 2.6, 4.5 and 6.0 respectively. For RCP 8.5, there is a strong decrease of UVI (7.9%).

The same observation is made for the southern mid-latitudes with a maximal increase of TOZ of $\sim 9\%$ along with a maximum decrease of UVI of $\sim 12\%$ (Fig 4d) between 2000 and 2100. Compared to 1960 values, UVI percent changes in 2100 are within 0 and 3% depending on the RCP scenarios. In 2100 for RCP 2.6, while TOZ is slightly lower than its 1960 values ($\sim 1\%$), UVI is higher by $\sim 3\%$. Again, the maximum change occur for the strongest radiative forcing increase (RCP 8.5). Here, GHG effects are stronger, and consequently there is more ozone in this region and UV is weaker compared to 1960 values. In the Northern Hemisphere, while TOZ does not vary more than 1% between 1960 and 2000, we observe a significant growth between 2000 and 2100, $\sim 8\%$ for RCP 8.5. As expected UVI percent changes appear to be anticorrelated with TOZ percent changes between 2000 and 2050, but after 2050 while TOZ still increases, UVI is almost constant. A similar situation can be observed in the northern tropical band, where TOZ appears to change not more than 1% between 2000 and 2100, however we observe a 2% to 4% increase in UVI during this period. The largest UVI percent change is observed for the lowest change of radiative forcing (RCP 2.6) (Fig 4a). At the northern mid- and tropical latitudes TOZ is not the principal driver of UVI changes (Section 4.4). For the southern tropics, TOZ and UVI are well anti-correlated, changes during the 21st century are very small and are confined within 0-3% for the period 2000 to 2100 (Fig 4b). Nonetheless, in this region, at the end of the 21st century, UVI will still be about 3% higher compared with in the 1960s. In the tropics, we observe a decreasing UVI from 2000 to 2050, then UVI increases from 2050 to 2100.

RCP 8.5 presents either negative changes or lowest increase of UVI, it is also correlated with increase of TOZ. Methane emissions are large in RCP 8.5 and (Morgenstern et al., 2018) found that TOZ increase with increasing methane in CCMi models.

A similar study was carried out by Bais et al. (2011) within the CCMVal-2 activity, Bais et al. (2011) used the refB2 experiment which used the SRES A1B scenario for GHGs (a scenario close to RCP 6.0). Annual-mean surface UVI percent changes were computed against the 1975-1984 mean. Between 1975 and 2100 they observe a 7.48% and 9.80% UVI percent change decrease in the northern and southern high latitudes respectively. Here, between 1960 and 2100, we only observed a similar decrease ($\sim 7.9\%$) in northern high latitudes for RCP 8.5. For the other scenarios, in this region, we find UVI percent changes between 0.5 to 5.5%. In the southern high latitudes, UVI values are higher than the 1960 baseline for RCP 2.6, 4.5 and 6.0 by 6.7%, 5.7% and 3.9% respectively. For RCP 8.5, there is complete return of UVI to its 1960 values. In the southern mid-latitudes, while Bais et al. (2011) also noted a decrease of UVI (4.16%) during the 21st century, we find UVI increases by 3.4, 2.6, 1.8 % for RCP 2.6, 4.5, 6.0, respectively. For RCP 8.5, we found a 2.3% decrease in UVI. And, while Bais et al. (2011) found a decrease in the Northern Hemisphere for these latitudes, here we show that UVI increases in all scenarios except RCP

8.5. In the tropical belt (30° North to 30° South), between 2000 and 2100, Bais et al. (2011) found changes of UVI of about 1%. We found similar results with smaller values, between 0 to 3%.

Hegglin and Shepherd (2009) conducted a study on UVI changes due to stratospheric circulation-driven changes in the ozone distribution. They used the Canadian Middle Atmosphere Model (CMAM) simulation performed for the CCMVal intercomparison. By comparing UVI between 1960-1970 and 2090-2100, they observed an evolution at all latitudes close to the one found by Bais et al. (2011). Likewise they found an increase of UVI in the tropics of about 4%. This was also shown by Butler et al. (2016). To conclude, the CCMVal-2 results from Bais et al. (2011), Hegglin and Shepherd (2009) and our results show similar conclusions for the UVI evolution in the tropics, but our results are different in the northern tropical and mid-latitudes depending on the RCP scenario. As stated before, UVI is influenced mainly by TOZ but also by AOD, ALB, TNO₂, OP and TP. Hegglin and Shepherd (2009) used the analytical formula by Madronich (2007) to determine UVI, which only takes into account relative changes in TOZ. Bais et al. (2011) used a radiative transfer calculations, but aerosol properties were fixed to present climatological values. This could explain the different conclusion obtained in the present study for the Northern Hemisphere. To better understand the evolution of UVI in the northern mid and tropical latitudes, we will look at these other parameters in section 4.4.

We looked here at the evolution of UVI throughout the 21st century. In the next section, we will quantify in more detail the difference between the 2000s and the 2090s and between different climate scenarios.

4.2 Global UVI levels at the end of the 21st century.

UVI and TOZ zonal monthly differences between the 2000s and 2090s are presented in Fig. 5, for four RCPs for both UVI (left column) and TOZ (right column). There is some missing values during the winter months, because we chose a threshold for the SZA of less than 60 °to calculate the UVI.

First, we note that the strongest mean relative difference (MRD) of UVI or TOZ over the globe is associated with the strongest radiative forcing change. For RCP 8.5, UVI MRD over the globe is -7.9% and TOZ MRD is 6.74%. For RCP 2.6 we calculate a UVI MRD of -1.4 % and a TOZ MRD of 2.1%.

During the months of September, October and November and in each RCP, there is a strong decrease of UVI (more than 24%) associated with a strong increase of TOZ in the southern polar region between July and up to November. This is due to the strong recovery of the ozone layer in this region.

We calculate a decline of UVI in southern mid-latitudes associated with a rise in TOZ for all scenarios. In northern mid-latitudes, while TOZ levels increase with increasing radiative forcing, we do not observe a corresponding decrease of the UVI. This is due to decreasing AOD (Section 4.4).

The zero line separating a decrease of UVI at high latitudes from an increase at low latitudes appears to shift towards the equator as the radiative forcing increases. Thus the regions where UVI increases (up to 4 to 6 %) are concentrated around the equator with the increase in radiative forcing related to GHG concentrations. This could be explained by the larger GHG concentrations in the RCPs with higher radiative forcing, which are expected to play an important role for the BDC circulation (Butchart, 2014).

In the following sections we will investigate the impact of GHG, ODS and AOD on the UVI separately.

4.3 Effects of greenhouse gases and ozone depleting substances on future UVI.

The role of GHG and ODS on UVI variability from 1960 to 2100 is investigated in this section. To investigate the effects of GHGs and ODSs on UVI variability between 1960-2100, we analysed the CCMI sensitivity experiments senC2fGHG and senC2fODS. These are simulations based on refC2 (RCP 6.0), but with fixed GHG and ODS at constant 1960 concentrations, respectively. The CCMI models used in this part are those which provided data from refC2, senC2fGHG and senC2fODS. For the previous experiment (EXP1), we used the median AOD provided by three CCMI models (CHASER-MIROC-ESM, GEOSCCM and MRI) as input for the radiative transfer model. Here, we fixed AOD by taking the climatological values provided by Kinne et al. (2013). The UVI and TOZ evolution for these two sensitivity experiments and refC2 are presented in Fig. 6.

As expected TOZ shows the smallest trends in the simulations with fixed ODS; the same conclusion can be drawn for UVI. Since the senC2fGHG and refC2 simulations are in close agreement in the Antarctic region, climate change has the smallest influence on TOZ variation (Dhomse et al., 2018) and therefore on UVI variation in this region.

From these two experiments, we note that the return of TOZ to 1960 levels will be later following the fixed GHG scenario, at northern and southern high latitudes (Fig. 6e,f).

In the southern mid-latitudes (Fig 6d), a similar behaviour appears, the TOZ and UVI percent changes increase or decrease more rapidly with transient GHG concentrations. This is comparable in the Northern Hemisphere (Fig 6c), where GHGs induce a rapid increase of TOZ and a rapid decrease of UVI which are expected to reach $\sim 3\%$ and $\sim -3\%$ in 2100, respectively.

In the tropics (Fig 6a,b), ODS accounts for about 2% of UVI and TOZ variability. Variations in GHG concentrations appear to have almost no effect on UVI and TOZ until the middle of the 21st century. There is a 2% increase of UVI, which appears around 2070. This can be observed for the fixed GHG and fixed ODS simulations. The percent change in UVI for the refC2 simulation stabilizes around 2070. In this region, GHGs are responsible for the acceleration of the BDC which induces an decrease of ozone in the lower stratosphere. But they are also responsible for the cooling in the upper stratosphere which induces an increase of ozone. Therefore, the small magnitude of changes in this region could be explained by the compensating GHGs effects in the simulations (Kirner et al., 2015; Morgenstern et al., 2018).

Global monthly relative differences between the 2090s and 1960s are also plotted in Figure 7 for both, UVI (left column), and TOZ (right column) for the refC2, senC2fODS and senC2fGHG simulations.

With fixed ODS, there is a 3.75% mean relative difference of UVI over the globe driven by increasing GHGs which affect the circulation. In the tropical belt changes are $\sim 2\%$ higher compared to the standard refC2 run especially in the summer for both hemispheres. Nonetheless, the tropical region is also the place where UVI has the highest absolute values, therefore even a small relative increase means a decent increase of absolute values. With fixed GHG, the effects of ODSs are minimal for the difference between 2100 and 1960.

4.4 Others effects affecting UVI.

In Sections 4.1 and 4.2, we found UVI increases in the northern mid and tropical latitudes, which were not correlated with TOZ changes. In Figure 8, we present the percent change of UVI, TOZ, and AOD in the northern high, mid and low latitudes for the EXP3A, EXP3FTOZ and EXP3FAOD experiments. This is also done for the southern latitudes (Figure 9). In Table 5, we summarize the UVI percent changes between 2100 and 2000 for three EXP3 experiments. We also report the TOZ and AOD changes. The results discussed here represents zonal averages. AOD exhibits large spatial variability therefore these results should not be generalized.

At the mid-latitudes in EXP3FAOD, UVI decreases and is clearly anticorrelated with TOZ changes (blue curve, Fig.8b). For the same region in EXP3FTOZ, there is a 6% UVI percent change in this region in 2100 (green curve, Fig.8b). On the same figure, in EXP3A, UVI (orange curve) also increases by a smaller amount (up to $\sim 4\%$ at the end of the 21st century). Both TOZ and AOD drive the UVI variability in this region. As the RCPs project a decline in aerosols precursor emissions (van Vuuren et al., 2011), AOD decreases especially in the Northern Hemisphere and thus has strong effect on UVI. It is the same situation at the northern tropics (Fig. 8c,f and i), where AOD decreases by $\sim 16\%$ and TOZ only changes slightly ($<1\%$). The experiments with transient AOD and either fixed or variable TOZ exhibit almost the same percent change in UVI. This would indicate that AOD changes drive the UVI at these latitudes where TOZ variations are small. At northern high latitudes, AOD decreases by $\sim 80\%$ and TOZ increases by $\sim 4\%$ at the end of the century. With transient AOD and TOZ, UVI decreases by $\sim 3\%$ (orange curve, Fig. 8a) and appears to follows the TOZ variability along the 21st century. In this region both TOZ and AOD drive UVI levels. For a medium decrease of AOD and very small changes of TOZ, AOD appears to be the main driver of UVI levels in the tropics.

In the Southern Hemisphere, the situation is different, as shown in Fig. 9. UVI percent changes are driven by the TOZ percent changes, which are important due to the recovery of the ozone layer. In addition AOD percent changes are very small in this region. In the southern high, mid and tropical latitudes, where there are small AOD percent changes compared to northern middle and tropical latitudes, UVI variability is driven by TOZ changes. The simulations with transient TOZ and either fixed AOD (blue curve) or transient AOD (orange curve) are almost identical and there is almost no UVI change if TOZ is fixed (green curve).

In summary, the UVI evolution observed in the Northern Hemisphere (Section 4.1) can be explained by both TOZ and AOD changes (Figure 8). In the Southern Hemisphere TOZ is still the main driver of UVI variability.

Bais et al. (2015) also investigated the impact of AOD and TOZ along with clouds and surface reflectivity on UVI. Due to ozone changes, between 2010-2020 and 2085-2095, they found a $\pm 2-4\%$ UVI changes in the tropics, a 5-10 % decrease in middle latitudes and a 40% decrease in Antarctica. We found here close results, a $\pm 1\%$ changes in the tropics, a 3 to 6 % decrease in middle latitudes and a 25 % decrease in the southern high latitudes. Due to aerosols changes, Bais et al. (2015) also found a strong effect of AOD (10-50%) in the northern hemisphere, especially over south east Asia where a $\approx 50\%$ UVI increase is reported. It should be noted that UVI changes due to AOD presents strong longitudinal variability (Bais et al.,

2015) which are not taken into account in the zonally average results presented here. Therefore the present results can not be generalised.

This last result shows that UVI evolution in the future will not only depends on TOZ but also on AOD. Bais et al. (2015) also addressed this subject and expressed valid concerns on the uncertainties associated with the aerosol effect. However AOD remains, besides clouds, one of the biggest sources of uncertainties in climate projections (IPCC, 2013). Additionally, single scattering albedo (SSA), which was fixed at present-day climatological values, has a strong effect on AOD absorption of UVI (Correa et al., 2013). Future studies should be conducted taking into account the impacts of clouds, AOD and SSA on future UVI levels.

5 Conclusions

We have shown that the use of CCMI model data with a radiative transfer model (TUV) enable current climatological values of UVI to be reproduced. Satellite UVI observations show a constant positive bias compared to ground-based observations (Tanskanen et al., 2007; Brogniez et al., 2016). UVI can be reproduced with a 4 to 8% level of accuracy (Brogniez et al., 2016). UVI simulated with CCMI model data over the globe presents a negative median relative difference compared to satellite observations ranging between 0 to 20%. UVI simulated with CCMI model data presents a mean relative difference ranges from -4% to 11% compared to ground-based observations. In comparison to ground-based observations, we reproduce the monthly climatological variability at six stations spread across latitudes.

We investigated the impact of ODS and GHG on UVI. We confirm the role of GHGs in accelerating the return of UVI to 1960 levels via accelerating the ozone recovery. GHGs accounts for approximately 3.8% of the UVI changes between 1960 and 2100. While ODS have an effect on UVI between 1960 to 2050 due to ozone depletion, fixed GHG simulation show small changes of UVI.

In the context of a changing climate, surface UV irradiance in clear sky conditions is projected globally over the 21st century. Clouds effects can alter significantly the predicted changes. We investigate here the changes for different RCP scenarios (Fig 4). In all scenarios at high southern latitudes, as TOZ return to 1960 levels, UVI is expected to return to 1960s values. It has already been found that ozone returns dates will arrive sooner should GHG emissions follow RCP 8.5 (Dhomse et al., 2018; WMO, 2014). We find here that UVI levels are mainly driven by TOZ changes at these latitudes, therefore UVI will also return to 1960 levels sooner for RCP 8.5.

In mid-latitudes, TOZ should increase between 1960 and 2100 in both hemispheres for all RCPs except RCP 8.5. The higher emissions of GHG assumed in RCP 8.5 cause significant differences between RCP 8.5 and the other scenarios. In the Southern Hemisphere, UVI levels are driven by TOZ, but in the Northern Hemisphere, the declining AOD from the median of three CCMI models oppose the effect of a TOZ increase. AOD and TOZ are drivers of UVI variability in this hemisphere with AOD being approximately twice as important as TOZ. Further studies are needed to investigate this issue thoroughly. In our present work, only AOD and the Ångström exponent are evolving through the 21st century, and SSA was fixed to present-day climatological values. Higher values of SSA would increase the absorption effectiveness of AOD and thus impact UV radiation

(Correa et al., 2013). Regionally varying SSA changes are expected globally (Takemura, 2012). The upcoming Aerosol and Chemistry Intercomparison Project (AerChemMIP) (Collins et al., 2017) will provide an opportunity to examine this subject.

Zonal mean UVI variability is limited to 0-3% over the tropics. This result is similar to those found by Bais et al. (2015), Bais et al. (2011) and Hegglin and Shepherd (2009). Logically the increases are higher in the summer of both hemisphere; where
5 local maxima of 8 to 10% were found. An increase of 10% in the tropics is a matter of concern, as the tropics is already the region with the highest values of UVI, therefore even a small percent increase could have strong effect on the biosphere. This study focused on the UVI which does not directly impact human health. Further investigation on exposure and integrated dose of UVI should be conducted in order to assess the link between UV irradiance changes and human health impact. The impact of these types of increase on human health, the biosphere and consequently on biogeochemical cycles should be the subject
10 of future studies. Moreover, numerous approximations were realized in the present work, further analysis on seasonal and longitudinal variabilities along with differences between models should be conducted in regards to UVI in order to precisely assess the impact and uncertainties due to AOD, zonally average profile and surface reflectivity on UVI.

Model	Institution	PIs	References
ACCESS-CCM	U. Melbourne, AAD, NIWA	K. Stone, R. Schofield, A. Klelociuk, D. Karoly, O. Morgenstern	Morgenstern et al. (2009), Stone et al. (2016)
CCSRNIES MIROC3.2	NIES, Tsukuba, Japan	H. Akiyoshi, Y. Yamashita	Imai et al. (2013), Akiyoshi et al. (2016)
CHASER (MIROC-ESM)	U. Nagoya, JAMSTEC, NIES	K. Sudo, T. Nagashima	Sudo et al. (2002), Sekiya and Sudo (2012), Watanabe et al. (2011)
CMAM	CCCma, Canada	D. Plummer, J. Scinocca	Jonsson et al. (2004), Scinocca et al. (2008)
CNRM-CM5-3	CNRM, Toulouse, France	M. Michou, D. Saint-Martin	Michou et al. (2011), Voldoire et al. (2013)
EMAC-L90	DLR, Oberpfaffenhofen, Germany	P. Jöckel, H. Tost, A. Pozzer, M. Kunze, O. Kirner,	Jöckel et al. (2010), Jöckel et al. (2016)
GEOSCCM	NASA GSFC, Greenbelt, USA	L. D. Oman, S. E. Strahan	Molod et al. (2015), Oman et al. (2011)
HadGEM3-ES	MOHC, UK	F. M. O'Connor, N. Butchart, S. C. Hardiman, S. T. Rumbold	Hardiman et al. (2017), Walters et al. (2014), O'Connor et al. (2014), Madec et al. (2015), Hunke et al. (2010)
LMDZrepro	LMD, IPSL, Paris, France	S. Bekki, M. Marchand, F. Lott, D. Cugnet, L. Guez, F. Lefevre, S. Szopa, R.M Hu	Dufresne et al. (2013), Marchand et al. (2012), Szopa et al. (2013)
MOCAGE	CNRM, Toulouse, France	B. Josse, V. Marecal	Josse et al. (2004), Guth et al. (2016)
MRI-ESM1r1	MRI JMA, Tsukuba, Japan	M. Deushi, T. Y. Tanaka, K. Yoshida	Yukimoto et al. (2012), Deushi and Shibata (2011)
NIWA-UKCA	NIWA, Wellington, NZ	O. Morgenstern, G. Zeng	Morgenstern et al. (2009), Morgenstern et al. (2017)
SOCOL	PMOD/WRC, IAC/ETHZ	E. Rozanov, A. Stenke, L. Revell	Revell et al. (2015), Stenke et al. (2013)
ULAQ	U. L'Aquila, Italy	G. Pitari, G. Di Genova, D. Visioni	Pitari et al. (2014)
UMSLIMCAT	U. Leeds, UK	S. Dhomse, M. P. Chipperfield	Tian and Chipperfield (2005)
UMUKCA	U. Cambridge, UK	N. L. Abraham, A. T. Archibald, R. Currie, J. A. Pyle	Morgenstern et al. (2009), Bednarz et al. (2016)
WACCM (CESM1)	NCAR	D. Kinisson, R. R. Garcia, A. K. Smith, A. Gettelman, D. Marsh, C. Bardeen, M. Mills	Marsh et al. (2013), Solomon et al. (2015), Garcia et al. (2017)

Table 1. CCM1 Model with Principal Investigator (PIs) and institutions.

Characteristics	EXP1	EXP2	EXP3		
			EXP3A	EXP3FTOZ	EXP3FAOD
Simulation	refC2 (RCP 6.0) RCP 2.6 RCP 4.5 RCP 8.5	refC2 (RCP 6.0) senC2fODS senC2fGHG	refC2 (RCP 6.0)		
TOZ AOD	Transient Transient	Transient Fixed (Kinne et al., 2013)	Transient Transient	Fixed (2000-2010 values) Transient	Transient Fixed (Kinne et al., 2013)
MultiModelMedian from	CCSRNIES MIROC3.2 CMAM LMDZrepro SOCOL ULAQ	ACCESS-CCM CCSRNIES MIROC 3.2 CHASER (MIROC-ESM) CMAM LMDZrepro NIWA-UKCA UMSLIMCAT WACCM	same as EXP1		

Table 2. Characteristics of the experiment conducted in this study.

Station	Latitude	Longitude	Relative Difference [%]			Absolute Difference		
			MEAN	MEDIAN	OMI	MEAN	MEDIAN	OMI
Mauna Loa	19.54° N	155.58° W	5.4	4.4	16.0	0.3	0.2	1.1
Saint-Denis	20.09° S	55.5° W	-3.5	-5.3	13.6	-0.3	-0.5	1.5
Villeneuve d'Ascq	50.61° N	3.14° E	2.5	2.8	24.5	0.2	0.01	0.8
Lauder	45.04° S	169.68° E	-3.9	-5.9	6.9	-0.2	-0.4	0.3
Barrow	71.32° N	156.68° W	2.9	2.0	29.3	0.04	0.02	0.6
Palmer	64.77° S	64.05° W	10.6	10.3	8.1	0.3	0.3	0.2

Table 3. Mean UVI relative and absolute difference of the monthly climatology between UVI_{MEAN} , UVI_{MEDIAN} , UVI_{OMI} to the ground-based measurements (UVI_{GB}).

If we define the UVI from ground-based measurements as UVI_{GB} , the differences are calculated as:

Relative Difference is defined as: $RD = 100 \frac{UVI_{MEAN} - UVI_{GB}}{UVI_{GB}}$.

Absolute Difference is defined as: $RD = UVI_{MEAN} - UVI_{GB}$.

The same calculation applies to UVI_{MEDIAN} and UVI_{OMI} . For Barrow and Palmer station we selected the six months of their respective summer.

Region	RCP				RCP 6.0 with fixed AOD	senC2fODS	senc2fGHG	Bais et al. (2011)	Hegglin and Shepherd (2009)
	2.6	4.5	6.0	8.5					
60°- 90 °N	5.5	1.7	0.5	-7.9	-4.8	-0.6	1.4	-7.48	-9.1
30°- 60 °N	8.3	5.2	5.0	-1.4	-1.9	2.3	0.7	-4.10	-3.6
0°- 30 °N	2.8	2.7	2.7	0.9	2.9	6.5	0.1	0.89	3.8
0°- 30 °S	2.6	2.9	2.9	1.5	3.0	6.6	0.5		
30°- 60 °S	3.4	2.6	1.8	-2.28	0.3	3.7	1.7	-4.16	0.
60°- 90 °S	6.7	5.7	3.9	0.	-2	-0.1	2.7	-9.8	3.2

Table 4. Percent changes in UVI between 2100 and 1960.

Results for RCP 2.6, 4.5, 6.0 and 8.5 are obtained from EXP1 experiment.

Results for RCP 6.0 with fixed AOD, senC2fODS and senc2fGHG are obtained from EXP2 experiment.

Region	UVI			TOZ	AOD	Comments
	EXP3A	EXP3FTOZ	EXP3FAOD			
90 - 60 N	-2.1	2.1	-5.5	4.5	-78	TOZ and AOD drive UVI levels
30 - 60 N	3.8	6.2	-2.8	3.0	-77	TOZ and AOD drive UVI levels
0 - 30 N	3.5	2.3	1.2	-0.5	-15	TOZ and AOD drive UVI levels
0 - 30 S	0.6	0.0	0.5	0.2	-0.3	TOZ drives UVI levels
30 - 60 S	-6.1	0.1	-6.0	5.6	-4.16	TOZ drives UVI levels
60 - 90 S	-26.8	-3.2	-26.7	11.8	-1.5	TOZ drives UVI levels

Table 5. Percent Changes in UVI, TOZ and AOD between 2100 and 2000 for the EXP3A, EXP3FTOZ and EXP3FAOD experiments.

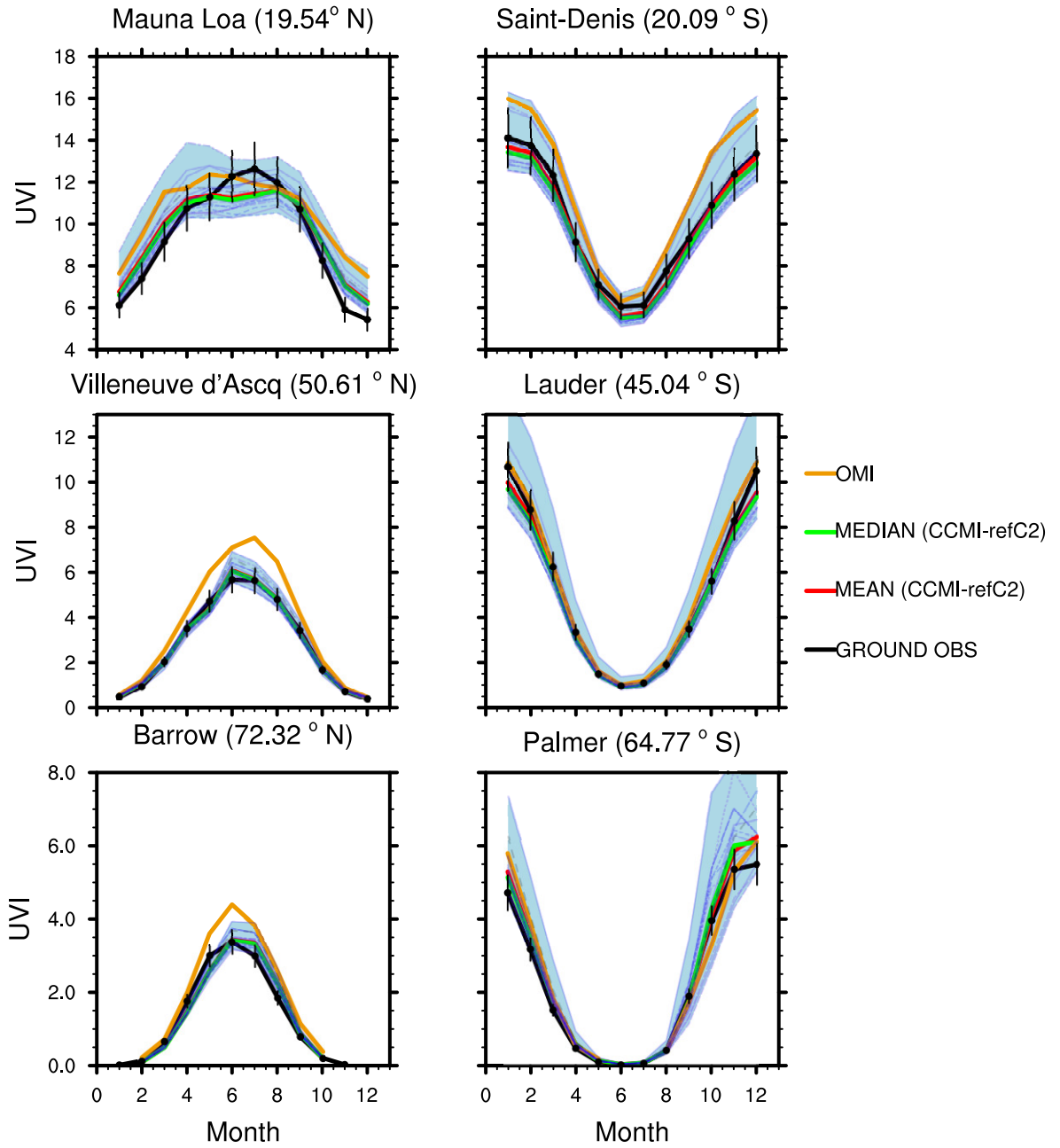


Figure 1. UVI_{GB} (2000-2010) for six NDACC stations along with the respective closest grid point from CCMI&TUV UVI simulation (UVI_{MEAN} and UVI_{MEDIAN}). Station measurements are represented in the black curve with a 2σ dispersion bar. UVI_{MEAN} and UVI_{MEDIAN} are represented in green and red. Each CCMI models are represented in light blue, the shaded blue area represents the spread of the models. UVI_{OMI} from the OMUVBd product are in orange.

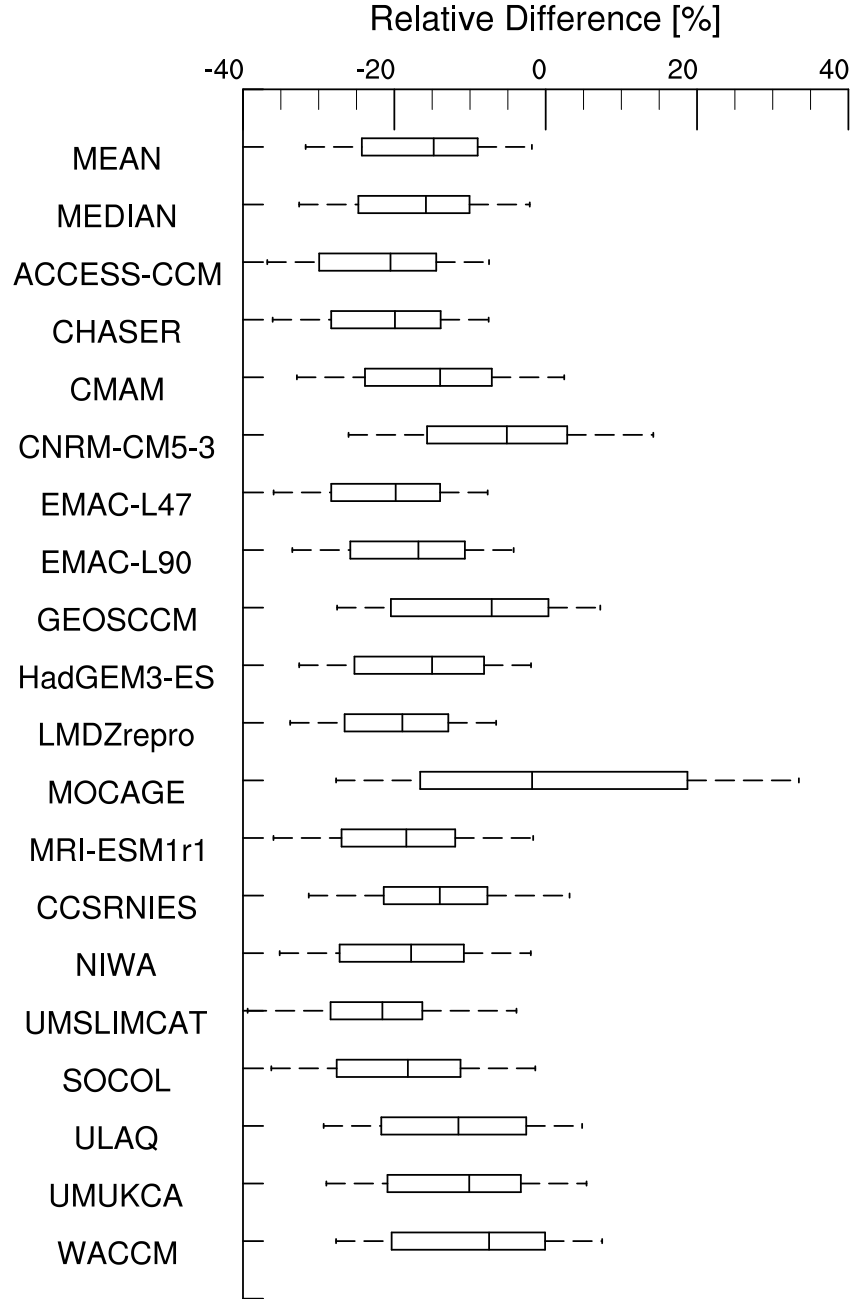


Figure 2. Boxplots summaries of the relative differences between the monthly UVI from CCMI models (refC2) and the monthly mean OMUVBd product for the period 2000-2010. Left and right end of the box are the first and third quartile respectively. The line inside the box is the median or second quartile. Left and right end of the whiskers are the mean $\pm$ 1-standard deviation.

For a model M, (M being Mean, Median, ACCESS-CCM, CHASER, ...) from which we obtained UVI_M , we compute: $UVI_{RD}[\%] = 100 \frac{UVI_M - UVI_{OMI}}{UVI_{OMI}}$

MRD: 0.19+- 1.91 %

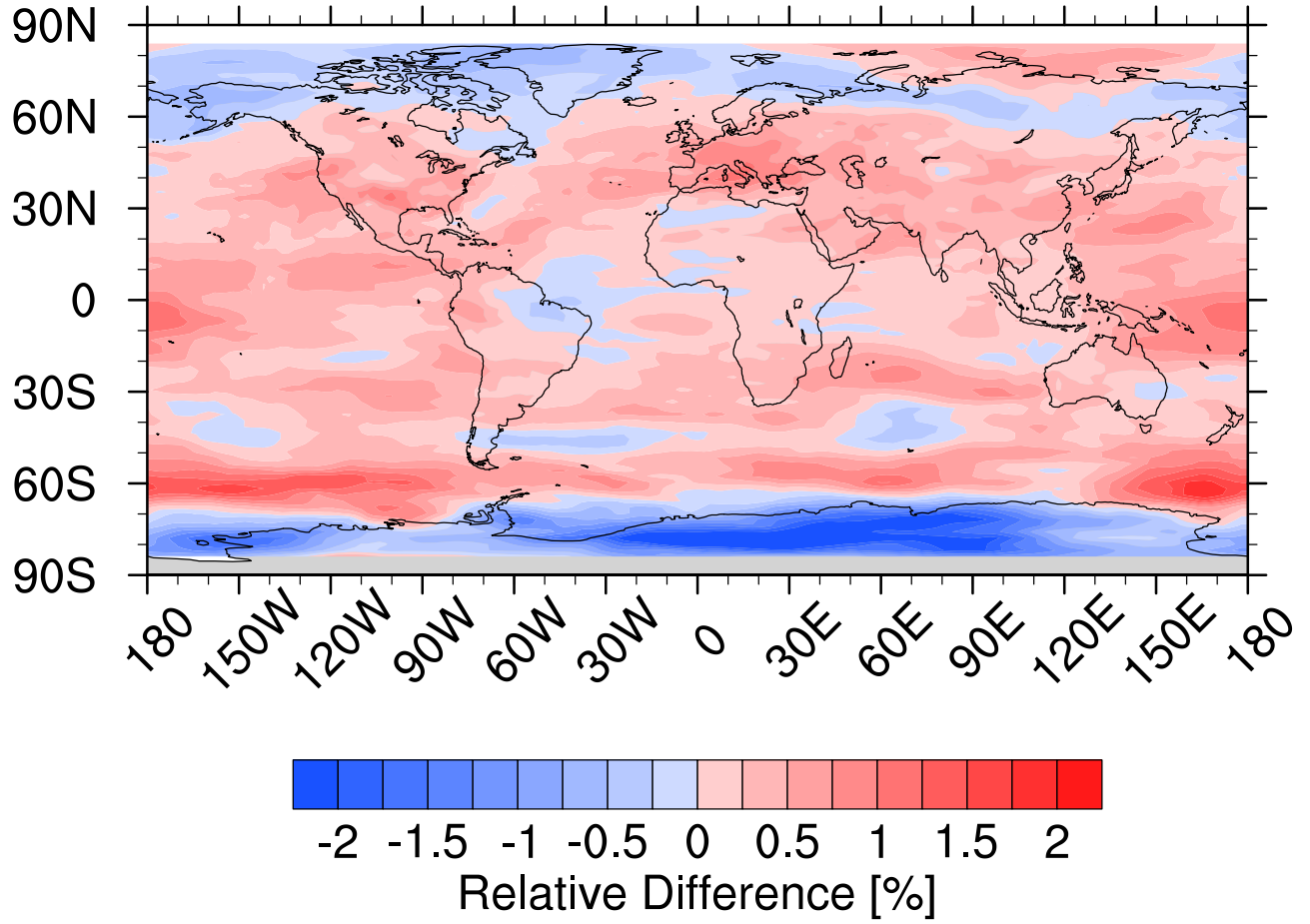


Figure 3. UVI annual mean relative difference between the median UVI obtained from the 18 CCMI model data used and TUV and the UVI obtained from the CCMI median TOZ used with TUV for the period 2000-2010.

$$UVI_{RD}[\%] = 200 \frac{UVI_{ALLM} - UVI_{MEDIAN}}{UVI_{ALLM} + UVI_{MEDIAN}}$$

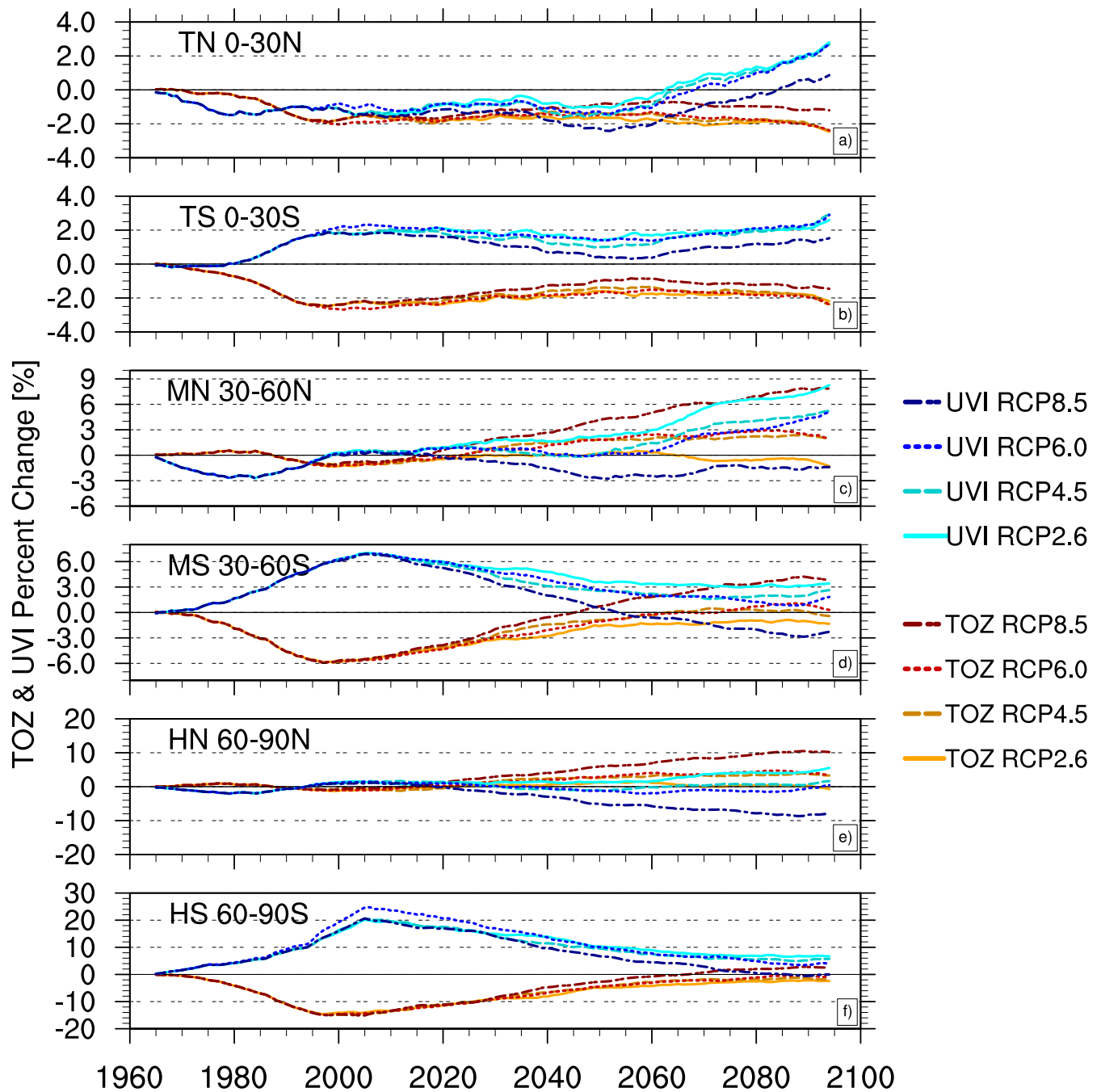


Figure 4. UVI and TOZ percent change relative to 1960-2070 values for six latitudinal bands; Northern Tropical band (0° - 30 °N), Southern Tropical band (0° - 30 °S), Northern Mid Latitude band (30° - 60 °N), Southern Mid Latitude band (30° - 60 °S), Northern High Latitude band (60° - 90 °N), Southern High Latitude band (60° - 90 °S). UVI changes are represented in different shades of blue for the four RCPs scenarios. TOZ changes are represented in different shades of red.

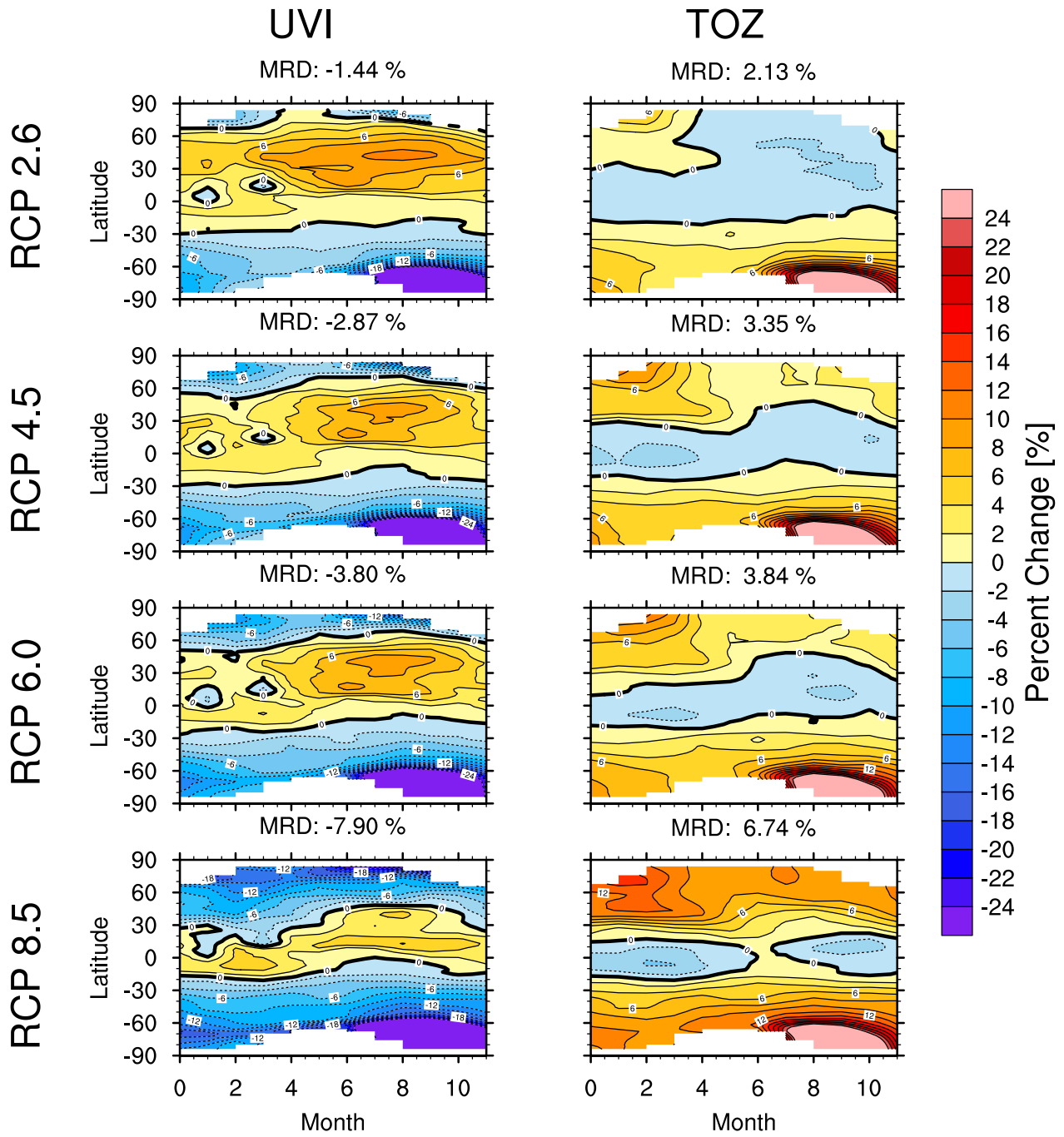


Figure 5. Latitudinal and monthly variation of UVI and TOZ percent change in 2090-2100 relative to 2000-2010 for the four RCP scenarios

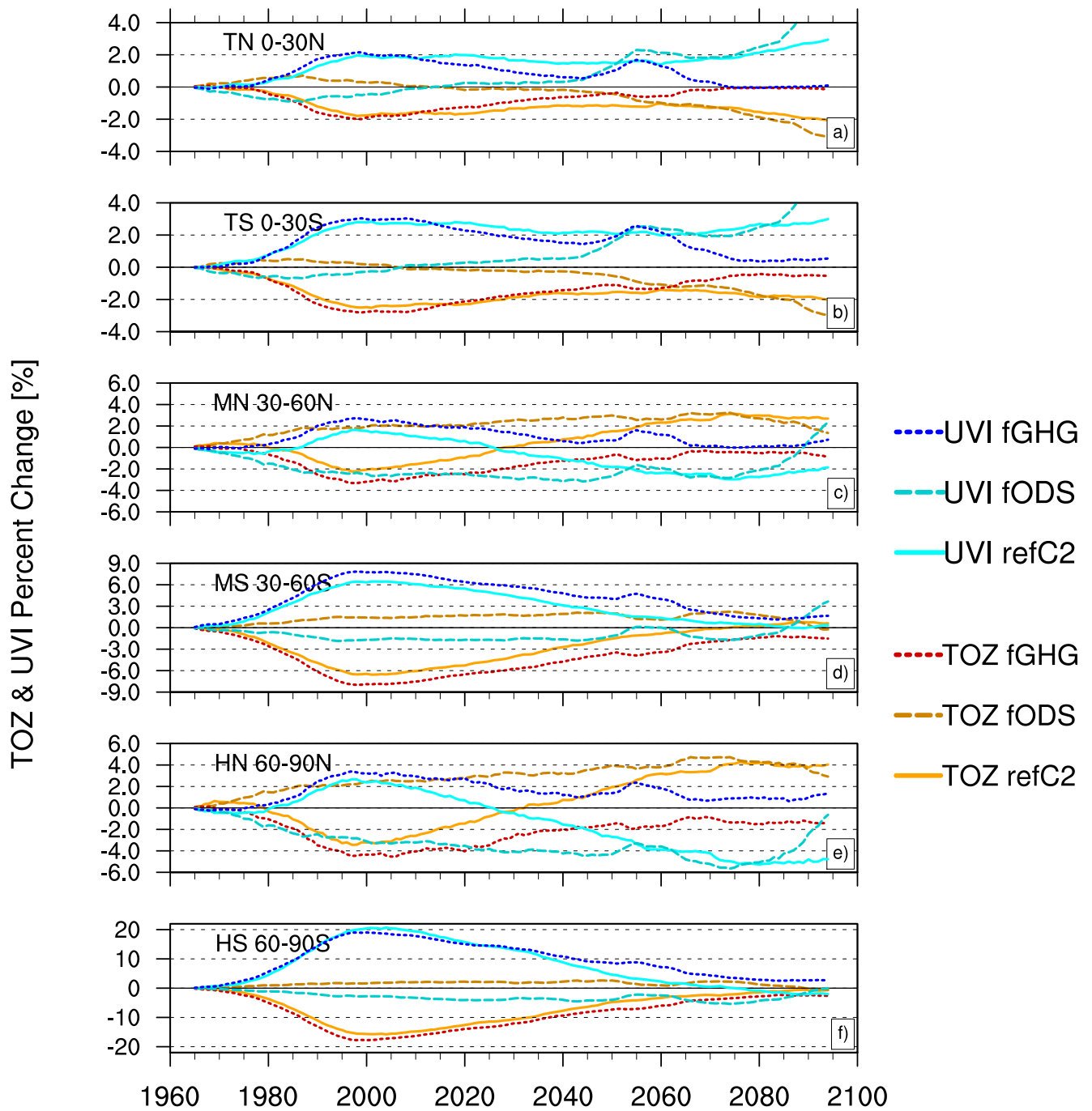


Figure 6. UVI and TOZ percent changes (relative to 1960s values) for six latitudinal bands; Northern Tropical band (0° - 30° N), Southern Tropical band (0° - 30° S), Northern Mid Latitude band (30° - 60° N), Southern Mid Latitude band (30° - 60° S), Northern High Latitude band (60° - 90° N), Southern High Latitude band (60° - 90° S). UVI changes are represented in different shades of blue for the four RCPs scenarios. TOZ changes are represented in different shades of red.

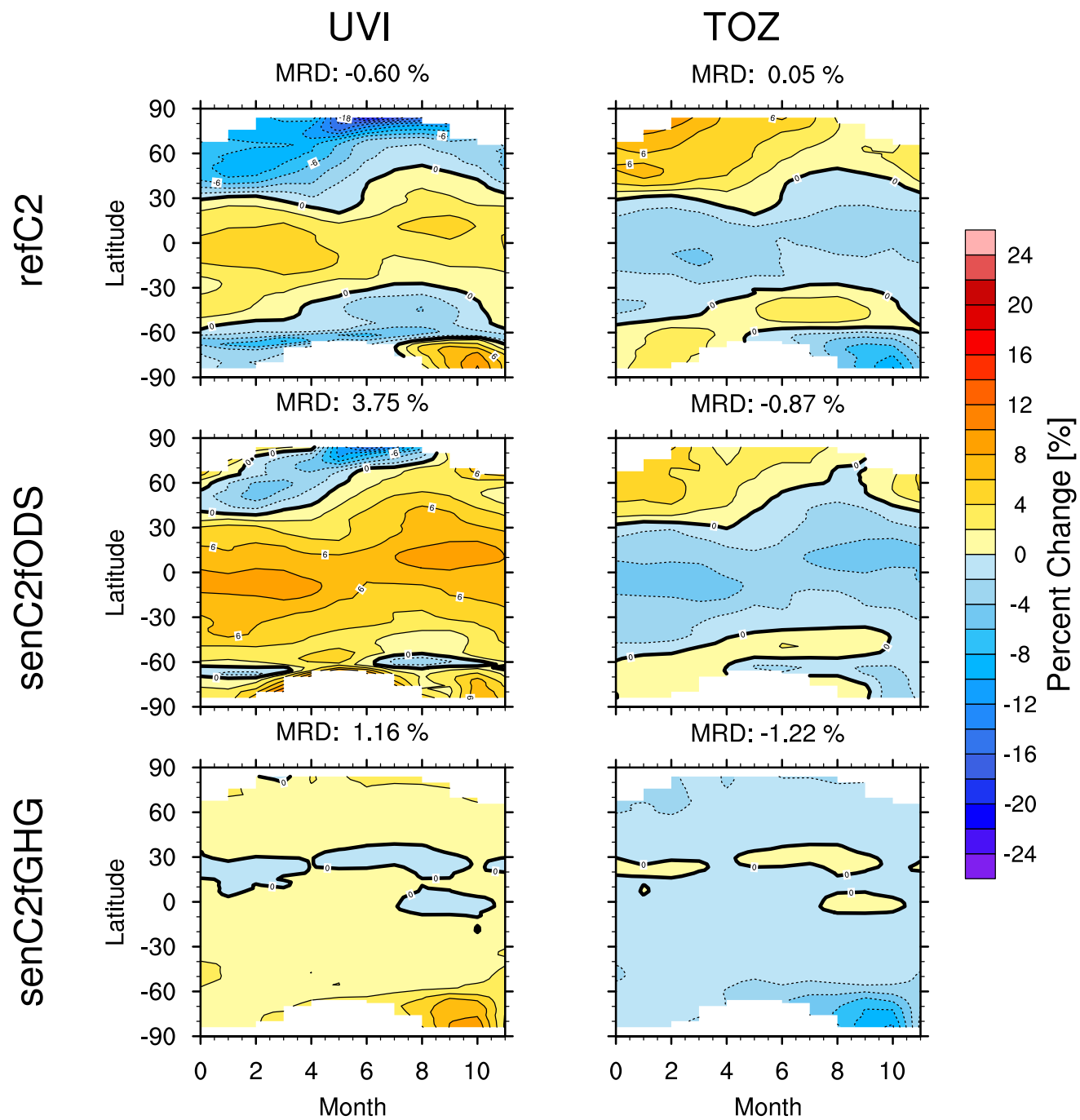


Figure 7. Latitudinal and monthly variation of UVI and TOZ percent change between 2090-2100 and 1960-1970 values for refC2, senC2fODS, senC2fGHG.

Northern Latitudes Changes

— UVI w Fixed TOZ & AOD(t)
— UVI w TOZ(t) & Fixed AOD
— UVI w TOZ(t) & AOD(t)

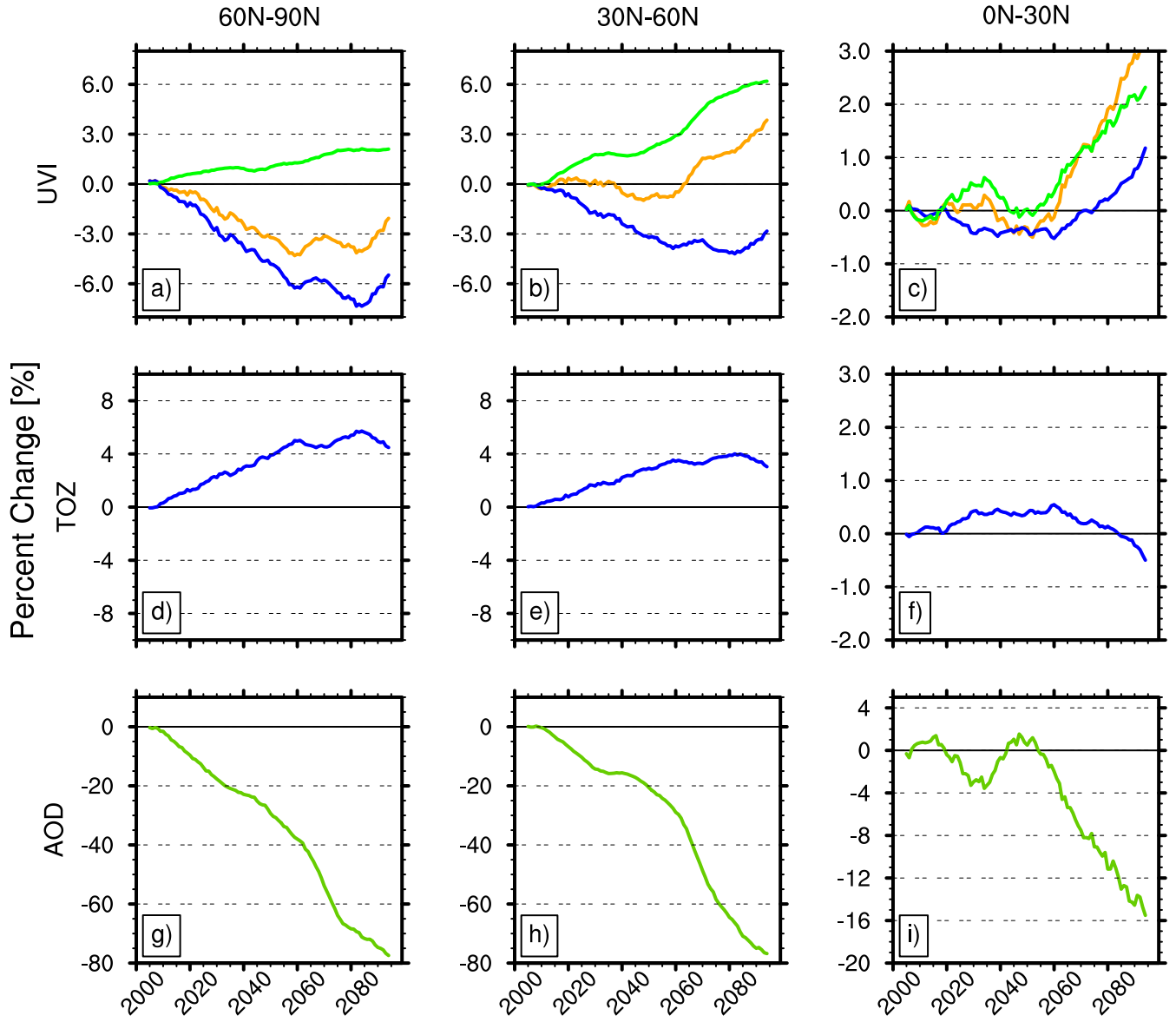


Figure 8. UVI, TOZ and AOD percent change from 2000-2010 values in the northern high, mid, and low latitudes for the EXP3 experiment. UVI modeled with transient TOZ and AOD fixed at present-day climatological values are in blue. UVI modeled with TOZ fixed at present-day climatological values and AOD variable through the 21st century are in green. UVI modeled with transient TOZ and AOD are in orange. TOZ and AOD are respectively in blue and green.

Southern Latitudes Changes

— UVI w Fixed TOZ & AOD(t)
— UVI w TOZ(t) & Fixed AOD
— UVI w TOZ(t) & AOD(t)

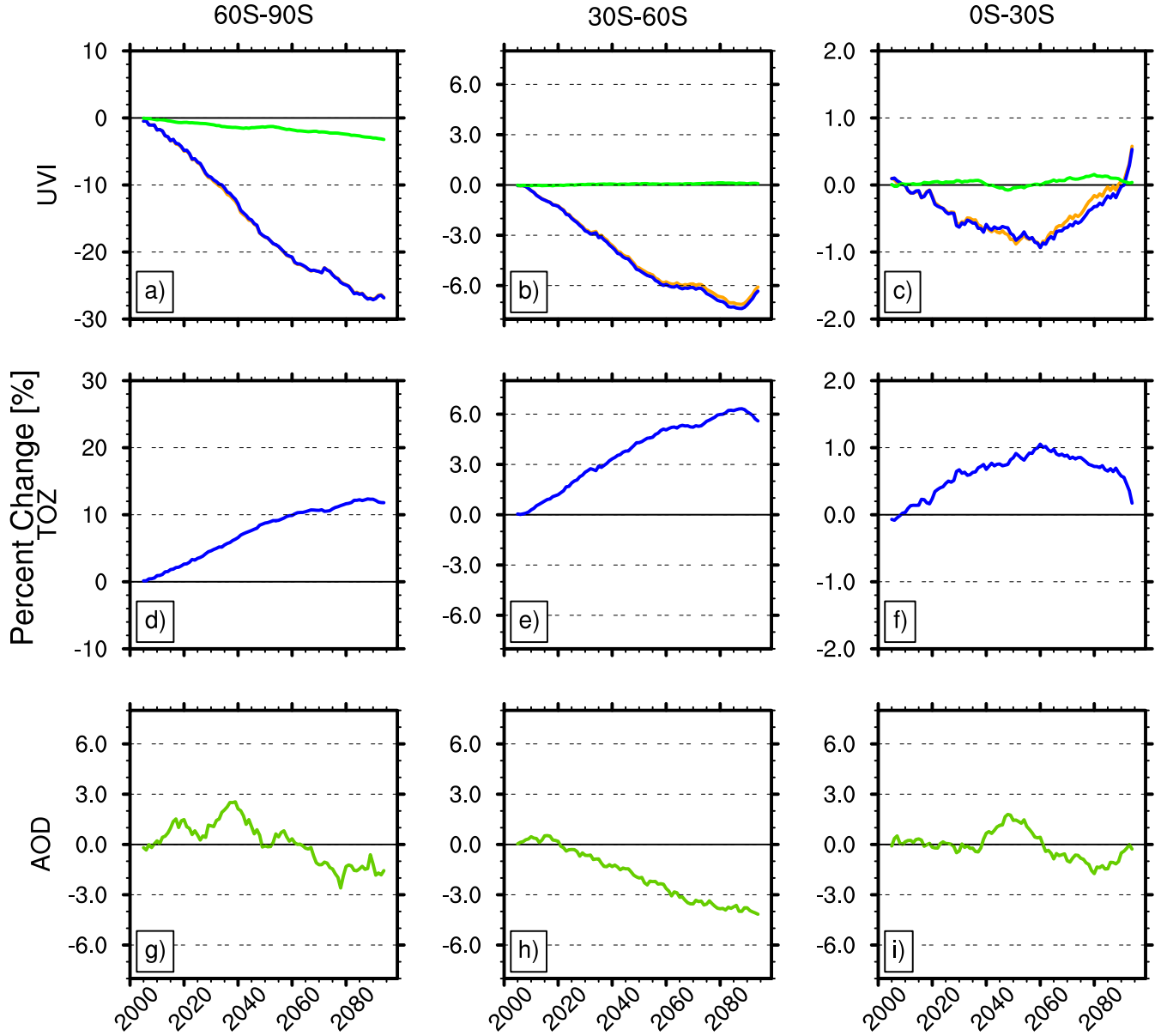


Figure 9. UVI, TOZ and AOD percent change from 2000-2010 values in the southern high, mid, and low latitudes for the EXP3 experiment. UVI calculated with transient TOZ and and AOD fixed at present-day climatological values are in blue. UVI calculated with TOZ fixed at present-day climatological values and AOD variable through the 21st century are in green. UVI calculated with transient TOZ and AOD are in orange. TOZ and AOD are in blue and green respectively.

Acknowledgements. The authors acknowledge the Région Réunion, CNRS and Université de la Réunion for support and contribution within the research infrastructure OPAR (Observatoire de Physique de l'Atmosphère à la Réunion). OPAR is presently funded by CNRS (INSU) and Université de la Réunion and managed by OSU-R (Observatoires des Sciences de l'Univers à la Réunion, UMS 3365).

5 The data used in this publication were obtained as part of the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC) and are publicly available (see <http://www.ndacc.org>).

We acknowledge the modeling groups for making their simulations available for this analysis, the joint IGBP-IGAC/WCRP-SPARC Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) for organizing and coordinating the model data analysis activity, and the British Atmospheric
10 Data Center (BADC) for collecting and archiving the CCMI model output.

This project was supported by the European Project StratoClim (7th Framework Programme, grant agreement 603557) and the grant "SOLSPEC" from the Centre d'Etude Spatiale (CNES).

15 The SOCOL team acknowledges support from the Swiss National Science Foundation under grant agreement CRSII2_147659 (FUPSOL II). E.R. acknowledges support from the Swiss National Science Foundation under grants 169241 (VEC) and 163206 (SIMA).

CCSRNIES research was supported by the Environment Research and Technology Development Fund (2-1303 and 2-1709) of the Ministry of the Environment, Japan, and computations were performed on NEC-SX9/A(ECO) computers at the CGER, NIES.

20

The EMAC simulations have been performed at the German Climate Computing Centre (DKRZ) through support from the Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF). DKRZ and its scientific steering committee are gratefully acknowledged for providing the HPC and data archiving resources for the consortial project ESCiMo (Earth System Chemistry integrated Modelling).

25 N.B., and F.M.O'C. were supported by the Joint UK BEIS/Defra Met Office Hadley Centre Climate Programme (GA01101). N.B. also acknowledges the European Commission's 7th Framework Programme, under grant agreement no. 603557, StratoClim project.

Olaf Morgenstern and Guang Zeng wish to acknowledge the contribution of NeSI high-performance computing facilities to the results of this research. New Zealand's national facilities are provided by the New Zealand eScience Infrastructure (NeSI) and funded jointly by
30 NeSI's collaborator institutions and through the Ministry of Business, Innovation & Employment's Research Infrastructure programme (<https://www.nesi.org.nz>). Olaf Morgenstern acknowledges support from the Royal Society Marsden Fund, grant 12-NIW-006, and under the Deep South National Science Challenge.

References

- Akiyoshi, H., Nakamura, T., Miyasaka, T., Shiotani, M., and Suzuki, M.: A nudged chemistry-climate model simulation of chemical constituent distribution at northern high-latitude stratosphere observed by SMILES and MLS during the 2009/2010 stratospheric sudden warming, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 121, 1361–1380, 2016.
- 5 Andrews, D. G., Holton, J. R., and Leovy, C. B.: *Middle atmosphere dynamics*, 40, Academic press, 1987.
- Bais, A., McKenzie, R., Bernhard, G., Aucamp, P., Ilyas, M., Madronich, S., and Tourpali, K.: Ozone depletion and climate change: impacts on UV radiation, *Photochemical & Photobiological Sciences*, 14, 19–52, 2015.
- Bais, A. F., Zerefos, C. S., Meleti, C., Ziomas, I. C., and Tourpali, K.: Spectral measurements of solar UVB radiation and its relations to total ozone, SO₂, and clouds, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 98, 5199–5204, <https://doi.org/10.1029/92JD02904>,
10 <http://dx.doi.org/10.1029/92JD02904>, 1993.
- Bais, A. F., Tourpali, K., Kazantzidis, A., Akiyoshi, H., Bekki, S., Braesicke, P., Chipperfield, M. P., Dameris, M., Eyring, V., Garny, H., and et al.: Projections of UV radiation changes in the 21st century: impact of ozone recovery and cloud effects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 7533–7545, <https://doi.org/10.5194/acp-11-7533-2011>, 2011.
- Bednarz, E. M., Maycock, A. C., Abraham, N. L., Braesicke, P., Dessens, O., and Pyle, J. A.: Future Arctic ozone recovery: the importance
15 of chemistry and dynamics, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 12 159–12 176, 2016.
- Brewer, A. W.: Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 75, 351–363, <https://doi.org/10.1002/qj.49707532603>, <http://dx.doi.org/10.1002/qj.49707532603>, 1949.
- Brogniez, C., Auriol, F., Deroo, C., Arola, A., Kujanpää, J., Sauvage, B., Kalakoski, N., Pitkänen, M. R. A., Catalfamo, M., Metzger, J.-M.,
20 and et al.: Validation of satellite-based noontime UVI with NDACC ground-based instruments: influence of topography, environment and satellite overpass time, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 15 049–15 074, <https://doi.org/10.5194/acp-16-15049-2016>, <http://dx.doi.org/10.5194/acp-16-15049-2016>, 2016.
- Brühl, C. and Crutzen, P. J.: On the disproportionate role of tropospheric ozone as a filter against solar UV-B radiation, *Geophysical Research Letters*, 16, 703–706, <https://doi.org/10.1029/GL016i007p00703>, <http://dx.doi.org/10.1029/GL016i007p00703>, 1989.
- 25 Butchart, N.: The Brewer-Dobson circulation, *Reviews of Geophysics*, 52, 157–184, <https://doi.org/10.1002/2013rg000448>, 2014.
- Butler, A. H., Daniel, J. S., Portmann, R. W., Ravishankara, A. R., Young, P. J., Fahey, D. W., and Rosenlof, K. H.: Diverse policy implications for future ozone and surface UV in a changing climate, *Environmental Research Letters*, 11, 064 017, <http://stacks.iop.org/1748-9326/11/i=6/a=064017>, 2016.
- Calbó, J., Pagès, D., and González, J.-A.: Empirical studies of cloud effects on UV radiation: A review, *Reviews of Geophysics*, 43, n/a–n/a,
30 <https://doi.org/10.1029/2004RG000155>, <http://dx.doi.org/10.1029/2004RG000155>, rG2002, 2005.
- Collins, W. J., Lamarque, J.-F., Schulz, M., Boucher, O., Eyring, V., Hegglin, M. I., Maycock, A., Myhre, G., Prather, M., Shindell, D., and Smith, S. J.: AerChemMIP: quantifying the effects of chemistry and aerosols in CMIP6, *Geoscientific Model Development*, 10, 585–607, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-585-2017>, <https://www.geosci-model-dev.net/10/585/2017/>, 2017.
- Correa, M. d. P., Godin-Beekmann, S., Haefelin, M., Bekki, S., Saiag, P., Badosa, J., Jegou, F., Pazmino, A., and Mahe, E.: Projected
35 changes in clear-sky erythema and vitamin D effective UV doses for Europe over the period 2006 to 2100, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 12, 1053–1064, <https://doi.org/10.1039/C3PP50024A>, 2013.

- De Mazière, M., Thompson, A. M., Kurylo, M. J., Wild, J. D., Bernhard, G., Blumenstock, T., Braathen, G. O., Hannigan, J. W., Lambert, J.-C., Leblanc, T., McGee, T. J., Nedoluha, G., Petropavlovskikh, I., Seckmeyer, G., Simon, P. C., Steinbrecht, W., and Strahan, S. E.: The Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC): history, status and perspectives, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 4935–4964, <https://doi.org/10.5194/acp-18-4935-2018>, <https://www.atmos-chem-phys.net/18/4935/2018/>, 2018.
- 5 Deushi, M. and Shibata, K.: Development of a Meteorological Research Institute chemistry-climate model version 2 for the study of tropospheric and stratospheric chemistry, *Papers in Meteorology and Geophysics*, 62, 1–46, 2011.
- Dhomse, S., Kinnison, D., Chipperfield, M. P., Cionni, I., Hegglin, M., Abraham, N. L., Akiyoshi, H., Archibald, A. T., Bednarz, E. M., Bekki, S., Braesicke, P., Butchart, N., Dameris, M., Deushi, M., Frith, S., Hardiman, S. C., Hassler, B., Horowitz, L. W., Hu, R.-M., Jöckel, P., Josse, B., Kirner, O., Kremser, S., Langematz, U., Lewis, J., Marchand, M., Lin, M., Mancini, E., Marécal, V., Michou, 10 M., Morgenstern, O., O'Connor, F. M., Oman, L., Pitari, G., Plummer, D. A., Pyle, J. A., Revell, L. E., Rozanov, E., Schofield, R., Stenke, A., Stone, K., Sudo, K., Tilmes, S., Visioni, D., Yamashita, Y., and Zeng, G.: Estimates of Ozone Return Dates from Chemistry-Climate Model Initiative Simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2018, 1–40, <https://doi.org/10.5194/acp-2018-87>, <https://www.atmos-chem-phys-discuss.net/acp-2018-87/>, 2018.
- Dobber, M., Voors, R., Dirksen, R., Kleipool, Q., and Levelt, P.: The high-resolution solar reference spectrum between 250 and 550 nm and 15 its application to measurements with the Ozone Monitoring Instrument, *Solar Physics*, 249, 281–291, 2008.
- Dobson, G.: Origin and distribution of the polyatomic molecules in the atmosphere, *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 236, 187–193, <https://doi.org/10.1098/rspa.1956.0127>, <http://rspa.royalsocietypublishing.org/content/236/1205/187>, 1956.
- Dufresne, J.-L., Foujols, M.-A., Denvil, S., Caubel, A., Marti, O., Aumont, O., Balkanski, Y., Bekki, S., Bellenger, H., Benshila, R., et al.: 20 Climate change projections using the IPSL-CM5 Earth System Model: from CMIP3 to CMIP5, *Climate Dynamics*, 40, 2123–2165, 2013.
- Erickson III, D. J., Sulzberger, B., Zepp, R. G., and Austin, A. T.: Effects of stratospheric ozone depletion, solar UV radiation, and climate change on biogeochemical cycling: interactions and feedbacks, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 14, 127–148, <https://doi.org/10.1039/C4PP90036G>, 2015.
- Eyring, V., Lamarque, J.-F., Hess, P., Arfeuille, F., Bowman, K., Chipperfield, M., Duncan, B., Fiore, A., Gettelman, A., Giorgetta, M., 25 Granier, C., Hegglin, M., Kinnison, D., Kunze, M., Langematz, U., Luo, B., Martin, R., Matthes, K., Newman, P., Peter, T., Peter, T., Robock, A., Ryerson, T., Saiz-Lopez, A., Salawitch, R., Schultz, M., Shepherd, T., Shindell, D., Staehelin, J., Tegtmeier, S., Thomason, L., Tilmes, S., Vernier, J.-P., Waugh, D., and Young, P.: Overview of IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) Community Simulations in Support of Upcoming Ozone and Climate Assessments, *eyring et al. (2013), Overview of IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) Community Simulations in Support of Upcoming Ozone and Climate Assessments*, SPARC Newsletter no. 40, 30 WMO-WRCP, Geneva, Switzerland, 48-66., 2013.
- Fleming, E. L., Jackman, C. H., Stolarski, R. S., and Douglass, A. R.: A model study of the impact of source gas changes on the stratosphere for 1850–2100, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 8515–8541, <https://doi.org/10.5194/acp-11-8515-2011>, <https://www.atmos-chem-phys.net/11/8515/2011/>, 2011.
- Frederick, J. E., Snell, H. E., and Haywood, E. K.: SOLAR ULTRAVIOLET RADIATION AT THE EARTH'S SURFACE, *Photochemistry and Photobiology*, 50, 443–450, <https://doi.org/10.1111/j.1751-1097.1989.tb05548.x>, <http://dx.doi.org/10.1111/j.1751-1097.1989.tb05548.x>, 1989.
- Garcia, R. R., Smith, A. K., Kinnison, D. E., Cámara, Á. d. l., and Murphy, D. J.: Modification of the gravity wave parameterization in the Whole Atmosphere Community Climate Model: Motivation and results, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 74, 275–291, 2017.

- Gorshchev, V., Serdyuchenko, A., Weber, M., Chehade, W., and Burrows, J. P.: High spectral resolution ozone absorption cross-sections ‐ Part 1: Measurements, data analysis and comparison with previous measurements around 293 K, *Atmospheric Measurement Techniques*, 7, 609–624, <https://doi.org/10.5194/amt-7-609-2014>, 2014.
- Gray, L. J., Beer, J., Geller, M., Haigh, J. D., Lockwood, M., Matthes, K., Cubasch, U., Fleitmann, D., Harrison, G., Hood, L., et al.: Solar influences on climate, *Reviews of Geophysics*, 48, 2010.
- Guth, J., Josse, B., Marécal, V., Joly, M., and Hamer, P.: First implementation of secondary inorganic aerosols in the MOCAGE version R2. 15.0 chemistry transport model, *Geoscientific Model Development*, 9, 137, 2016.
- Hader, D.-P., Kumar, H. D., Smith, R. C., and Worrest, R. C.: Effects of solar UV radiation on aquatic ecosystems and interactions with climate change, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 6, 267–285, <https://doi.org/10.1039/B700020K>, 2007.
- 10 Hardiman, S. C., Butchart, N., O’Connor, F. M., and Rumbold, S. T.: The Met Office HadGEM3-ES chemistry-climate model: evaluation of stratospheric dynamics and its impact on ozone, *Geoscientific Model Development*, 10, 1209, 2017.
- Hegglin, M. and Lamarque, J.: The IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative Phase-1 (CCMI-1) model data output, NCAS British Atmospheric Data Centre <http://catalogue.ceda.ac.uk/uuid/9cc6b94df0f4469d8066d69b5df879d5>, 2015.
- Hegglin, M. I. and Shepherd, T. G.: Large climate-induced changes in ultraviolet index and stratosphere-to-troposphere ozone flux, *Nature* 15 *Geoscience*, 2, 687–691, <https://doi.org/10.1038/ngeo604>, 2009.
- Holick, M. F., MacLaughlin, J., Clark, M., Holick, S., Potts, J., Anderson, R., Blank, I., Parrish, J., and Elias, P.: Photosynthesis of previtamin D3 in human skin and the physiologic consequences, *Science*, 210, 203–205, 1980.
- Holton, J. R., Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Douglass, A. R., Rood, R. B., and Pfister, L.: Stratosphere-troposphere exchange, *Reviews of Geophysics*, 33, 403–439, <https://doi.org/10.1029/95RG02097>, <http://dx.doi.org/10.1029/95RG02097>, 1995.
- 20 Hunke, E. C., Lipscomb, W. H., Turner, A. K., Jeffery, N., and Elliott, S.: CICE: the Los Alamos Sea Ice Model Documentation and Software User’s Manual Version 4.1 LA-CC-06-012, T-3 Fluid Dynamics Group, Los Alamos National Laboratory, 675, 2010.
- Imai, K., Manago, N., Mitsuda, C., Naito, Y., Nishimoto, E., Sakazaki, T., Fujiwara, M., Froidevaux, L., Clarmann, T., Stiller, G. P., et al.: Validation of ozone data from the Superconducting Submillimeter-Wave Limb-Emission Sounder (SMILES), *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118, 5750–5769, 2013.
- 25 IPCC: Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, <https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324>, www.climatechange2013.org, 2013.
- Jégou, F., Godin-Beekmann, S., Corrêa, M., Brogniez, C., Auriol, F., Peuch, V., Haeffelin, M., Pazmino, A., Saiag, P., Goutail, F., et al.: Validity of satellite measurements used for the monitoring of UV radiation risk on health, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 13 377–13 394, 2011.
- 30 Jöckel, P., Kerkweg, A., Pozzer, A., Sander, R., Tost, H., Riede, H., Baumgaertner, A., Gromov, S., and Kern, B.: Development cycle 2 of the modular earth submodel system (MESSy2), *Geoscientific Model Development*, 3, 717, 2010.
- Jöckel, P., Tost, H., Pozzer, A., Kunze, M., Kirner, O., Brenninkmeijer, C. A. M., Brinkop, S., Cai, D. S., Dyroff, C., Eckstein, J., Frank, F., Garny, H., Gottschaldt, K.-D., Graf, P., Grewe, V., Kerkweg, A., Kern, B., Matthes, S., Mertens, M., Meul, S., Neumaier, M., Nützel, M., Oberländer-Hayn, S., Ruhnke, R., Runde, T., Sander, R., Scharffe, D., and Zahn, A.: Earth System Chemistry integrated Modelling (ESCiMo) with the Modular Earth Submodel System (MESSy) version 2.51, *Geoscientific Model Development*, 9, 1153–1200, <https://doi.org/10.5194/gmd-9-1153-2016>, <https://www.geosci-model-dev.net/9/1153/2016/>, 2016.

- Jonsson, A., De Grandpre, J., Fomichev, V., McConnell, J., and Beagley, S.: Doubled CO₂-induced cooling in the middle atmosphere: Photochemical analysis of the ozone radiative feedback, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109, 2004.
- Josse, B., Simon, P., and Peuch, V.-H.: Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE, *Tellus B*, 56, 339–356, 2004.
- 5 Karimkhani, C., Boyers, L. N., Dellavalle, R. P., and Weinstock, M. A.: It's time for “keratinocyte carcinoma” to replace the term “non-melanoma skin cancer”, *Journal of the American Academy of Dermatology*, 72, 186–187, 2015.
- Kazadzis, S., Kouremeti, N., Bais, A., Kazantzidis, A., and Meleti, C.: Aerosol forcing efficiency in the UVA region from spectral solar irradiance measurements at an urban environment, *Annales Geophysicae*, 27, 2515–2522, <https://doi.org/10.5194/angeo-27-2515-2009>, <https://www.ann-geophys.net/27/2515/2009/>, 2009.
- 10 Kinne, S., O'Donnel, D., Stier, P., Kloster, S., Zhang, K., Schmidt, H., Rast, S., Giorgetta, M., Eck, T. F., and Stevens, B.: MAC-v1: A new global aerosol climatology for climate studies, *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 5, 704–740, <https://doi.org/10.1002/jame.20035>, <http://dx.doi.org/10.1002/jame.20035>, 2013.
- Kirner, O., Ruhnke, R., and Sinnhuber, B.-M.: Chemistry–Climate Interactions of Stratospheric and Mesospheric Ozone in EMAC Long-Term Simulations with Different Boundary Conditions for CO₂, CH₄, N₂O, and ODS, *Atmosphere-Ocean*, 53, 140–152, <https://doi.org/10.1080/07055900.2014.980718>, 2015.
- 15 Koepke, P., Bais, A., Balis, D., Buchwitz, M., Backer, H., Cabo, X., Eckert, P., Eriksen, P., Gillotay, D., Heikkilä, A., et al.: Comparison of models used for UV index calculations, *Photochemistry and Photobiology*, 67, 657–662, 1998.
- Kricker, A., Weber, M., Sitas, F., Banks, E., Rahman, B., Goumas, C., Kabir, A., Hodgkinson, V. S., van Kemenade, C. H., Waterboer, T., et al.: Early life UV and risk of basal and squamous cell carcinoma in New South Wales, Australia, *Photochemistry and photobiology*, 93, 1483–1491, 2017.
- 20 Krotkov, N. A., Herman, J., Bhartia, P. K., Seftor, C., Arola, A., Kaurola, J., Taalas, P., and Vasilkov, A.: OMI Surface UV Irradiance Algorithm, in *OMI Algorithm Theoretical Basis Document, Volume III: Clouds, Aerosols, and Surface UV Irradiance*, ATBD-OMI-03, 2002.
- Krzyścin, J. W. and Puchalski, S.: Aerosol impact on the surface UV radiation from the ground-based measurements taken at Belsk, Poland, 1980–1996, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103, 16 175–16 181, <https://doi.org/10.1029/98JD00899>, <http://dx.doi.org/10.1029/98JD00899>, 1998.
- 25 Lamy, K., Portafaix, T., Brogniez, C., Godin-Beekmann, S., Bencherif, H., Morel, B., Pazmino, A., Metzger, J. M., Auriol, F., Deroo, C., Duflot, V., Goloub, P., and Long, C. N.: Ultraviolet radiation modelling from ground-based and satellite measurements on Reunion Island, southern tropics, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 227–246, <https://doi.org/10.5194/acp-18-227-2018>, <https://www.atmos-chem-phys.net/18/227/2018/>, 2018.
- 30 Madec, G. et al.: NEMO ocean engine, 2015.
- Madronich, S.: Analytic Formula for the Clear sky UV Index, *Photochemistry and Photobiology*, 83, 1537–1538, <https://doi.org/10.1111/j.1751-1097.2007.00200.x>, 2007.
- Madronich, S., McKenzie, R. L., Björn, L. O., and Caldwell, M. M.: Changes in biologically active ultraviolet radiation reaching the Earth's surface, *Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology*, 46, 5 – 19, 1998.
- 35 Marchand, M., Keckhut, P., Lefebvre, S., Claud, C., Cugnet, D., Hauchecorne, A., Lefèvre, F., Lefebvre, M.-P., Jumelet, J., Lott, F., et al.: Dynamical amplification of the stratospheric solar response simulated with the Chemistry-Climate model LMDz-Reprobus, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 75, 147–160, 2012.

- Marsh, D. R., Mills, M. J., Kinnison, D. E., Lamarque, J.-F., Calvo, N., and Polvani, L. M.: Climate change from 1850 to 2005 simulated in CESM1 (WACCM), *Journal of climate*, 26, 7372–7391, 2013.
- Masui, T., Matsumoto, K., Hijioka, Y., Kinoshita, T., Nozawa, T., Ishiwatari, S., Kato, E., Shukla, P. R., Yamagata, Y., and Kainuma, M.: An emission pathway for stabilization at 6 Wm² radiative forcing, *Climatic Change*, 109, 59, <https://doi.org/10.1007/s10584-011-0150-5>, 2011.
- Matsumura, Y. and Ananthaswamy, H. N.: Toxic effects of ultraviolet radiation on the skin, *Toxicology and applied pharmacology*, 195, 298–308, 2004.
- Mayer, B., Kylling, A., Madronich, S., and Seckmeyer, G.: Enhanced absorption of UV radiation due to multiple scattering in clouds: Experimental evidence and theoretical explanation, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103, 31 241–31 254, <https://doi.org/10.1029/98JD02676>, <http://dx.doi.org/10.1029/98JD02676>, 1998.
- Mc Kinlay, A. F. and Diffey, B. L.: A reference action spectrum for ultraviolet induced erythema in human skin, *CIE J*, 6, 17–22, 1987.
- Meftah, M., Bolsée, D., Damé, L., Hauchecorne, A., Pereira, N., Irbah, A., Bekki, S., Cessateur, G., Foujols, T., and Thiéblemont, R.: Solar Irradiance from 165 to 400 nm in 2008 and UV Variations in Three Spectral Bands During Solar Cycle 24, *Solar Physics*, 291, 3527–3547, <https://doi.org/10.1007/s11207-016-0997-8>, <https://doi.org/10.1007/s11207-016-0997-8>, 2016.
- Meinshausen, M., Smith, S. J., Calvin, K., Daniel, J. S., Kainuma, M. L. T., Lamarque, J.-F., Matsumoto, K., Montzka, S. A., Raper, S. C. B., Riahi, K., Thomson, A., Velders, G. J. M., and van Vuuren, D. P.: The RCP greenhouse gas concentrations and their extensions from 1765 to 2300, *Climatic Change*, 109, 213, <https://doi.org/10.1007/s10584-011-0156-z>, 2011.
- Michou, M., Saint-Martin, D., Teyssedre, H., Alias, A., Karcher, F., Olivié, D., Voldoire, A., Josse, B., Peuch, V.-H., Clark, H., et al.: A new version of the CNRM Chemistry-Climate Model, CNRM-CCM: description and improvements from the CCMVal-2 simulations, *Geoscientific Model Development*, 4, 873–900, 2011.
- Molod, A., Takacs, L., Suarez, M., and Bacmeister, J.: Development of the GEOS-5 atmospheric general circulation model: Evolution from MERRA to MERRA2, *Geoscientific Model Development*, 8, 1339, 2015.
- Morgenstern, O., Braesicke, P., Hurwitz, M. M., O'Connor, F. M., Bushell, A. C., Johnson, C. E., and Pyle, J. A.: The World Avoided by the Montreal Protocol, *Geophysical Research Letters*, 35, n/a–n/a, <https://doi.org/10.1029/2008GL034590>, <http://dx.doi.org/10.1029/2008GL034590>, 116811, 2008.
- Morgenstern, O., Braesicke, P., O'Connor, F. M., Bushell, A. C., Johnson, C. E., Osprey, S. M., and Pyle, J. A.: Evaluation of the new UKCA climate-composition model – Part 1: The stratosphere, *Geoscientific Model Development*, 2, 43–57, <https://doi.org/10.5194/gmd-2-43-2009>, <https://www.geosci-model-dev.net/2/43/2009/>, 2009.
- Morgenstern, O., Hegglin, M. I., Rozanov, E., O'Connor, F. M., Abraham, N. L., Akiyoshi, H., Archibald, A. T., Bekki, S., Butchart, N., Chipperfield, M. P., Deushi, M., Dhomse, S. S., Garcia, R. R., Hardiman, S. C., Horowitz, L. W., Jöckel, P., Josse, B., Kinnison, D., Lin, M., Mancini, E., Manyin, M. E., Marchand, M., Marécal, V., Michou, M., Oman, L. D., Pitari, G., Plummer, D. A., Revell, L. E., Saint-Martin, D., Schofield, R., Stenke, A., Stone, K., Sudo, K., Tanaka, T. Y., Tilmes, S., Yamashita, Y., Yoshida, K., and Zeng, G.: Review of the global models used within phase 1 of the Chemistry–Climate Model Initiative (CCMI), *Geoscientific Model Development*, 10, 639–671, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-639-2017>, <https://www.geosci-model-dev.net/10/639/2017/>, 2017.
- Morgenstern, O., Stone, K. A., Schofield, R., Akiyoshi, H., Yamashita, Y., Kinnison, D. E., Garcia, R. R., Sudo, K., Plummer, D. A., Scinocca, J., Oman, L. D., Manyin, M. E., Zeng, G., Rozanov, E., Stenke, A., Revell, L. E., Pitari, G., Mancini, E., Di Genova, G., Visioni, D., Dhomse, S. S., and Chipperfield, M. P.: Ozone sensitivity to varying greenhouse gases and ozone-depleting

- substances in CCMI-1 simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 1091–1114, <https://doi.org/10.5194/acp-18-1091-2018>, <https://www.atmos-chem-phys.net/18/1091/2018/>, 2018.
- O'Connor, F., Johnson, C., Morgenstern, O., Abraham, N., Braesicke, P., Dalvi, M., Folberth, G., Sanderson, M., Telford, P., Voulgarakis, A., et al.: Evaluation of the new UKCA climate-composition model–Part 2: The Troposphere, *Geoscientific Model Development*, 7, 41–91, 5 2014.
- Oman, L., Ziemke, J., Douglass, A., Waugh, D., Lang, C., Rodriguez, J., and Nielsen, J.: The response of tropical tropospheric ozone to ENSO, *Geophysical Research Letters*, 38, 2011.
- Pitari, G., Aquila, V., Kravitz, B., Robock, A., Watanabe, S., Cionni, I., Luca, N. D., Genova, G. D., Mancini, E., and Tilmes, S.: Stratospheric ozone response to sulfate geoengineering: Results from the Geoengineering Model Intercomparison Project (GeoMIP), *Journal of* 10 *Geophysical Research: Atmospheres*, 119, 2629–2653, 2014.
- Poulain, V., Bekki, S., Marchand, M., Chipperfield, M., Khodri, M., Lefèvre, F., Dhomse, S., Bodeker, G., Toumi, R., Maziere, M. D., Pommereau, J.-P., Pazmino, A., Goutail, F., Plummer, D., Rozanov, E., Mancini, E., Akiyoshi, H., Lamarque, J.-F., and Austin, J.: Evaluation of the inter-annual variability of stratospheric chemical composition in chemistry-climate models using ground-based multi species time series, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 145, 61 – 84, <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jastp.2016.03.010>, 15 <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S136468261630092X>, 2016.
- Revell, L., Tummon, F., Stenke, A., Sukhodolov, T., Coulon, A., Rozanov, E., Garny, H., Grewe, V., and Peter, T.: Drivers of the tropospheric ozone budget throughout the 21st century under the medium-high climate scenario RCP 6.0, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 5887–5902, 2015.
- Revell, L. E., Bodeker, G. E., Huck, P. E., Williamson, B. E., and Rozanov, E.: The sensitivity of stratospheric ozone changes through 20 the 21st century to N₂O and CH₄, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 11 309–11 317, <https://doi.org/10.5194/acp-12-11309-2012>, <https://www.atmos-chem-phys.net/12/11309/2012/>, 2012.
- Rind, D., Suozzo, R., Balachandran, N. K., and Prather, M. J.: Climate Change and the Middle Atmosphere. Part I: The Doubled CO₂ Climate, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 47, 475–494, [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1990\)047<0475:CCATMA>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1990)047<0475:CCATMA>2.0.CO;2), 1990.
- 25 Rind, D., Lerner, J., Prather, M., and McLinden, C.: Stratospheric Circulation and Tracer/Ozone Changes in Response to Alternative Doubled CO₂ Climate Depictions, in: AGU Fall Meeting Abstracts, 2001.
- Scinocca, J., McFarlane, N., Lazare, M., Li, J., and Plummer, D.: The CCCma third generation AGCM and its extension into the middle atmosphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8, 7055–7074, 2008.
- Sekiya, T. and Sudo, K.: Role of meteorological variability in global tropospheric ozone during 1970–2008, *Journal of Geophysical Research:* 30 *Atmospheres*, 117, 2012.
- Serdyuchenko, A., Gorshelev, V., Weber, M., Chehade, W., and Burrows, J.: High spectral resolution ozone absorption cross-sections–Part 2: Temperature dependence., *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, 6, 2014.
- Shepherd, T. G.: Dynamics, stratospheric ozone, and climate change, *Atmosphere-Ocean*, 46, 117–138, <https://doi.org/10.3137/ao.460106>, 2008.
- 35 Smith, R. C. and Cullen, J. J.: Effects of UV radiation on phytoplankton, *Reviews of Geophysics*, 33, 1211–1223, <https://doi.org/10.1029/95RG00801>, <http://dx.doi.org/10.1029/95RG00801>, 1995.
- Solomon, S., Portmann, R., Sanders, R., Daniel, J., Madsen, W., Bartram, B., and Dutton, E.: On the role of nitrogen dioxide in the absorption of solar radiation, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104, 12 047–12 058, 1999.

- Solomon, S., Kinnison, D., Bandoro, J., and Garcia, R.: Simulation of polar ozone depletion: An update, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120, 7958–7974, 2015.
- Solomon, S., Ivy, D. J., Kinnison, D., Mills, M. J., Neely, R. R., and Schmidt, A.: Emergence of healing in the Antarctic ozone layer, *Science*, <https://doi.org/10.1126/science.aae0061>, 2016.
- 5 Stenke, A., Schraner, M., Rozanov, E., Egorova, T., Luo, B., and Peter, T.: The SOCOL version 3.0 chemistry–climate model: description, evaluation, and implications from an advanced transport algorithm, *Geoscientific Model Development*, 6, 1407–1427, 2013.
- Stone, K. A., Morgenstern, O., Karoly, D. J., Klekociuk, A. R., French, W. J., Abraham, N. L., and Schofield, R.: Evaluation of the ACCESS – chemistry–climate model for the Southern Hemisphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 2401–2415, <https://doi.org/10.5194/acp-16-2401-2016>, <https://www.atmos-chem-phys.net/16/2401/2016/>, 2016.
- 10 Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa, J.-i., and Akimoto, H.: CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 107, 2002.
- Szopa, S., Balkanski, Y., Schulz, M., Bekki, S., Cugnet, D., Fortems-Cheiney, A., Turquety, S., Cozic, A., Déandres, C., Hauglustaine, D., et al.: Aerosol and ozone changes as forcing for climate evolution between 1850 and 2100, *Climate dynamics*, 40, 2223–2250, 2013.
- Takemura, T.: Distributions and climate effects of atmospheric aerosols from the preindustrial era to 2100 along Representative Concentra-
15 tion Pathways (RCPs) simulated using the global aerosol model SPRINTARS, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 11 555–11 572, <https://doi.org/10.5194/acp-12-11555-2012>, <https://www.atmos-chem-phys.net/12/11555/2012/>, 2012.
- Tanskanen, A., Lindfors, A., Määttä, A., Krotkov, N., Herman, J., Kaurola, J., Koskela, T., Lakkala, K., Fioletov, V., Bernhard, G., and et al.: Validation of daily erythemal doses from Ozone Monitoring Instrument with ground-based UV measurement data, *Journal of Geophysical Research*, 112, <https://doi.org/10.1029/2007jd008830>, <http://dx.doi.org/10.1029/2007JD008830>, 2007.
- 20 Tian, W. and Chipperfield, M. P.: A new coupled chemistry–climate model for the stratosphere: The importance of coupling for future O3-climate predictions, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131, 281–303, 2005.
- Vaida, V., Kjaergaard, H. G., Hintze, P. E., and Donaldson, D. J.: Photolysis of Sulfuric Acid Vapor by Visible Solar Radiation, *Science*, 299, 1566–1568, <https://doi.org/10.1126/science.1079297>, <http://science.sciencemag.org/content/299/5612/1566>, 2003.
- van Vuuren, D. P., Edmonds, J., Kainuma, M., Riahi, K., Thomson, A., Hibbard, K., Hurtt, G. C., Kram, T., Krey, V., Lamarque, J.-F., Masui,
25 T., Meinshausen, M., Nakicenovic, N., Smith, S. J., and Rose, S. K.: The representative concentration pathways: an overview, *Climatic Change*, 109, 5, <https://doi.org/10.1007/s10584-011-0148-z>, <https://doi.org/10.1007/s10584-011-0148-z>, 2011.
- Voltaire, A., Sanchez-Gomez, E., y Méliá, D. S., Decharme, B., Cassou, C., Sénézi, S., Valcke, S., Beau, I., Alias, A., Chevallier, M., et al.: The CNRM-CM5. 1 global climate model: description and basic evaluation, *Climate Dynamics*, 40, 2091–2121, 2013.
- Walters, D., Williams, K., Boutle, I., Bushell, A., Edwards, J., Field, P., Lock, A., Morcrette, C., Stratton, R., Wilkinson, J., et al.: The Met
30 Office unified model global atmosphere 4.0 and JULES global land 4.0 configurations, *Geoscientific Model Development*, 7, 361–386, 2014.
- Watanabe, S., Hajima, T., Sudo, K., Nagashima, T., Takemura, T., Okajima, H., Nozawa, T., Kawase, H., Abe, M., Yokohata, T., et al.: MIROC-ESM 2010: Model description and basic results of CMIP5-20c3m experiments, *Geoscientific Model Development*, 4, 845, 2011.
- WMO, W. M. O.: Scientific assessment of ozone depletion: 2014, Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No. 55, 2011.
- 35 WMO, W. M. O.: Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014, in: *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014*, 55, p. 416, Geneva, Switzerland, 2014.

- Yukimoto, S., Adachi, Y., Hosaka, M., Sakami, T., Yoshimura, H., Hirabara, M., Tanaka, T. Y., Shindo, E., Tsujino, H., Deushi, M., et al.: A new global climate model of the Meteorological Research Institute: MRI-CGCM3—model description and basic performance—, *Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II*, 90, 23–64, 2012.
- Zepp, R. G., Erickson III, D. J., Paul, N. D., and Sulzberger, B.: Interactive effects of solar UV radiation and climate change on biogeochemical cycling, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 6, 286–300, <https://doi.org/10.1039/B700021A>, <http://dx.doi.org/10.1039/B700021A>, 2007.
- 5 Zerefos, C., Mantis, H., Bais, A., Ziomas, I., and Zoumakis, N.: Solar ultraviolet absorption by sulphur dioxide in Thessaloniki, Greece, *Atmosphere-Ocean*, 24, 292–300, 1986.

Conclusion générale et perspectives

Les principaux objectifs de ce travail étaient l'étude de la variabilité actuelle du rayonnement UV aux tropiques sud, la modélisation de cette variabilité et enfin l'examen de l'impact de différents scénarios climatiques sur le rayonnement UV au cours du 21ème siècle.

En premier lieu, un état de l'art des connaissances sur le domaine étudié a été réalisé (Chapitre 1). Au sein de cet état de l'art, il était tout d'abord nécessaire de définir le rayonnement UV, sa source et sa variabilité au sommet de l'atmosphère. Par la suite, le rayonnement UV et son interaction avec l'atmosphère ont été décrits dans le cadre théorique, instrumental et numérique. Le cadre théorique a permis d'exposer les processus physico-chimiques ayant lieu lors de la traversée de l'atmosphère par le rayonnement UV, notamment la diffusion et l'absorption. En considérant le problème de la propagation d'un flux énergétique à travers une surface et dans une certaine direction, nous avons précisé l'équation du transfert radiatif. Les méthodes de résolution de cette équation dans le cadre numérique ont ensuite été exposées. À travers le cadre instrumental, nous avons défini les instruments au sol ou en orbite, mesurant les multiples variables nécessaires à l'étude du rayonnement UV ; Notamment l'UV par mesure spectrale ou par bandes de longueurs d'ondes, les profils verticaux d'ozone, de température, la colonne totale d'ozone, les aérosols, la couverture nuageuse, etc ...

Afin de pouvoir utiliser les sorties de modèle climatique de chimie au cours du travail présenté dans le troisième chapitre, il était important au préalable de présenter la modélisation de la chimie de l'atmosphère. Nous avons défini les processus physiques et chimiques représentés dans les modèles et les méthodes de résolution numérique associées. De nombreux modèles climatiques existent, ils font entre eux l'objet d'exercices d'intercomparaison. Le travail présenté au cours du troisième chapitre de cette thèse a été effectué dans le cadre de l'exercice CCMI. Les exercices d'intercomparaisons et leur rôle au sein des groupes de prévision sur le climat ont été introduits au cours de l'état de l'art.

Pour conclure ce chapitre, nous avons rappelé le contexte climatique actuel. Une description succincte des mécanismes du système climatique a été réalisée, accompagné d'une présentation de l'évolution des variables liées au rayonnement UV (ozone, aérosols, ODS, GHG). L'objectif final de ce travail étant l'évolution future du rayonnement UV, nous avons défini les différents scénarios climatiques utilisés pour la projection du climat futur (Meinshausen et al., 2011).

En second lieu, une analyse de la variabilité du rayonnement UV à la Réunion de 2009 à 2016 a été réalisée. Pour cela deux méthodes de filtrage ciel-clair des mesures UV à la Réunion ont été posées. Une première méthode utilise les rapports d'observateurs horaires d'estimation de la couverture nuageuse, ces observations sont situées à une dizaine de kilomètres des mesures UV. Une seconde méthode s'appuie sur l'algorithme développé par Long and Ackerman (2000) appliqué à des mesures de flux global et diffus colocalisées avec les mesures UV, les mesures de flux ont une résolution temporelle d'une minute. Ces deux méthodes nous ont permis d'obtenir une estimation de la couverture nuageuse avec une résolution temporelle de l'ordre de l'heure ou de la minute. Ces deux estimations ont ensuite été respectivement sous ou sur-échantillonnées à la résolution des mesures UV (15 minutes). Les données UV ont été finalement filtrées en fonction de la présence de nuage. Un regard sur les deux UVI ciel-clair obtenus a montré que la seconde méthode de filtrage, à partir des mesures de flux, était plus robuste que la première. L'écart entre les deux méthodes peut être attribué à la colocalisation des mesures et à la différence de résolution temporelle. Grâce à ces méthodes, nous avons pu décrire la variabilité saisonnière et journalière de la couverture nuageuse sur le site du Moufia de l'île de la Réunion.

À partir de mesures au sol et satellitaires utilisées en entrée au modèle de transfert radiatif TUV (Madronich et al., 1998), nous avons modélisé le rayonnement UV à la Réunion. Pour une

configuration initiale du modèle TUV spécifiée pour la Réunion, plusieurs tests de sensibilité aux paramètres d'entrée du modèle TUV ont été réalisés.

Nous avons montré que l'influence de deux spectres solaires hors atmosphère distincts sur l'UVI est de l'ordre de ≈ 2 à 5%, cette différence relative est dépendante de l'angle solaire zénithal et de la distribution verticale de l'ozone. En ce qui concerne l'impact de deux sections efficaces d'ozone distinctes, la différence relative est plus faible; de l'ordre de 2.5 à 3 %. Cette différence est encore une fois dépendante de l'angle solaire zénithal. Dans les deux cas, plus l'angle solaire zénithal est élevé, plus la différence sur l'UVI sera faible. Pour un angle solaire zénithal élevé, le chemin traversé par le rayonnement UV dans l'atmosphère est plus long, des processus physiques comme la diffusion moléculaire domine alors la variabilité de l'UVI au sol.

Concernant la colonne totale d'ozone, les trois jeux de données utilisés (SAOZ, OMI et SBUV) diffèrent de moins de 1%. La différence relative moyenne sur l'UVI modélisé à partir de ces trois jeux de données est aussi inférieure à 1%.

La sensibilité à l'épaisseur optique d'aérosols (AOD) a aussi fait l'objet d'une analyse. La différence relative sur l'UVI entre l'utilisation d'une climatologie mensuelle et la moyenne journalière a été déterminée comme très faible ($\approx 0.4\%$). Toutefois, certains points ont révélé une différence relative de l'ordre de 30%, ces points correspondent aux périodes de feux de biomasse et donc à des pics d'AOD.

Afin de valider la modélisation de l'UVI, nous nous sommes servis de l'UVI en ciel-clair déterminé précédemment à l'aide du filtrage. Une première étape de comparaison a été faite à travers le RAF (Radiative Amplification Factor), ce facteur définit une relation entre l'UVI et la colonne totale d'ozone (TOZ). En raison des incertitudes sur les observations, nous n'avons pas pu ici montrer si la relation entre UVI et TOZ est une relation linéaire ou de puissance. La décroissance du RAF pour une augmentation de l'angle solaire zénithal est obtenue dans tous les cas; observations en ciel-clair, modélisation à partir des paramètres observés (aérosols) et enfin en modélisation idéale (i-RTUV dans l'article). Le RAF varie autour de 1.4 à la Réunion, pour les faibles angles zénithaux et une relation linéaire. La différence entre UVI idéal et UVI modélisé a permis de mettre en avant l'influence de la distribution verticale de l'ozone sur le RAF.

Par la suite, la modélisation de l'UVI a directement été comparée à l'UVI ciel-clair observé. La différence relative moyenne obtenue dans le meilleur des cas n'est que de $0.43 \pm 5.60\%$. Cette différence n'est pas significative, l'incertitude de mesure sur l'UVI est de 5% et l'incertitude de modélisation est de 5% pour un facteur d'élargissement de 2 déviation standard (Koepke et al., 1998). Le cycle diurne de la différence relative a aussi été analysé pour toute l'année, l'hiver et l'été austral. L'évolution saisonnière et diurne de la différence relative entre modèle et observation est influencée par l'évolution de la couverture nuageuse, cette dernière est plus importante lors de l'été austral et se développe au cours de la journée, le filtrage ciel-clair est donc plus délicat pour ces périodes. Nous avons obtenu des différences relatives et une dispersion plus importantes pour ces périodes.

Le cycle diurne en conditions ciel-clair et ciel nuageux a aussi permis de mettre en avant des cas de rayonnement UV amplifié. Les maxima d'UVI ont été observés lors de la présence de nuages, une nébulosité fractionnée peut amplifier le rayonnement UV au sol grâce à des rétrodiffusions multiples. Une analyse plus poussée de ce phénomène est à réaliser, le site du Moufia a vu l'installation récente de caméra All-Sky, cette dernière délivre une donnée plus précise de la couverture nuageuse et permettra de répondre aux questions liées à ce phénomène d'amplification par la nébulosité.

En dernier lieu nous avons examiné l'impact de différents scénarios climatiques sur les projections du rayonnement UV. Afin de répondre à cette question, nous avons utilisé les résultats de l'exercice d'intercomparaison de modèles CCMI. Ces résultats décrivent la composition chimique de l'atmosphère de 1960 à 2100 pour plusieurs scénarios climatiques (RCP 2.6/4.5/6.0/8.5) et pour des expériences de sensibilité où l'on fixe les niveaux d'ODS ou de GHG aux niveaux de 1960. Les sorties de ces simulations ont servi de paramètres d'entrée au modèle de transfert radiatif utilisé lors du premier chapitre (TUV). Les données CCMI en entrée au modèle de transfert radiatif a permis d'obtenir l'UVI à la surface de la Terre sur une grille de $2^\circ \times 2^\circ$ de 1960 à 2100, pour plusieurs scénarios climatiques, et scénarios sensibles.

La première étape de ce travail a été la validation de l'UVI mensuel climatologique au midi solaire obtenu grâce à l'utilisation des données de CCMI en entrée à TUV. Pour cela nous avons comparé l'UVI modélisé à l'UVI observé au sol pour six stations NDACC représentatives de six bandes latitudinales et à l'UVI global dérivé des mesures satellitaires de l'instrument OMI (UVI_{OMI}). Ces comparaisons ont été réalisées pour chaque modèle issu de CCMI et pour la médiane et la moyenne des modèles CCMI (UVI_{MEDIAN} et UVI_{MEAN}). La différence relative moyenne entre UVI_{MEDIAN} , UVI_{MEAN} et les observations au sol est entre -4% et 11%. La différence relative moyenne est inférieure à 5% pour toutes les stations sauf Palmer, cette différence n'est pas significative au regard de l'incertitude liée aux mesures (5%) et de l'incertitude de modélisation d'environ 5% pour un facteur d'élargissement de $k = 2$ (Koepke et al., 1998). Par rapport aux mesures satellitaires, l'UVI modélisé affiche une sous-estimation de l'ordre de 5 à 35%, néanmoins des travaux précédents ont montré que UVI_{OMI} surestimait constamment l'UVI au sol (Tanskanen et al. (2007), Brogniez et al. (2016)). L'UVI modélisé au cours de travail à partir de CCMI est donc représentatif des stations sol et cohérent avec les études précédentes. La sensibilité aux paramètres d'entrée a aussi été analysée, pour des raisons de coût de calcul, nous ne pouvions pas réaliser l'ensemble des simulations UVI pour tous les modèles ayant participé à CCMI. Il était donc important de connaître la différence entre les deux procédures suivantes :

1. Utiliser la médiane (resp. moyenne) des sorties de modèles CCMI en entrée à TUV afin d'obtenir UVI_{MEDIAN} (resp. UVI_{MEAN}).
2. Utiliser chaque sortie individuelle de modèle en entrée à TUV pour obtenir un UVI spécifique à chaque modèle et ensuite calculer la médiane ou moyenne de ces UVI.

Nous avons suivi ces deux méthodes pour le scénario refC2 (RCP6.0) sur 10 ans et calculé la différence relative entre les deux UVI obtenus. La différence relative sur l'UVI obtenu entre ces deux procédures varie entre -2 et 2 % sur le globe, la différence relative moyenne n'est que de $0.19 \pm 1.9 \%$. L'écart entre ces deux procédures étant assez faible, la suite du travail n'a été fait que pour la médiane des modèles CCMI en entrée à TUV.

La seconde étape a été la simulation et l'analyse de l'UVI mensuel au midi solaire sur le globe projeté jusqu'en 2100. Pour commencer, nous avons simulé l'UVI pour quatre scénarios climatiques (RCP 2.6/4.5/6.0/8.5, Meinshausen et al. (2011)), de 1960 à 2100.

L'analyse des résultats a montré l'évolution suivante de l'UVI pour six bandes latitudinales (Chapitre 3, Figure 4) :

- Hautes latitudes, hémisphère nord ($90^\circ \text{ N} - 60^\circ \text{ N}$) :
 Augmentation de TOZ de 2000 à 2100, l'évolution de l'UVI est anti-corrélée avec celle de TOZ, il diminue tout au long du 21ème siècle.
 Pour un scénario de forçage radiatif faible (RCP 2.6), une variation faible de TOZ et de l'UVI au cours de cette même période est observée ($\approx 2\%$).
 Pour un scénario de forçage radiatif élevé (RCP 8.5), TOZ augmente de $\approx 10\%$ et UVI

diminue de $\approx 10\%$ sur cette période.

En 1960 et 2100, l'UVI augmente de 5.7, 1.7, 0.5 % pour RCP 2.6, 4.5 et 6.0 respectivement.

Pour RCP 8.5, l'UVI diminue de 7.9%.

— Moyennes latitudes, hémisphère nord ($60^\circ \text{ N} - 30^\circ \text{ N}$) :

Pour cette région, les variations d'UVI ne sont pas anti-corrélées avec les variations de TOZ.

Pour un scénario de forçage radiatif faible (RCP 2.6), bien que TOZ évolue très peu (variations $< 1\%$), l'UVI augmente de 8% sur la période, cette augmentation est la conséquence d'une diminution de l'AOD ($\approx 80\%$) à ces latitudes prévue par les modèles CCMi (Chapitre 3, Figure 8).

Pour un scénario de changement plus important (RCP 8.5), TOZ augmente jusqu'à $\approx 8\%$ en 2100, l'UVI ne diminue que de 2% environ, la chute d'AOD compense l'augmentation de TOZ.

Entre 1960 et 2100, l'UVI augmente de 8.3, 5.2, 5.0 % pour RCP 2.6, 4.5 et 6.0 respectivement.

Pour RCP 8.5, l'UVI diminue de 1.4%.

— Basses latitudes, hémisphère nord ($30^\circ \text{ N} - 0^\circ \text{ N}$) :

Dans cette région, la variation d'UVI n'est pas entièrement déterminée par les variations de TOZ.

Pour tous les scénarios, les changements de TOZ sont inférieurs à 2%, l'UVI augmente de 2% pour RCP8.5 jusqu'à 4% pour RCP 2.6.

À ces latitudes, l'AOD prévu par les modèles CCMi diminue aussi fortement, une baisse de près de 16% est remarquée en 2100 par rapport aux niveaux de 2000-2010 (Chapitre 3, Fig 8).

Les variations d'UVI sont ici aussi dépendantes des variations de TOZ et d'AOD.

Entre 1960 et 2100, l'UVI augmente de 2.8, 2.7, 2.7, et 0.9% pour RCP 2.6, 4.5, 6.0, 8.5% respectivement.

— Basses latitudes, hémisphère sud ($0^\circ \text{ S} - 30^\circ \text{ S}$) :

Si l'on prend pour référence les années 2000-2010, les changements moyens de TOZ et d'UVI sur toute cette bande latitudinal sont confinés entre $\pm 1\%$ pour les quatre scénarios RCP. Entre 1960 et 2100, l'UVI augmente de 2.8, 2.7, 2.7, et 0.9% pour RCP 2.6, 4.5, 6.0, 8.5% respectivement.

— Moyennes latitudes, hémisphère sud ($30^\circ \text{ S} - 60^\circ \text{ S}$) :

À ces latitudes nous avons obtenu une situation similaire à celle des hautes latitudes sud. Lorsque TOZ augmente au cours de toute la période 2000-2100, l'UVI diminue.

Le changement le plus important est encore une fois observé pour le scénario de forçage radiatif le plus élevé (RCP 8.5) ; TOZ augmente de 9% environ tandis que l'UVI diminue de 11% environ sur cette période.

Entre 1960 et 2100, l'UVI augmente de 3.4, 2.6, 1.8 % pour RCP 2.6, 4.5 et 6.0 respectivement.

Pour RCP 8.5, l'UVI diminue de 2.3%.

— Hautes latitudes, hémisphère sud ($90^\circ \text{ S} - 60^\circ \text{ S}$) :

Aux hautes latitudes, la baisse de la concentration d'ODS dans l'atmosphère implique une forte remontée des niveaux d'ozone.

Plus l'émission de GHG sera élevée et plus l'augmentation de TOZ et la diminution de l'UVI seront rapides.

Les variations d'UVI sont ici fortement liées aux variations de TOZ, la plus forte baisse d'UVI est de $\approx 28\%$ jusqu'en 2100 pour une augmentation de $\approx 16\%$ de TOZ, pour RCP 8.5. Pour un scénario de forçage radiatif faible (RCP 2.6), TOZ augmente de $\approx 10\%$ et UVI diminue jusqu'à $\approx 16\%$ sur la période 2000-2100. Entre 1960 et 2100, l'UVI augmente de 6.7, 5.7, 3.9% pour RCP 2.6, 4.5, 6.0% respectivement.

L'UVI retourne aux niveaux de 2100 pour RCP 8.5.

Nous avons aussi comparé la variation saisonnière latitudinale de l'UVI et de TOZ, d'une part entre les niveaux de 2090-2100 et 2000-2010 (Chapitre 3, Figure 5) et d'autre part entre les niveaux de 2090-2100 et 1960-1970 (Chapitre 3, Figure 7). Pour les quatre scénarios RCP (Chapitre 3, Figure 5), on peut noter que la ligne des zéros séparant une baisse d'une augmentation d'UVI est centrée autour des tropiques, cette limite se déplace en fonction du forçage radiatif. Plus le forçage radiatif attendu est élevé et plus la ligne marquant l'augmentation d'UVI se rapproche de l'équateur, ce phénomène est plus marqué dans l'hémisphère nord. La comparaison de l'UVI en 2090-2100 aux niveaux de 2000-2010 montre une augmentation très importante de l'UVI aux tropiques, des maxima à plus de 8% sont observés dans l'hémisphère d'été. Cette augmentation est plus faible (environ 4%) lorsque l'on compare les niveaux de 2090-2100 à ceux de 1960-1970 (Chapitre 3, Figure 7), ce ne sont toutefois pas les mêmes expériences (EXP1 et EXP2).

L'impact des ODS, GHG et de l'AOD a aussi été étudié, nous pouvons dresser les conclusions suivantes :

- Pour une simulation avec GHG fixés à leurs niveaux de 1960, le rôle prédominant des ODS dans les variations de TOZ a été mis en avant, particulièrement aux pôles (Chapitre 3, Figure 6,e,f). En effet cette simulation est quasiment la même que la simulation standard (refC2) avec ODS et GHG variables, les ODS dominent donc la variabilité de TOZ et donc la variabilité de l'UVI aux hautes latitudes.
- Comme il a été montré dans des études précédentes (Dhomse et al., 2018), nous avons ici observé le fait que les GHG accélèrent la récupération de l'ozone. Cette accélération a un impact direct sur l'UVI, si TOZ augmente plus rapidement au cours du 21ème siècle, l'UVI diminue plus rapidement.
- Les aérosols se sont révélés une source importante de la variabilité de l'UVI à la fin du 21ème siècle dans les moyennes et basses latitudes de l'hémisphère nord. Les modèles CCMI prévoient une chute de l'AOD dans ces régions, cela se traduit alors par une augmentation de l'UVI. Dans ces régions la variabilité de l'UVI n'est donc pas principalement déterminée par la variabilité de l'ozone.

Dans la continuité de cette étude, de nombreuses perspectives sont possibles.

Les incertitudes les plus importantes dans les projections climatiques sont les aérosols et les nuages (Boucher et al., 2013), ces deux facteurs ont un impact important sur le rayonnement UV à la surface. De plus plusieurs approximations ont été réalisées afin de modéliser l'UVI (moyenne zonale des profils verticaux, médiane de l'ensemble des modèles CCMI), ces dernières rendent nos projections peu représentatives de la variabilité spatiale de l'UVI.

Le site instrumental du Moufia a été équipé récemment de caméra All-Sky et d'un radar nuage permettant de scanner verticalement la couverture nuageuse du site, ces instruments permettent une quantification et qualification plus précise de la couverture nuageuse. L'influence de la couverture nuageuse notamment dans les phénomènes d'amplification de l'UV peut désormais être étudiée. Une approche instrumentale et une approche numérique 3D de ce phénomène permettrait de mieux comprendre le rayonnement UV et son évolution lors de la présence de

nuage. Des projections climatiques du rayonnement UV pour tout type de couverture nuageuse serait alors envisageable.

Le prochain exercice d'intercomparaison de modèle AerChemMIP (Aerosol Chemistry Model Intercomparison Project, Collins et al. (2017b)) prévoit toujours l'évolution de la chimie mais porte aussi une attention particulière à l'évolution des aérosols. Nous avons montré ici que les variations futures du rayonnement UV ciel-clair ne sont pas toujours principalement déterminées par les variations d'ozone, les aérosols ont un rôle important à jouer. L'utilisation des sorties AerChemMIP comme entrée à un modèle de transfert radiatif permettrait de comprendre plus finement le rôle des aérosols sur le rayonnement UV futur.

Nous nous sommes centrés au cours de ce travail sur l'UVI comme indice intégré représentatif de la variabilité du rayonnement UV, néanmoins il existe de nombreux spectres d'actions représentant le rôle du rayonnement UV sur la biosphère, on peut citer la photosynthèse ou la croissance chez les plantes (Caldwell, 1971) et le phytoplankton (Cullen et al., 1992). Ces organismes jouent un rôle important dans la pompe biologique du CO_2 , une variation importante du rayonnement UV pourrait avoir un impact important sur ces mécanismes biophysiques et pourrait alors impacter la pompe biologique du CO_2 , une rétroaction s'opérerait alors sur le climat. Bien que ces interactions entre rayonnement, biosphère, cycle biogéochimique et climat soient connues, une quantification précise de leurs évolutions doit encore être réalisée si l'on souhaite préciser nos projections du système climatique.

Appendices

Appendice A : Acronymes

α	Coefficient Ångström
ACCMIP	Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project
ACP	Atmospheric Chemistry and Physics
AEROCOM	Aerosol Comparisons between Observations and Models
ALB	Albédo de surface
AOD	Aerosol Optical Depth, equivalent to AOT
AOGCM	Modèle de Climat Global Atmosphère Ocean (Atmosphere Ocean Global Climate Model)
AOT	Aerosol Optical Thickness
BDC	Circulation de Brewer-Dobson
CCMI	Chemistry-Climate Model Initiative
CCMVal	Chemistry-Climate Model Validation
CCM	Modèle de Chimie Climat (Chemistry Climate Model)
CFC	Composés chlorofluorocarbonés
CMIP	Coupled Model Intercomparison Project
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique
CTM	Modèle de Chimie Transport (Chemistry Transport Model)
ESD	Distance Terre-Soleil
ESM	Modèle du Système Terrestre (Earth System Model)
ETR	Équation du Transfert Radiatif
ETS	Spectre Extra-Terrestriel
GCM	Modèle de Climat Global (Global Climate Model)
GHG	Gaz à effet de serre (Greenhouse Gases)
IPCC	Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (Intergovernmental Panel on Climate Change)
IR	Infrarouge
LER	Réfectivité Lambertienne Équivalente
LWR	Émission de Grande Longueur d'Onde (Longwave Radiation)
MLS	Microwave Limb Sounder
NDACC	Network for Detection of Atmospheric Composition Change
O₃	Ozone

ODE Équation Differentielle Ordinaire
ODS Substances destructives d'ozone (Ozone Depleting Substances)
OMI Ozone Monitoring Instrument
OP Ozone Profil
RAF Radiative Amplification Factor
RD Différence Relative
RTUV Reunion-TUV
SAOZ Système d'Analyse par Observations Zénithales
SBUV Solar Backscatter Ultraviolet Radiometer
SD Déviation Standard
SHADOZ Southern Hemisphere ADditional OZonesondes
SPARC Stratospheric Processes And their Role in Climate
SSA Simble Albédo de Diffusion (Single Scattering Albedo)
SUR Surface Ultraviolet Radiation
SWR Émission de Petite Longueur d'Onde (Shortwave Radiation)
SZA Angle Solaire Zenithal
TNO₂ Colonne Totale de Dioxyde d'Azote
TOMS Total Ozone Mapping Spectrometer
TOZ Total Ozone Column
TP Temperature Profil
TSO₂ Colonne Totale de Dioxyde de Souffre
TUV Tropospheric Ultraviolet Model
UVI Ultraviolet Index
WCRP World Climate Research Programme
WMO World Meteorological Organisation
UV Ultraviolet

Remerciements

Je souhaite remercier tout les membres de ma famille pour m'avoir soutenu et guider au cours de ces longues années d'études. Je remercie mes camarades pour leur soutien, leur esprit critique, leur écoute et surtout leur joie de vivre. Merci aux collègues du laboratoire LACy pour leur soutien. Et finalement merci à la musique.

Bibliographie

- SPARC Report on Lifetimes of Stratospheric Ozone-Depleting Substances, Their Replacements, and Related Species, Tech. rep., SPARC, URL <http://www.sparc-climate.org/publications/sparc-reports/>, 2013.
- Anderson, D. E. and Meier, R. R. : Effects of anisotropic multiple scattering on solar radiation in the troposphere and stratosphere, *Appl. Opt.*, 18, 1955–1960, doi :10.1364/AO.18.001955, URL <http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-18-12-1955>, 1979.
- Andrews, D. G. and McIntyre, M. E. : Planetary Waves in Horizontal and Vertical Shear : The Generalized Eliassen-Palm Relation and the Mean Zonal Acceleration, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 33, 2031–2048, doi :10.1175/1520-0469(1976)033<2031:PWIHAV>2.0.CO;2, 1976.
- Austin, J. : On the explicit versus family solution of the fully diurnal photochemical equations of the stratosphere, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 96, 12 941–12 974, 1991a.
- Austin, J. : On the explicit versus family solution of the fully diurnal photochemical equations of the stratosphere, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 96, 12 941–12 974, doi : 10.1029/90JD02446, URL <http://dx.doi.org/10.1029/90JD02446>, 1991b.
- Bais, A. F., Zerefos, C. S., Meleti, C., Ziomas, I. C., and Tourpali, K. : Spectral measurements of solar UVB radiation and its relations to total ozone, SO₂, and clouds, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 98, 5199–5204, doi :10.1029/92JD02904, URL <http://dx.doi.org/10.1029/92JD02904>, 1993.
- Bais, A. F., Tourpali, K., Kazantzidis, A., Akiyoshi, H., Bekki, S., Braesicke, P., Chipperfield, M. P., Dameris, M., Eyring, V., Garny, H., et al. : Projections of UV radiation changes in the 21st century : Impact of ozone recovery and cloud effects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 7533 – 7545, 2011.
- Bais, A. F., McKenzie, R. L., Bernhard, G., Aucamp, P. J., Ilyas, M., Madronich, S., and Tourpali, K. : Ozone depletion and climate change : Impacts on UV radiation., *Photochem. Photobiol. Sci.*, 14, 19 – 52, doi :10.1039/c4pp90032d, URL <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/25380284>, 2015a.
- Bais, A. F., McKenzie, R. L., Bernhard, G., Aucamp, P. J., Ilyas, M., Madronich, S., and Tourpali, K. : Ozone depletion and climate change : impacts on UV radiation, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 14, 19–52, doi :10.1039/C4PP90032D, URL <http://dx.doi.org/10.1039/C4PP90032D>, 2015b.
- Bass, A. M. and Paur, R. J. : The ultraviolet cross-sections of ozone. I. The measurements. II - Results and temperature dependence, in : *Atmospheric ozone ; Proceedings of the Quadrennial*, edited by Zerefos, C. S. and Ghazi, A., pp. 606–616, 1985.

- Bellouin, N., Rae, J., Jones, A., Johnson, C., Haywood, J., and Boucher, O. : Aerosol forcing in the Climate Model Intercomparison Project (CMIP5) simulations by HadGEM2-ES and the role of ammonium nitrate, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116, n/a–n/a, doi : 10.1029/2011JD016074, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2011JD016074>, d20206, 2011.
- Bhartia, P. K. : OMI Algorithm Theoretical Basis Document. Volume II, OMI Ozone Products, NASA-OMI, Washington, DC, ATBD-OMI-02, version, 2, 2002.
- Boucher, O., Randall, D., Artaxo, P., Bretherton, C., Feingold, G., Forster, P., Kerminen, V.-M., Kondo, Y., Liao, H., Lohmann, U., Rasch, P., Satheesh, S., Sherwood, S., Stevens, B., and Zhang, X. : Clouds and Aerosols, climate change 2013 : the physical science basis. contribution of working group i to the fifth assessment report of the intergovernmental panel on climate change, section 7, p. 571–658, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, doi :10.1017/CBO9781107415324.016, URL www.climatechange2013.org, 2013.
- Brasseur, G. P. and Solomon, S. : *Aeronomy of the middle atmosphere : chemistry and physics of the stratosphere and mesosphere*, vol. 32, Springer Science & Business Media, 2006.
- Brewer, A. W. : Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 75, 351–363, doi :10.1002/qj.49707532603, URL <http://dx.doi.org/10.1002/qj.49707532603>, 1949.
- Brognez, C., Auriol, F., Deroo, C., Arola, A., Kujanpää, J., Sauvage, B., Kalakoski, N., Pitkänen, M. R. A., Catalfamo, M., Metzger, J.-M., and et al. : Validation of satellite-based noon-time UVI with NDACC ground-based instruments : influence of topography, environment and satellite overpass time, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 15 049–15 074, doi : 10.5194/acp-16-15049-2016, URL <http://dx.doi.org/10.5194/acp-16-15049-2016>, 2016.
- Butchart, N. : The Brewer-Dobson circulation, *Reviews of Geophysics*, 52, 157–184, doi :10.1002/2013rg000448, 2014.
- Butler, A. H., Daniel, J. S., Portmann, R. W., Ravishankara, A. R., Young, P. J., Fahey, D. W., and Rosenlof, K. H. : Diverse policy implications for future ozone and surface UV in a changing climate, *Environmental Research Letters*, 11, 064017, URL <http://stacks.iop.org/1748-9326/11/i=6/a=064017>, 2016.
- Caldwell, M. M. : Solar UV irradiation and the growth and development of higher plants, *Photophysiology*, 6, 131–177, 1971.
- Carslaw, K. S., Boucher, O., Spracklen, D. V., Mann, G. W., Rae, J. G. L., Woodward, S., and Kulmala, M. : A review of natural aerosol interactions and feedbacks within the Earth system, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 1701–1737, doi :10.5194/acp-10-1701-2010, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/10/1701/2010/>, 2010.
- Cede, A., Blumthaler, M., Luccini, E., Piacentini, R. D., and Nuñez, L. : Effects of clouds on erythema and total irradiance as derived from data of the Argentine Network, *Geophysical Research Letters*, 29, 76–1–76–4, doi :10.1029/2002gl015708, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2002GL015708>, 2002.
- Chance, K. : OMI algorithm theoretical basis document, volume IV : OMI trace gas algorithms, Accessed on, 12, 2009, 2002.

- Chance, K. and Kurucz, R. : An improved high-resolution solar reference spectrum for earth's atmosphere measurements in the ultraviolet, visible, and near infrared, *Journal of quantitative spectroscopy and radiative transfer*, 111, 1289–1295, 2010.
- Chandrasekhar, S. : Radiative transfer, 1960.
- Chiou, E. W., Bhartia, P. K., McPeters, R. D., Loyola, D. G., Coldewey-Egbers, M., Fioletov, V. E., Van Roozendaal, M., Spurr, R., Lerot, C., and Frith, S. M. : Comparison of profile total ozone from SBUV (v8.6) with GOME-type and ground-based total ozone for a 16-year period (1996 to 2011), *Atmospheric Measurement Techniques*, 7, 1681–1692, doi :10.5194/amt-7-1681-2014, URL <https://www.atmos-meas-tech.net/7/1681/2014/>, 2014.
- Chipperfield, M. P. : Multiannual simulations with a three-dimensional chemical transport model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104, 1781–1805, doi :10.1029/98JD02597, URL <http://dx.doi.org/10.1029/98JD02597>, 1999a.
- Chipperfield, M. P. : Multiannual simulations with a three-dimensional chemical transport model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104, 1781–1805, doi :10.1029/98JD02597, URL <http://dx.doi.org/10.1029/98JD02597>, 1999b.
- Collins, W. J., Lamarque, J.-F., Schulz, M., Boucher, O., Eyring, V., Hegglin, M. I., Maycock, A., Myhre, G., Prather, M., Shindell, D., and Smith, S. J. : AerChemMIP : quantifying the effects of chemistry and aerosols in CMIP6, *Geoscientific Model Development*, 10, 585–607, doi :10.5194/gmd-10-585-2017, URL <https://www.geosci-model-dev.net/10/585/2017/>, 2017a.
- Collins, W. J., Lamarque, J.-F., Schulz, M., Boucher, O., Eyring, V., Hegglin, M. I., Maycock, A., Myhre, G., Prather, M., Shindell, D., and Smith, S. J. : AerChemMIP : quantifying the effects of chemistry and aerosols in CMIP6, *Geoscientific Model Development*, 10, 585–607, doi :10.5194/gmd-10-585-2017, URL <https://www.geosci-model-dev.net/10/585/2017/>, 2017b.
- Cooper, P. : The absorption of radiation in solar stills, *Solar energy*, 12, 333–346, 1969.
- Corrêa, M. D. P., Godin-Beekmann, S., Haefelin, M., Bekki, S., Saiag, P., Badosa, J., Jégou, F., Pazmiño, A., and Mahé, E. : Projected changes in clear-sky erythema and vitamin D effective UV doses for Europe over the period 2006 to 2100., *Photochem. Photobiol. Sci.*, 12, 1053 – 1064, doi :10.1039/c3pp50024a, URL <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/23549360>, 2013.
- Covey, C., AchutaRao, K. M., Cubasch, U., Jones, P., Lambert, S. J., Mann, M. E., Phillips, T. J., and Taylor, K. E. : An overview of results from the Coupled Model Intercomparison Project, *Global and Planetary Change*, 37, 103–133, 2003.
- Covington, A. E. : Solar radio emission at 10.7 cm, 1947–1968, *Journal of the Royal Astronomical Society of Canada*, 63, 125, 1969.
- Crutzen, P. J. : Ozone production rates in an oxygen-hydrogen-nitrogen oxide atmosphere, *Journal of Geophysical Research*, 76, 7311–7327, 1971.
- Cullen, J. J., Neale, P. J., and Lesser, M. P. : Biological weighting function for the inhibition of phytoplankton photosynthesis by ultraviolet radiation, *SCIENCE-NEW YORK THEN WASHINGTON-*, pp. 646–646, 1992.
- Dahlback, A. and Stamnes, K. : A new spherical model for computing the radiation field available for photolysis and heating at twilight, *Planetary and Space Science*, 39, 671–683, 1991.

- Delmas, R., Mégie, G., and Peuch, V.-H. : Physique et chimie de l'atmosphère, Belin, 2005.
- Dhomse, S., Kinnison, D., Chipperfield, M. P., Cionni, I., Hegglin, M., Abraham, N. L., Akiyoshi, H., Archibald, A. T., Bednarz, E. M., Bekki, S., Braesicke, P., Butchart, N., Dameris, M., Deushi, M., Frith, S., Hardiman, S. C., Hassler, B., Horowitz, L. W., Hu, R.-M., Jöckel, P., Josse, B., Kirner, O., Kremser, S., Langematz, U., Lewis, J., Marchand, M., Lin, M., Mancini, E., Marécal, V., Michou, M., Morgenstern, O., O'Connor, F. M., Oman, L., Pitari, G., Plummer, D. A., Pyle, J. A., Revell, L. E., Rozanov, E., Schofield, R., Stenke, A., Stone, K., Sudo, K., Tilmes, S., Visionsi, D., Yamashita, Y., and Zeng, G. : Estimates of Ozone Return Dates from Chemistry-Climate Model Initiative Simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2018, 1–40, doi :10.5194/acp-2018-87, URL <https://www.atmos-chem-phys-discuss.net/acp-2018-87/>, 2018.
- Dickerson, R. R., Kondragunta, S., Stenchikov, G., Civerolo, K. L., Doddridge, B. G., and Holben, B. N. : The Impact of Aerosols on Solar Ultraviolet Radiation and Photochemical Smog, *Science*, 278, 827–830, doi :10.1126/science.278.5339.827, 1997.
- Dobber, M., Voors, R., Dirksen, R., Kleipool, Q., and Levelt, P. : The high-resolution solar reference spectrum between 250 and 550 nm and its application to measurements with the Ozone Monitoring Instrument, *Solar Physics*, 249, 281–291, 2008.
- Dobson, G. : Origin and distribution of the polyatomic molecules in the atmosphere, *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 236, 187–193, doi :10.1098/rspa.1956.0127, URL <http://rspa.royalsocietypublishing.org/content/236/1205/187>, 1956.
- Dobson, G. M. and Harrison, D. : Measurements of the amount of ozone in the earth's atmosphere and its relation to other geophysical conditions, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 110, 660–693, 1926.
- Douglass, A. R., Jackman, C. H., and Stolarski, R. S. : Comparison of model results transporting the odd nitrogen family with results transporting separate odd nitrogen species, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 94, 9862–9872, 1989.
- Dunkerton, T. : On the Mean Meridional Mass Motions of the Stratosphere and Mesosphere, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 35, 2325–2333, doi :10.1175/1520-0469(1978)035<2325:OTMMMM>2.0.CO;2, 1978.
- Durrant, D. R. : Numerical methods for fluid dynamics : With applications to geophysics, vol. 32, Springer Science & Business Media, 2010.
- Emde, C., Buras-Schnell, R., Kylling, A., Mayer, B., Gasteiger, J., Hamann, U., Kylling, J., Richter, B., Pause, C., Dowling, T., and Bugliaro, L. : The libRadtran software package for radiative transfer calculations (version 2.0.1), *Geoscientific Model Development*, 9, 1647–1672, doi :10.5194/gmd-9-1647-2016, URL <https://www.geosci-model-dev.net/9/1647/2016/>, 2016.
- Engel, A., Strunk, M., Müller, M., Haase, H.-P., Poss, C., Levin, I., and Schmidt, U. : Temporal development of total chlorine in the high-latitude stratosphere based on reference distributions of mean age derived from CO₂ and SF₆, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107, 2002.
- Eyring, V., Chipperfield, M. P., Giorgetta, M. A., Kinnison, D. E., Manzini, E., Matthes, K., Newman, P. A., Pawson, S., Shepherd, T. G., and Waugh, D. W. : Overview of the new CCMVal reference and sensitivity simulations in support of upcoming ozone and climate assessments and the planned SPARC CCMVal report, *SPARC Newsl*, 30, 20–26, 2008.

- Eyring, V., Cionni, I., Bodeker, G. E., Charlton-Perez, A. J., Kinnison, D. E., Scinocca, J. F., Waugh, D. W., Akiyoshi, H., Bekki, S., Chipperfield, M. P., Dameris, M., Dhomse, S., Frith, S. M., Garny, H., Gettelman, A., Kubin, A., Langematz, U., Mancini, E., Marchand, M., Nakamura, T., Oman, L. D., Pawson, S., Pitari, G., Plummer, D. A., Rozanov, E., Shepherd, T. G., Shibata, K., Tian, W., Braesicke, P., Hardiman, S. C., Lamarque, J. F., Morgenstern, O., Pyle, J. A., Smale, D., and Yamashita, Y. : Multi-model assessment of stratospheric ozone return dates and ozone recovery in CCMVal-2 models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 9451–9472, doi :10.5194/acp-10-9451-2010, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/10/9451/2010/>, 2010.
- Eyring, V., Lamarque, J.-F., Hess, P., Arfeuille, F., Bowman, K., Chipperfield, M. P., Duncan, B., Fiore, A., Gettelman, A., Giorgetta, M. A., et al. : Overview of IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) community simulations in support of upcoming ozone and climate assessments, *SPARC newsletter*, 40, 48–66, 2013.
- Farman, J. C., Gardiner, B. G., and Shanklin, J. D. : Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction, *Nature*, 315, 207, 1985.
- Finlayson-Pitts, B. J. and Pitts, J. N. : Tropospheric air pollution : ozone, airborne toxics, polycyclic aromatic hydrocarbons, and particles, *Science*, 276, 1045–1051, 1997.
- Fleming, E. L., Jackman, C. H., Stolarski, R. S., and Douglass, A. R. : A model study of the impact of source gas changes on the stratosphere for 1850–2100, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 8515–8541, doi :10.5194/acp-11-8515-2011, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/11/8515/2011/>, 2011.
- Foley, J. A., DeFries, R., Asner, G. P., Barford, C., Bonan, G., Carpenter, S. R., Chapin, F. S., Coe, M. T., Daily, G. C., Gibbs, H. K., Helkowski, J. H., Holloway, T., Howard, E. A., Kucharik, C. J., Monfreda, C., Patz, J. A., Prentice, I. C., Ramankutty, N., and Snyder, P. K. : Global Consequences of Land Use, *Science*, 309, 570–574, doi :10.1126/science.1111772, URL <http://science.sciencemag.org/content/309/5734/570>, 2005.
- Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D. W., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D. C., Myhre, G., et al. : Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. Chapter 2, in : *Climate Change 2007. The Physical Science Basis*, 2007.
- Forster, P., Thompson, D., Baldwin, M., et al. : Stratospheric changes and climate, Chapter 4 in *Scientific assessment of ozone depletion : 2010*, Global Ozone Research and Monitoring Project–Report no. 52, World Meteorological Organization, Geneva, 2011.
- Frederick, J. E., Snell, H. E., and Haywood, E. K. : SOLAR ULTRAVIOLET RADIATION AT THE EARTH'S SURFACE, *Photochemistry and Photobiology*, 50, 443–450, doi :10.1111/j.1751-1097.1989.tb05548.x, URL <http://dx.doi.org/10.1111/j.1751-1097.1989.tb05548.x>, 1989.
- Friis-Christensen, E. : SOLAR VARIABILITY AND CLIMATE – A Summary, *Space Science Reviews*, 94, 411–421, doi :10.1023/A:1026776902940, URL <https://doi.org/10.1023/A:1026776902940>, 2000.
- Friis-Christensen, E. and Lassen, K. : Length of the Solar Cycle : An Indicator of Solar Activity Closely Associated with Climate, 254, 698–700, doi :10.1126/science.254.5032.698, 1991.
- Froidevaux, L., Jiang, Y. B., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Browell, E. V., Hair, J. W., Avery, M. A., McGee, T. J., and et al. : Validation of Aura Microwave Limb Sounder stratospheric ozone measurements, *Journal of Geophysical Research*, 113, doi : 10.1029/2007jd008771, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2007JD008771>, 2008.

- Garcia, R. R. and Randel, W. J. : Acceleration of the Brewer–Dobson Circulation due to Increases in Greenhouse Gases, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 65, 2731–2739, doi : 10.1175/2008JAS2712.1, 2008.
- Gear, C. W. : Numerical Initial Value Problems in Ordinary Differential Equations, Prentice Hall PTR, Upper Saddle River, NJ, USA, 1971.
- Goody, R. M. and Yung, Y. L. : Atmospheric radiation : theoretical basis, Oxford university press, 1995.
- Gorshelev, V., Serdyuchenko, A., Weber, M., Chehade, W., and Burrows, J. P. : High spectral resolution ozone absorption cross-sections – Part 1 : Measurements, data analysis and comparison with previous measurements around 293 K, *Atmospheric Measurement Techniques*, 7, 609–624, doi :10.5194/amt-7-609-2014, URL <http://www.atmos-meas-tech.net/7/609/2014/>, 2014.
- Gray, L. J., Beer, J., Geller, M., Haigh, J. D., Lockwood, M., Matthes, K., Cubasch, U., Fleitmann, D., Harrison, G., Hood, L., et al. : Solar influences on climate, *Reviews of Geophysics*, 48, 2010.
- Griggs, D. J. and Noguer, M. : Climate change 2001 : the scientific basis. Contribution of working group I to the third assessment report of the intergovernmental panel on climate change, *Weather*, 57, 267–269, 2002.
- Haberreiter, M., Schöll, M., Dudok de Wit, T., Kretzschmar, M., Misios, S., Tourpali, K., and Schmutz, W. : A new observational solar irradiance composite, *Journal of Geophysical Research : Space Physics*, 122, 5910–5930, doi :10.1002/2016JA023492, URL <http://dx.doi.org/10.1002/2016JA023492>, 2016JA023492, 2017.
- Hader, D.-P., Kumar, H. D., Smith, R. C., and Worrest, R. C. : Effects of solar UV radiation on aquatic ecosystems and interactions with climate change, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 6, 267–285, doi :10.1039/B700020K, URL <http://dx.doi.org/10.1039/B700020K>, 2007.
- Hardiman, S. C., Butchart, N., and Calvo, N. : The morphology of the Brewer–Dobson circulation and its response to climate change in CMIP5 simulations, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 140, 1958–1965, doi :10.1002/qj.2258, URL <http://dx.doi.org/10.1002/qj.2258>, 2014.
- Haynes, P. H. and McIntyre, M. E. : On the Evolution of Vorticity and Potential Vorticity in the Presence of Diabatic Heating and Frictional or Other Forces, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 44, 828–841, doi :10.1175/1520-0469(1987)044<0828:OTEOVA>2.0.CO;2, 1987.
- Hegglin, M. I. and Shepherd, T. G. : Large climate-induced changes in ultraviolet index and stratosphere-to-troposphere ozone flux, *Nature Geoscience*, 2, 687–691, doi :10.1038/ngeo604, URL <http://dx.doi.org/10.1038/ngeo604>, 2009.
- Helama, S., Fauria, M. M., Mielikäinen, K., Timonen, M., and Eronen, M. : Sub-Milankovitch solar forcing of past climates : mid and late Holocene perspectives, *Geological Society of America Bulletin*, 122, 1981–1988, 2010.
- Herman, J. R. and Celarier, E. A. : Earth surface reflectivity climatology at 340–380 nm from TOMS data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102, 28 003–28 011, doi :10.1029/97JD02074, URL <http://dx.doi.org/10.1029/97JD02074>, 1997.

- Hess, M., Koepke, P., and Schult, I. : Optical Properties of Aerosols and Clouds : The Software Package OPAC, Bulletin of the American Meteorological Society, 79, 831–844, doi :10.1175/1520-0477(1998)079<0831:OPOAAC>2.0.CO;2, 1998.
- Holick, M. F., MacLaughlin, J., Clark, M., Holick, S., Potts, J., Anderson, R., Blank, I., Parrish, J., and Elias, P. : Photosynthesis of previtamin D3 in human skin and the physiologic consequences, Science, 210, 203–205, 1980.
- Holloway Jr, J. L. and Manabe, S. : Simulation of climate by a global general circulation model : I. Hydrologic cycle and heat balance, Monthly Weather Review, 99, 335–370, 1971.
- Holton, J. : An introduction to dynamic meteorology (International geophysics series, San Diego, New York), 1992.
- Houghton, J. T. : Climate change 1995 : The science of climate change : contribution of working group I to the second assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, vol. 2, Cambridge University Press, 1996.
- Houghton, R. A. : Revised estimates of the annual net flux of carbon to the atmosphere from changes in land use and land management 1850–2000, Tellus B, 55, 378–390, doi :10.1034/j.1600-0889.2003.01450.x, URL <http://dx.doi.org/10.1034/j.1600-0889.2003.01450.x>, 2003.
- IPCC : Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, doi : 10.1017/CBO9781107415324, URL www.climatechange2013.org, 2013.
- Jacobson, M. : Developing, Coupling, and Applying a Gas, Aerosol, Transport, and Radiation Model to Study Urban and Regional Air Pollution., 1994.
- Jacobson, M. Z. : Fundamentals of atmospheric modeling, Cambridge university press, 2005.
- Jakob, C. : Accelerating Progress in Global Atmospheric Model Development through Improved Parameterizations : Challenges, Opportunities, and Strategies, Bulletin of the American Meteorological Society, 91, 869–875, doi :10.1175/2009BAMS2898.1, 2010.
- Jégou, F., Godin-Beekmann, S., Corrêa, M., Brogniez, C., Auriol, F., Peuch, V., Haeffelin, M., Pazmino, A., Saiag, P., Goutail, F., et al. : Validity of satellite measurements used for the monitoring of UV radiation risk on health, Atmospheric Chemistry and Physics, 11, 13 377–13 394, 2011.
- Jerrett, M., Burnett, R. T., Pope, C. A. I., Ito, K., Thurston, G., Krewski, D., Shi, Y., Calle, E., and Thun, M. : Long-Term Ozone Exposure and Mortality, New England Journal of Medicine, 360, 1085–1095, doi :10.1056/NEJMoa0803894, 2009.
- Joseph, J. H., Wiscombe, W. J., and Weinman, J. A. : The Delta-Eddington Approximation for Radiative Flux Transfer, Journal of the Atmospheric Sciences, 33, 2452–2459, doi :10.1175/1520-0469(1976)033<2452:TDEAFR>2.0.CO;2, 1976.
- Kakani, V., Reddy, K., Zhao, D., and Sailaja, K. : Field crop responses to ultraviolet-B radiation : a review, Agricultural and Forest Meteorology, 120, 191 – 218, doi :<https://doi.org/10.1016/j.agrformet.2003.08.015>, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168192303001801>, uV Radiation and its impacts on Agriculture and Forests, 2003.

- Kinne, S., O'Donnel, D., Stier, P., Kloster, S., Zhang, K., Schmidt, H., Rast, S., Giorgetta, M., Eck, T. F., and Stevens, B. : MAC-v1 : A new global aerosol climatology for climate studies, *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 5, 704–740, doi :10.1002/jame.20035, URL <http://dx.doi.org/10.1002/jame.20035>, 2013.
- Koelemeijer, R. B. A., de Haan, J. F., and Stammes, P. : A database of spectral surface reflectivity in the range 335–772 nm derived from 5.5 years of GOME observations, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108, n/a–n/a, doi :10.1029/2002JD002429, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2002JD002429>, 4070, 2003.
- Koepke, P., Bais, A., Balis, D., Buchwitz, M., Backer, H., Cabo, X., Eckert, P., Eriksen, P., Gillotay, D., Heikkilä, A., et al. : Comparison of models used for UV index calculations, *Photochemistry and Photobiology*, 67, 657–662, 1998.
- Kopp, G. and Lean, J. L. : A new, lower value of total solar irradiance : Evidence and climate significance, *Geophysical Research Letters*, 38, 2011.
- Kremser, S., Thomason, L. W., Hobe, M., Hermann, M., Deshler, T., Timmreck, C., Toohey, M., Stenke, A., Schwarz, J. P., Weigel, R., et al. : Stratospheric aerosol—Observations, processes, and impact on climate, *Reviews of Geophysics*, 54, 278–335, 2016.
- Krotkov, N. A., Bhartia, P. K., Herman, J. R., Fioletov, V., and Kerr, J. : Satellite estimation of spectral surface UV irradiance in the presence of tropospheric aerosols : 1. Cloud-free case, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103, 8779–8793, doi :10.1029/98JD00233, URL <http://dx.doi.org/10.1029/98JD00233>, 1998.
- Krotkov, N. A., Herman, J., Bhartia, P. K., Seftor, C., Arola, A., Kaurola, J., Taalas, P., and Vasilkov, A. : OMI Surface UV Irradiance Algorithm, in *OMI Algorithm Theoretical Basis Document, Volume III : Clouds, Aerosols, and Surface UV Irradiance*, ATBD-OMI-03, 2002.
- Krzyścin, J. W. and Puchalski, S. : Aerosol impact on the surface UV radiation from the ground-based measurements taken at Belsk, Poland, 1980–1996, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103, 16 175–16 181, doi :10.1029/98JD00899, URL <http://dx.doi.org/10.1029/98JD00899>, 1998.
- Lamarque, J.-F., Shindell, D. T., Josse, B., Young, P. J., Cionni, I., Eyring, V., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Collins, W. J., Doherty, R., Dalsoren, S., Faluvegi, G., Folberth, G., Ghan, S. J., Horowitz, L. W., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Naik, V., Plummer, D., Righi, M., Rumbold, S. T., Schulz, M., Skeie, R. B., Stevenson, D. S., Strode, S., Sudo, K., Szopa, S., Voulgarakis, A., and Zeng, G. : The Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) : overview and description of models, simulations and climate diagnostics, *Geoscientific Model Development*, 6, 179–206, doi :10.5194/gmd-6-179-2013, URL <https://www.geosci-model-dev.net/6/179/2013/>, 2013.
- Lamy, K., Portafaix, T., Brogniez, C., Godin-Beekmann, S., Bencherif, H., Morel, B., Pazmino, A., Metzger, J. M., Auriol, F., Deroo, C., Duflot, V., Goloub, P., and Long, C. N. : Ultraviolet radiation modelling from ground-based and satellite measurements on Reunion Island, southern tropics, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 227–246, doi :10.5194/acp-18-227-2018, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/18/227/2018/>, 2018.
- Lary, D. J. and Pyle, J. A. : Diffuse radiation, twilight, and photochemistry — I, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 13, 373–392, doi :10.1007/BF00057753, 1991.

- Lelieveld, J., Dentener, F. J., Peters, W., and Krol, M. C. : On the role of hydroxyl radicals in the self-cleansing capacity of the troposphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4, 2337–2344, doi :10.5194/acp-4-2337-2004, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/4/2337/2004/>, 2004.
- Lerot, C., Van Roozendaal, M., Spurr, R., Loyola, D., Coldewey-Egbers, M., Kochenova, S., van Gent, J., Koukouli, M., Balis, D., Lambert, J.-C., Granville, J., and Zehner, C. : Homogenized total ozone data records from the European sensors GOME/ERS-2, SCIAMACHY/Envisat, and GOME-2/MetOp-A, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119, 1639–1662, doi : 10.1002/2013JD020831, URL <http://dx.doi.org/10.1002/2013JD020831>, 2013JD020831, 2014.
- Li, F., Stolarski, R. S., and Newman, P. A. : Stratospheric ozone in the post-CFC era, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 2207–2213, doi :10.5194/acp-9-2207-2009, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/9/2207/2009/>, 2009.
- Liao, H., Zhang, Y., Chen, W.-T., Raes, F., and Seinfeld, J. H. : Effect of chemistry-aerosol-climate coupling on predictions of future climate and future levels of tropospheric ozone and aerosols, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114, n/a–n/a, doi : 10.1029/2008JD010984, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2008JD010984>, d10306, 2009.
- Lin, P. and Fu, Q. : Changes in various branches of the Brewer–Dobson circulation from an ensemble of chemistry climate models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118, 73–84, doi :10.1029/2012JD018813, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2012JD018813>, 2013.
- Liou, K.-N. : A numerical experiment on Chandrasekhar’s discrete-ordinate method for radiative transfer : Applications to cloudy and hazy atmospheres, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 30, 1303–1326, 1973.
- Liou, K.-N. : An introduction to atmospheric radiation, vol. 84, Elsevier, 2002.
- Liu, Y., Key, J. R., Liu, Z., Wang, X., and Vavrus, S. J. : A cloudier Arctic expected with diminishing sea ice, *Geophysical Research Letters*, 39, n/a–n/a, doi :10.1029/2012GL051251, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2012GL051251>, 105705, 2012.
- Lockwood, M. and Fröhlich, C. : Recent oppositely directed trends in solar climate forcings and the global mean surface air temperature, *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 463, 2447–2460, doi :10.1098/rspa.2007.1880, 2007.
- Long, C. N. and Ackerman, T. P. : Identification of clear skies from broadband pyranometer measurements and calculation of downwelling shortwave cloud effects, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105, 15 609–15 626, 2000.
- Lorenz, L. : Upon the light reflected and refracted by a transparent sphere, *Vidensk. Selsk. Shifter*, 6, 1–62, 1890.
- Madronich, S. : The Atmosphere and UV-B Radiation at Ground Level, pp. 1–39, Springer US, Boston, MA, 1993.
- Madronich, S. and Flocke, S. : The role of solar radiation in atmospheric chemistry, in : *Environmental photochemistry*, pp. 1–26, Springer, 1999.
- Madronich, S., McKenzie, R. L., Björn, L. O., and Caldwell, M. M. : Changes in biologically active ultraviolet radiation reaching the Earth’s surface, *Journal of Photochemistry and Photobiology B : Biology*, 46, 5 – 19, 1998.

- Mahé, E., Beauchet, A., de Paula Corrêa, M., Godin-Beekmann, S., Haeffelin, M., Bruant, S., Fay-Chatelard, F., Jégou, F., Saiag, P., and Aegerter, P. : Outdoor sports and risk of ultraviolet radiation-related skin lesions in children : Evaluation of risks and prevention., *Br. J. Dermatol.*, 165, 360 – 367, doi :10.1111/j.1365-2133.2011.10415.x, URL <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/22188642>, 2011.
- Mahé, E., Corrêa, M. P., Godin-Beekmann, S., Haeffelin, M., Jégou, F., Saiag, P., and Beauchet, A. : Evaluation of tourists' UV exposure in Paris., *J Eur Acad Dermatol Venereol*, 27, e294 – 304, doi :10.1111/j.1468-3083.2012.04637.x, URL <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/22775064>, 2013.
- Malicet, J., Daumont, D., Charbonnier, J., Parisse, C., Chakir, A., and Brion, J. : Ozone UV spectroscopy. II. Absorption cross-sections and temperature dependence, *Journal of atmospheric chemistry*, 21, 263–273, 1995.
- Manabe, S. and Wetherald, R. T. : The Effects of Doubling the CO₂ Concentration on the climate of a General Circulation Model, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 32, 3–15, doi : 10.1175/1520-0469(1975)032<0003:TEODTC>2.0.CO;2, 1975.
- Manney, G. L., Santee, M. L., Rex, M., Livesey, N. J., Pitts, M. C., Veefkind, P., Nash, E. R., Wohltmann, I., Lehmann, R., Froidevaux, L., et al. : Unprecedented Arctic ozone loss in 2011, *Nature*, 478, 469, 2011.
- Matsumura, Y. and Ananthaswamy, H. N. : Toxic effects of ultraviolet radiation on the skin, *Toxicology and applied pharmacology*, 195, 298–308, 2004.
- Matsuno, T. : Numerical integrations of the primitive equations by a simulated backward difference method, *Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II*, 44, 76–84, 1966.
- Mayer, B. : I3RC phase 1 results from the MYSTIC Monte Carlo model, in : *Intercomparison of three-dimensional radiation codes : Abstracts of the first and second international workshops*, pp. 49–54, 1999.
- Mayer, B. and Kylling, A. : The libRadtran software package for radiative transfer calculations-description and examples of use, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 1855–1877, 2005.
- Mayer, B. : Radiative transfer in the cloudy atmosphere, *EPJ Web of Conferences*, 1, 75–99, doi : 10.1140/epjconf/e2009-00912-1, URL <https://doi.org/10.1140/epjconf/e2009-00912-1>, 2009.
- McCartney, E. J. : *Optics of the atmosphere : scattering by molecules and particles*, New York, John Wiley and Sons, Inc., 1976. 421 p., 1976.
- McKenzie, R. L., Matthews, W. A., and Johnston, P. V. : The relationship between erythmal UV and ozone, derived from spectral irradiance measurements, *Geophysical Research Letters*, 18, 2269–2272, doi :10.1029/91GL02786, URL <http://dx.doi.org/10.1029/91GL02786>, 1991a.
- McKenzie, R. L., Matthews, W. A., and Johnston, P. V. : The relationship between erythmal UV and ozone, derived from spectral irradiance measurements, *Geophysical Research Letters*, 18, 2269 – 2272, doi :10.1029/91GL02786, URL <http://dx.doi.org/10.1029/91GL02786>, 1991b.
- McKenzie, R. L., Paulin, K. J., and Madronich, S. : Effects of snow cover on UV irradiance and surface albedo : A case study, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103, 28 785–28 792, doi :10.1029/98JD02704, URL <http://dx.doi.org/10.1029/98JD02704>, 1998.

- McKenzie, R. L., Liley, J. B., and Björn, L. O. : UV radiation : balancing risks and benefits, *Photochemistry and Photobiology*, 85, 88–98, 2009.
- McPeters, R. D., Bhartia, P. K., Haffner, D., Labow, G. J., and Flynn, L. : The version 8.6 SBUV ozone data record : An overview, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118, 8032–8039, doi :10.1002/jgrd.50597, URL <http://dx.doi.org/10.1002/jgrd.50597>, 2013.
- Meador, W. and Weaver, W. : Two-stream approximations to radiative transfer in planetary atmospheres : A unified description of existing methods and a new improvement, *Journal of the atmospheric sciences*, 37, 630–643, 1980.
- Meinshausen, M., Smith, S. J., Calvin, K., Daniel, J. S., Kainuma, M., Lamarque, J.-F., Matsumoto, K., Montzka, S., Raper, S., Riahi, K., et al. : The RCP greenhouse gas concentrations and their extensions from 1765 to 2300, *Climatic change*, 109, 213, 2011.
- Mepsted, R., Paul, N., Stephen, J., Corlett, J., Nogues, S., Baker, N., Jones, H., and Ayres, P. : Effects of enhanced UV-B radiation on pea (*Pisum sativum* L.) grown under field conditions in the UK, *Global Change Biology*, 2, 325–334, 1996.
- Mie, G. : Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, *Annalen der physik*, 330, 377–445, 1908.
- Milankovitch, M. : Mathematische klimalehre und astronomische theorie der klimaschwankungen, *Handbuch der Klimatologie* 1, 1930.
- Molina, M. J. and Rowland, F. S. : Stratospheric sink for chlorofluoromethanes : chlorine atom-catalysed destruction of ozone, *Nature*, 249, 810–812, 1974.
- Morgenstern, O., Giorgetta, M. A., Shibata, K., Eyring, V., Waugh, D. W., Shepherd, T. G., Akiyoshi, H., Austin, J., Baumgaertner, A. J. G., Bekki, S., Braesicke, P., Brühl, C., Chipperfield, M. P., Cugnet, D., Dameris, M., Dhomse, S., Frith, S. M., Garny, H., Gettelman, A., Hardiman, S. C., Hegglin, M. I., Jöckel, P., Kinnison, D. E., Lamarque, J., Mancini, E., Manzini, E., Marchand, M., Michou, M., Nakamura, T., Nielsen, J. E., Olivié, D., Pitari, G., Plummer, D. A., Rozanov, E., Scinocca, J. F., Smale, D., Teyssède, H., Toohey, M., Tian, W., and Yamashita, Y. : Review of the formulation of present generation stratospheric chemistry climate models and associated external forcings, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115, doi :10.1029/2009JD013728, 2010.
- Murphy, D., Solomon, S., Portmann, R., Rosenlof, K., Forster, P., and Wong, T. : An observationally based energy balance for the Earth since 1950, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114, 2009.
- Oberländer, S., Langematz, U., and Meul, S. : Unraveling impact factors for future changes in the Brewer-Dobson circulation, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118, 2013.
- Oberländer-Hayn, S., Gerber, E. P., Abalichin, J., Akiyoshi, H., Kerschbaumer, A., Kubin, A., Kunze, M., Langematz, U., Meul, S., Michou, M., Morgenstern, O., and Oman, L. D. : Is the Brewer-Dobson circulation increasing or moving upward?, *Geophysical Research Letters*, 43, 1772–1779, doi :10.1002/2015GL067545, URL <http://dx.doi.org/10.1002/2015GL067545>, 2015GL067545, 2016.
- Orphal, J., Staehelin, J., Tamminen, J., Braathen, G., De Backer, M.-R., Bais, A., Balis, D., Barbe, A., Bhartia, P. K., Birk, M., and et al. : Absorption cross-sections of ozone in the ultraviolet and visible spectral regions : Status report 2015, *Journal of Molecular Spectroscopy*, 327, 105–121, doi :10.1016/j.jms.2016.07.007, URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.jms.2016.07.007>, 2016.

- Palancar, G. G., Shetter, R. E., Hall, S. R., Toselli, B. M., and Madronich, S. : Ultraviolet actinic flux in clear and cloudy atmospheres : model calculations and aircraft-based measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 5457–5469, doi :10.5194/acp-11-5457-2011, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/11/5457/2011/>, 2011.
- Palmeiro, F. M., Calvo, N., and Garcia, R. R. : Future Changes in the Brewer–Dobson Circulation under Different Greenhouse Gas Concentrations in WACCM4, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 71, 2962–2975, doi :10.1175/JAS-D-13-0289.1, 2014.
- Petropavlovskikh, I. and Brasseur, G. : Evaluation of photodissociation coefficient calculations for use in atmospheric chemical models, 1995.
- Phillips, N. A. : A coordinate system having some special advantages for numerical forecasting, *Journal of Meteorology*, 14, 184–185, 1957.
- Plumb, R. A. : Stratospheric transport, *Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II*, 80, 793–809, 2002.
- Plummer, D. A., Scinocca, J. F., Shepherd, T. G., Reader, M. C., and Jonsson, A. I. : Quantifying the contributions to stratospheric ozone changes from ozone depleting substances and greenhouse gases, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 8803–8820, doi :10.5194/acp-10-8803-2010, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/10/8803/2010/>, 2010.
- Pommereau, J. P. and Goutail, F. : O₃ and NO₂ ground-based measurements by visible spectrometry during Arctic winter and spring 1988, *Geophysical Research Letters*, 15, 891–894, 1988.
- Portmann, R., Daniel, J., and Ravishankara, A. : Stratospheric ozone depletion due to nitrous oxide : influences of other gases, *Phil. Trans. R. Soc. B*, 367, 1256–1264, 2012.
- Rasch, P. J. and Williamson, D. L. : Computational aspects of moisture transport in global models of the atmosphere, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 116, 1071–1090, doi :10.1002/qj.49711649504, URL <http://dx.doi.org/10.1002/qj.49711649504>, 1990.
- Ravishankara, A. R., Daniel, J. S., and Portmann, R. W. : Nitrous Oxide (N₂O) : The Dominant Ozone-Depleting Substance Emitted in the 21st Century, *Science*, 326, 123–125, doi :10.1126/science.1176985, 2009.
- Rayleigh, J. W. S. B. : On the scattering of light by small particles, 1871.
- Rind, D., Suozzo, R., Balachandran, N. K., and Prather, M. J. : Climate Change and the Middle Atmosphere. Part I : The Doubled CO₂ Climate, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 47, 475–494, doi :10.1175/1520-0469(1990)047<0475:CCATMA>2.0.CO;2, 1990.
- Rosenfeld, D., Lohmann, U., Raga, G. B., O’Dowd, C. D., Kulmala, M., Fuzzi, S., Reissell, A., and Andreae, M. O. : Flood or Drought : How Do Aerosols Affect Precipitation ?, *Science*, 321, 1309–1313, doi :10.1126/science.1160606, URL <http://science.sciencemag.org/content/321/5894/1309>, 2008.
- Sabburg, J. and Wong, J. : The effect of clouds on enhancing UVB irradiance at the Earth’s surface : A one year study, *Geophysical Research Letters*, 27, 3337–3340, doi :10.1029/2000GL011683, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2000GL011683>, 2000.
- Sasha, M. : Analytic Formula for the Clear sky UV Index, *Photochemistry and Photobiology*, 83, 1537–1538, doi :10.1111/j.1751-1097.2007.00200.x, 2007.

- Schafer, J. S., Saxena, V. K., Wenny, B. N., Barnard, W., and De Luisi, J. J. : Observed influence of clouds on ultraviolet-B radiation, *Geophysical Research Letters*, 23, 2625–2628, doi :10.1029/96GL01984, URL <http://dx.doi.org/10.1029/96GL01984>, 1996.
- Serdyuchenko, A., Gorshelev, V., Weber, M., Chehade, W., and Burrows, J. : High spectral resolution ozone absorption cross-sections–Part 2 : Temperature dependence., *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, 6, 2014.
- Shaw, T. A. and Shepherd, T. G. : Atmospheric science : Raising the roof, *Nature geoscience*, 1, 12–13, 2008.
- Shepherd, T. G. : Large-Scale Atmospheric Dynamics for Atmospheric Chemists, *Chemical Reviews*, 103, 4509–4532, doi :10.1021/cr020511z, 2003.
- Shepherd, T. G. and Shaw, T. A. : The Angular Momentum Constraint on Climate Sensitivity and Downward Influence in the Middle Atmosphere, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 61, 2899–2908, doi :10.1175/JAS-3295.1, 2004.
- Shepherd, T. G., Semeniuk, K., and Koshyk, J. N. : Sponge layer feedbacks in middle-atmosphere models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101, 23 447–23 464, doi :10.1029/96JD01994, URL <http://dx.doi.org/10.1029/96JD01994>, 1996.
- Shindell, D., Rind, D., Balachandran, N., Lean, J., and Lonergan, P. : Solar cycle variability, ozone, and climate, *Science*, 284, 305–308, 1999.
- Slingo, J. M. : The Development and Verification of A Cloud Prediction Scheme For the Ecmwf Model, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 113, 899–927, doi :10.1002/qj.49711347710, URL <http://dx.doi.org/10.1002/qj.49711347710>, 1987.
- Solomon, S. : Stratospheric ozone depletion : A review of concepts and history, *Reviews of Geophysics*, 37, 275–316, 1999.
- Solomon, S., Daniel, J. S., Neely, R. R., Vernier, J.-P., Dutton, E. G., and Thomason, L. W. : The Persistently Variable “Background” Stratospheric Aerosol Layer and Global Climate Change, *Science*, 333, 866–870, doi :10.1126/science.1206027, 2011.
- Solomon, S., Young, P. J., and Hassler, B. : Uncertainties in the evolution of stratospheric ozone and implications for recent temperature changes in the tropical lower stratosphere, *Geophysical Research Letters*, 39, 2012.
- Stammes, P. and Noordhoek, R. : OMI algorithm theoretical basis document volume III : clouds, aerosols, and surface UV irradiance, Accessed December, 1, 2012, 2002.
- Stammes, K., Tsay, S.-C., Wiscombe, W., and Jayaweera, K. : Numerically stable algorithm for discrete-ordinate-method radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media, *Applied optics*, 27, 2502–2509, 1988.
- Stammes, K., Tsay, S.-C., Wiscombe, W., and Laszlo, I. : DISORT, a general-purpose Fortran program for discrete-ordinate-method radiative transfer in scattering and emitting layered media : documentation of methodology, Goddard Space Flight Center, NASA, 2000.
- Stolarski, R. S., Douglass, A. R., Remsberg, E. E., Livesey, N. J., and Gille, J. C. : Ozone temperature correlations in the upper stratosphere as a measure of chlorine content, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 117, 2012.

- Tanskanen, A., Lindfors, A., Määttä, A., Krotkov, N., Herman, J., Kaurola, J., Koskela, T., Lakkala, K., Fioletov, V., Bernhard, G., and et al. : Validation of daily erythral doses from Ozone Monitoring Instrument with ground-based UV measurement data, *Journal of Geophysical Research*, 112, doi :10.1029/2007jd008830, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2007JD008830>, 2007.
- Teramura, A. H., Sullivan, J. H., and Lydon, J. : Effects of UV-B radiation on soybean yield and seed quality : a 6-year field study, *Physiologia Plantarum*, 80, 5–11, doi :10.1111/j.1399-3054.1990.tb04367.x, URL <http://dx.doi.org/10.1111/j.1399-3054.1990.tb04367.x>, 1990.
- Thompson, A. M., Witte, J. C., McPeters, R. D., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W., Posny, F., Coetzee, G. J., et al. : Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998–2000 tropical ozone climatology 1. Comparison with Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) and ground-based measurements, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108, 2003.
- Thompson, D. W. J. and Solomon, S. : Understanding Recent Stratospheric Climate Change, *Journal of Climate*, 22, 1934–1943, doi :10.1175/2008JCLI2482.1, 2009.
- Titov, G. A. : Statistical description of radiation transfer in clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 47, 24–38, 1990.
- Toon, O. B., McKay, C., Ackerman, T., and Santhanam, K. : Rapid calculation of radiative heating rates and photodissociation rates in inhomogeneous multiple scattering atmospheres, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 94, 16 287–16 301, 1989.
- Torres, O., Bhartia, P., Herman, J., Ahmad, Z., and Gleason, J. : Derivation of aerosol properties from satellite measurements of backscattered ultraviolet radiation : Theoretical basis, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103, 17 099–17 110, 1998.
- Trenberth, K. E. and Fasullo, J. T. : Global warming due to increasing absorbed solar radiation, *Geophysical Research Letters*, 36, 2009.
- Turco, R. and Whitten, R. : A comparison of several computational techniques for solving some common aeronomic problems, *Journal of Geophysical Research*, 79, 3179–3185, 1974.
- van der A, R. J., Allaart, M. A. F., and Eskes, H. J. : Multi sensor reanalysis of total ozone, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 11 277–11 294, doi :10.5194/acp-10-11277-2010, URL <https://www.atmos-chem-phys.net/10/11277/2010/>, 2010.
- van Vuuren, D. P., Edmonds, J., Kainuma, M., Riahi, K., Thomson, A., Hibbard, K., Hurtt, G. C., Kram, T., Krey, V., Lamarque, J.-F., Masui, T., Meinshausen, M., Nakicenovic, N., Smith, S. J., and Rose, S. K. : The representative concentration pathways : an overview, *Climatic Change*, 109, 5, doi :10.1007/s10584-011-0148-z, 2011.
- Vernet, M., Brody, E. A., Holm-Hansen, O., and Mitchell, B. G. : The Response of Antarctic Phytoplankton to Ultraviolet Radiation : Absorption, Photosynthesis, and Taxonomic Composition, pp. 143–158, *American Geophysical Union*, doi :10.1029/AR062p0143, URL <http://dx.doi.org/10.1029/AR062p0143>, 1993.
- Walcek, C. J. and Taylor, G. R. : A Theoretical Method for Computing Vertical Distributions of Acidity and Sulfate Production within Cumulus Clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 43, 339–355, doi :10.1175/1520-0469(1986)043<0339:ATMFCV>2.0.CO;2, 1986.

- Wang, T., Li, S., Shen, Y., Deng, J., and Xie, M. : Investigations on direct and indirect effect of nitrate on temperature and precipitation in China using a regional climate chemistry modeling system, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115, n/a–n/a, doi : 10.1029/2009JD013264, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2009JD013264>, d00K26, 2010.
- Watanabe, S., Sudo, K., Nagashima, T., Takemura, T., Kawase, H., and Nozawa, T. : Future projections of surface UV-B in a changing climate, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116, n – a – n – a, doi :10.1029/2011JD015749, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2011JD015749>, d16118, 2011.
- Waugh, D. W., Oman, L., Kawa, S. R., Stolarski, R. S., Pawson, S., Douglass, A. R., Newman, P. A., and Nielsen, J. E. : Impacts of climate change on stratospheric ozone recovery, *Geophysical Research Letters*, 36, n/a–n/a, doi :10.1029/2008GL036223, URL <http://dx.doi.org/10.1029/2008GL036223>, l03805, 2009.
- Webb, D. F. and Howard, R. A. : The solar cycle variation of coronal mass ejections and the solar wind mass flux, *Journal of Geophysical Research : Space Physics*, 99, 4201–4220, 1994.
- Wetherald, R. and Manabe, S. : Cloud feedback processes in a general circulation model, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 45, 1397–1416, 1988.
- Williamson, D. L. and Rasch, P. J. : Two-Dimensional Semi-Lagrangian Transport with Shape-Preserving Interpolation, *Monthly Weather Review*, 117, 102–129, doi :10.1175/1520-0493(1989)117<0102:TDSLW>2.0.CO;2, 1989.
- Witte, J. C., Thompson, A. M., Smit, H. G., Fujiwara, M., Posny, F., Coetzee, G. J., Northam, E. T., Johnson, B. J., Sterling, C. W., Mohamad, M., et al. : First reprocessing of Southern Hemisphere ADditional OZonesondes (SHADOZ) profile records (1998–2015) : 1. Methodology and evaluation, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 122, 6611–6636, 2017.
- WMO, W. M. O. : Scientific assessment of ozone depletion : 2010, *Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No. 51*, 2011.
- WMO, W. M. O. : Scientific Assessment of Ozone Depletion : 2014, in : *Scientific Assessment of Ozone Depletion : 2014*, 55, p. 416, Geneva, Switzerland, 2014.
- Wright, C. Y., Reeder, A. I., Bodeker, G. E., Gray, A., and Cox, B. : Solar UVR Exposure, Concurrent Activities and Sun-Protective Practices Among Primary Schoolchildren, *Photochemistry and Photobiology*, 83, 749–758, doi :10.1562/2006-08-22-ra-1010, URL <http://dx.doi.org/10.1562/2006-08-22-RA-1010>, 2007.
- Zdunkowski, W., Welch, R., and Korb, G. : An investigation of the structure of typical two-stream-methods for the calculation of solar fluxes and heating rates in clouds, *Beiträge zur Physik der Atmosphäre*, 53, 147–166, 1980.
- Ziemke, J. R., Herman, J. R., Stanford, J. L., and Bhartia, P. K. : Total ozone/UVB monitoring and forecasting : Impact of clouds and the horizontal resolution of satellite retrievals, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103, 3865–3871, doi :10.1029/97JD03324, URL <http://dx.doi.org/10.1029/97JD03324>, 1998.

Table des figures

1	Représentation schématique des composantes du système climatique et de leurs interactions. (Houghton, 1996)	6
2	Profils verticaux d’ozone pour trois régions situées aux tropiques, aux moyennes latitudes et au pôle nord. Ces mesures sont issues de radiosondages et présentées par Delmas et al. (2005).	8
3	Différence relative [%] de l’indice UV moyen de 2075-2095 et celui de 1955-1974, pour deux scénarios climatiques différents (RCP2.6 et RCP8.5) associés chacun à deux niveaux de N ₂ O (344 et 428 ppbv). (Butler et al., 2016)	9
1.1	Equilibre radiatif du système climatique. (IPCC, 2013)	14
1.2	Spectre Electromagnétique [ESA / AOES Medialab]	15
1.3	Spectre d’Émission du Soleil et spectre mesuré à la surface (Brasseur and Solomon, 2006)	16
1.4	Sphère céleste équatoriale. [Institut de Mécanique Céleste et de Calcul des Ephémérides]	18
1.5	Absorption du rayonnement solaire. Z : Profondeur de pénétration, λ : longueur d’onde. Les fenêtres d’absorption des différentes molécules sont définies par les flèches horizontales.(Brasseur and Solomon, 2006)	20
1.6	Section efficace d’absorption de l’ozone [cm ² /molecule] à différentes températures. (Serdychenko et al., 2014)	20
1.7	Spectre d’Action : en rouge le spectre d’action érythémal et en bleu le spectre d’action associé à la synthèse de la prévitamine-D (Holick et al., 1980). . .	25
1.8	BENTHAM DM 300	26
1.10	Fonction de phase pour différentes diffusions (McCartney, 1976)	32
1.11	Irradiance du Soleil et de la terre. (Mayer, B., 2009)	34
1.12	Développement des modèles de climat. [IPCC Third Assesment Report, Technical Summary, (Griggs and Noguer, 2002)]	41

1.13	Processus physiques représentés dans les CCMs, d'après Delmas et al. (2005)	42
1.14	Évolution du forçage radiatif en fonction de différents scénarios. (IPCC, 2013)	52
1.15	Concentrations atmosphériques de CO ₂ , CH ₄ et N ₂ O pour différents scénarios. (WMO, 2014)	52
1.16	Distribution de l'ozone stratosphérique moyenné sur les longitudes. Mesures réalisées par l'instrument OSIRIS embarqué sur le satellite ODIN, en Mars 2004, résultat publié par (Shaw and Shepherd, 2008)	54
1.17	Moyenne annuelle zonale de la température (tiret) et de la température potentielle (trait plein) en Kelvin. (Shepherd, 2003)	55
1.18	Coupe latitude et hauteur du rapport de mélange du CH ₄ pour le mois d'Octobre. (Shepherd, 2003)	56
1.19	Anomalies moyennes annuelles de la colonne totale d'ozone depuis les années 1960. Les anomalies sont calculées à partir de la moyenne de 1998 à 2008. [Ozone Assessment, 2014, Chapitre 2, Figure 2-2]	58

Liste des tableaux

1.1	Composition de l'atmosphère selon (Brasseur and Solomon, 2006) et (Madronich, 1993)	19
1.2	Coordonnées et altitudes des sites de mesures.	24
1.3	Données d'Ozone.	28
1.4	Données disponibles sur les aérosols.	28
1.5	Données disponibles sur les nuages.	29

Résumé

Projection Climatique du Rayonnement Ultraviolet au cours du 21ème siècle : Impact de différents scénarios climatiques.

Suite à la signature du Protocole de Montréal en 1987, la concentration atmosphérique des substances destructrices d'ozone (ODS) est en baisse. La couche d'ozone montre des signes de récupération (Morgenstern et al. 2008a). Toutefois, l'émission des gaz à effet de serre (GHG) est en augmentation et devrait affecter au cours du 21ème siècle la distribution et les niveaux d'ozone dans l'atmosphère terrestre. En particulier, la modélisation du climat futur montre des signes d'accélération de la circulation de Brewer-Dobson transportant l'ozone de l'équateur vers les pôles. L'ozone est un constituant chimique important de l'atmosphère. Bien que nocif dans la troposphère, il est essentiel à la vie sur Terre grâce à sa capacité d'absorption d'une grande partie du rayonnement ultraviolet (UV) provenant du Soleil. Des modifications dans sa variabilité temporelle ou géographique impliqueraient des changements d'intensité du rayonnement UV à la surface de la Terre (Hegglin et al. (2009), Bais et al. (2011)).

Le rayonnement UV à la surface affecte toute la biosphère. Les interactions entre rayonnement UV et écosystèmes terrestres et aquatiques sont nombreuses. Ces interactions ont des effets sur les cycles biogéochimiques et engendrent des rétroactions positives et négatives sur le climat (Erickson III et al., 2015a). La capture du CO₂ atmosphérique par photosynthèse des plantes terrestres en est un exemple (Zepp et al., 2007a). Dans l'océan la pompe biologique du CO₂ par la photosynthèse du phytoplancton est aussi directement affecté par la variabilité du rayonnement UV (Hader et al., 2007a). Pour l'homme le rayonnement UV est nécessaire car il participe à la photosynthèse de la vitamine D (Holick et al., 1980), mais une surexposition à des niveaux d'intensité élevés du rayonnement UV est la cause principale du développement de cancer de la peau (Matsumura and Ananthaswamy, 2004).

L'objectif de ce travail de thèse est d'analyser l'évolution possible du rayonnement UV au cours du 21ème siècle, en particulier aux tropiques sud, dans le cadre des modifications climatiques attendues.

Une première partie de ce travail consiste à modéliser le rayonnement UV en ciel clair dans les tropiques grâce au modèle TUV (Madronich et al., 1998) et à comparer les résultats aux mesures sols réalisées à la Réunion. Cette première partie permet l'utilisation future du modèle aux tropiques avec un bon niveau de confiance. La sensibilité du modèle de transfert radiatif en fonction de différents paramètres d'entrée est analysée (section efficace d'absorption de l'ozone, spectre extraterrestriel du soleil, ...). Les sorties du modèle sont ensuite validées à partir de mesures UV spectral au sol obtenues grâce à un spectromètre BENTHAM DM300n. Un filtrage ciel-clair des données au sol est opéré à partir de mesures de flux et de l'algorithme de Long and Ackerman (2000).

Les projections climatiques des indices UV (Mc Kinlay and Diffey, 1987) sont réalisées par la suite. Pour cela, on utilise les sorties de plusieurs modèles de Chimie-Climat participant à l'exercice d'inter-comparaison CCMI (Chemistry Climate Model Initiative), couplées aux modèle TUV, validé en première partie dans les tropiques. L'exercice CCMI consiste à projeter le climat et la chimie Terrestre jusqu'en 2100 selon différents scénarios. Ces sorties décrivant la chimie et physique de l'atmosphère servent d'entrée au modèle de transfert radiatif, on obtient alors le rayonnement UV jusqu'en 2100 pour différents scénarios. Une première analyse comparative de l'UV obtenue pour quatre scénarios d'émissions (RCP2.6/4.5/6.0/8.5, Meinshausen et al., 2011) est effectuée. La fin du travail consiste à étudier l'impact des ODS, GHG et aérosols sur l'évolution du rayonnement UV au cours du 21ème siècle, avec un focus particulier sur les tropiques de l'hémisphère sud.

Mots-Clés :

rayonnement ultraviolet ; ozone ; tropiques ; climat ; aérosols ; projection climatique ; modélisation ; chimie de l'atmosphère ; transfert radiatif, changement climatique

Références :

Bais, A. F., Tourpali, K., Kazantzidis, A., Akiyoshi, H., Bekki, S., Braesicke, P., Chipperfield, M. P., Dameris, M., Eyring, V., Garny, H., and et al. : Projections of UV radiation changes in the 21st century : impact of ozone recovery and cloud effects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 7533–7545, <https://doi.org/10.5194/acp-11-7533-2011>, 2011.

Erickson III, D. J., Sulzberger, B., Zepp, R. G., and Austin, A. T. : Effects of stratospheric ozone depletion, solar UV radiation, and climate change on biogeochemical cycling : interactions and feedbacks, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 14, 127–148, <https://doi.org/10.1039/C4PP90036G>, 2015.

Hader, D.-P., Kumar, H. D., Smith, R. C., and Worrest, R. C. : Effects of solar UV radiation on aquatic ecosystems and interactions with climate change, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 6, 267–285, <https://doi.org/10.1039/B700020K>, 2007.

Hegglin, M. I. and Shepherd, T. G. : Large climate-induced changes in ultraviolet index and stratosphere-to-troposphere ozone flux, *Nature Geoscience*, 2, 687, 2009.

Holick, M. F., MacLaughlin, J., Clark, M., Holick, S., Potts, J., Anderson, R., Blank, I., Parrish, J., and Elias, P. : Photosynthesis of previtamin D3 in human skin and the physiologic consequences, *Science*, 210, 203–205, 1980.

Long, C. N. and Ackerman, T. P. : Identification of clear skies from broadband pyranometer measurements and calculation of downwelling shortwave cloud effects, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105, 15 609–15 626, 2000.

Madronich, S., McKenzie, R. L., Björn, L. O., and Caldwell, M. M. : Changes in biologically active ultraviolet radiation reaching the Earth's surface, *Journal of Photochemistry and Photobiology B : Biology*, 46, 5 – 19, 1998.

Matsumura, Y. and Ananthaswamy, H. N. : Toxic effects of ultraviolet radiation on the skin, *Toxi-*

cology and applied pharmacology, 195, 298–308, 2004.

Meinshausen, M., Smith, S. J., Calvin, K., Daniel, J. S., Kainuma, M. L. T., Lamarque, J.-F., Matsumoto, K., Montzka, S. A., Raper, S. C. B., Riahi, K., Thomson, A., Velders, G. J. M., and van Vuuren, D. P. : The RCP greenhouse gas concentrations and their extensions from 1765 to 2300, *Climatic Change*, 109, 213, <https://doi.org/10.1007/s10584-011-0156-z>, 2011.

Mc Kinlay, A. F. and Diffey, B. L. : A reference action spectrum for ultraviolet induced erythema in human skin, *CIE J*, 6, 17–22, 1987.

Morgenstern, O., Braesicke, P., Hurwitz, M. M., O'Connor, F. M., Bushell, A. C., Johnson, C. E., and Pyle, J. A. : The World Avoided by the Montreal Protocol, *Geophysical Research Letters*, 35, n/a–n/a, <https://doi.org/10.1029/2008GL034590>, 2008.

Zepp, R. G., Erickson III, D. J., Paul, N. D., and Sulzberger, B. : Interactive effects of solar UV radiation and climate change on biogeochemical cycling, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 6, 286–300, <https://doi.org/10.1039/B700021A>, 2007.

Abstract

Climate Projection of Ultraviolet Radiation through the 21st century : Impacts of Different Climate Scenarios

After the signing of the Montreal Protocol in 1987, atmospheric concentrations of ozone depleting substances (ODS) are declining. The ozone layer shows signs of recovery (Morgenstern et al. 2008a). Nonetheless, the emissions of greenhouse gases (GHG) is rising and should affect through the 21st century the distribution and the level of ozone in Earth's atmosphere. In particular, climate projection modeling shows evidences of strengthening of Brewer-Dobson circulation which transport ozone from the equator toward the poles. Ozone is an important atmospheric constituent. While it is harmful in the troposphere, it is essential for life on Earth due to his ability to absorb a part of the ultraviolet radiation (UV) coming from the sun. Changes in the geographical or temporal variability of ozone would involve changes in the intensities of UV at the Earth's surface (Hegglin et al.(2009), Bais et al. (2011)).

UV radiation at the surface of the Earth affect the entire biosphere. Interactions between UV radiation and terrestrial and aquatic ecosystems are numerous. These interaction impact biogeochemical cycle and generate positive and negative feedback on climate (Erickson III et al. 2015a). Atmospheric CO₂ capture by plant photosynthesis is one example (Zepp et al., 2007). In the ocean, the CO₂ biological pump by phytoplankton photosynthesis is directly affected by UV radiation variability (Hader et al., 2007). For man, UV radiation is necessary because it is involved in vitamin D photosynthesis (Holick et al., 1980), however an overexposure to high intensity of UV is the main cause of skin cancer (Matsumura and Ananthaswamy, 2004).

The main objective of this thesis is to analyse the possible evolution of UV radiation through the 21st century, in particular in the South Tropics, in the frame of expected climate changes.

The first part of this work is the modelisation of UV radiation in clear-sky conditions in the tropics using TUV model (Madronich et al, 1998) and compare the results to ground-based measurements made at Reunion Island. This first part allows the future utilisation of a numerical model in the tropics with good confidence. Radiative transfer model sensitivity depending on different input parameters have been analysed (ozone cross section absorption, extraterrestrial spectrum, ..). Model output are then validated against ground-based spectral UV measurements obtained from a Bentham DM300n spectrometer. A clear-sky filter of ground-based measurements is derived from measurements of flux with the use of Long and Ackerman (2000) algorithm.

Climate projection of UV index (Mc Kinlay and Differy, 1987) are then modelised. To do this we used multiple output of Chemistry-Climate model participating in the CCMI intercomparison exercise (Chemistry Climate Model Initiative), coupled with TUV model which was validated in the first part in the tropics. The CCMI exercise project Earth climate and chemistry until 2100 for different scenarios. These outputs describing Earth physics and chemistry are used as input for the radiative transfer model, from there we obtained UV radiation until 2100 for different scenarios. A first comparative analysis of the UV obtained for four emissions scenarios (RCP 2.6/4.5/6.0/8.5, Meinshausen et al., 2011) is performed. The last investigation covers the impact of ODS, GHG and aerosols on the evolution of UV radiation

throughout the 21st century, with a focus on the tropical southern hemisphere.

Keywords : ultraviolet radiation ; ozone ; tropics ; climate ; aerosols ; climate projection ; modelisation ; atmospheric chemistry ; radiative transfer ; climate change

Bibliography :

Bais, A. F., Tourpali, K., Kazantzidis, A., Akiyoshi, H., Bekki, S., Braesicke, P., Chipperfield, M. P., Dameris, M., Eyring, V., Garny, H., and et al. : Projections of UV radiation changes in the 21st century : impact of ozone recovery and cloud effects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 7533–7545, <https://doi.org/10.5194/acp-11-7533-2011>, 2011.

Erickson III, D. J., Sulzberger, B., Zepp, R. G., and Austin, A. T. : Effects of stratospheric ozone depletion, solar UV radiation, and climate change on biogeochemical cycling : interactions and feedbacks, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 14, 127–148, <https://doi.org/10.1039/C4PP90036G>, 2015.

Hader, D.-P., Kumar, H. D., Smith, R. C., and Worrest, R. C. : Effects of solar UV radiation on aquatic ecosystems and interactions with climate change, *Photochem. Photobio. S.*, 6, 267–285, <https://doi.org/10.1039/B700020K>, 2007.

Hegglin, M. I. and Shepherd, T. G. : Large climate-induced changes in ultraviolet index and stratosphere-to-troposphere ozone flux, *Nature Geoscience*, 2, 687, 2009.

Holick, M. F., MacLaughlin, J., Clark, M., Holick, S., Potts, J., Anderson, R., Blank, I., Parrish, J., and Elias, P. : Photosynthesis of previtamin D3 in human skin and the physiologic consequences, *Science*, 210, 203–205, 1980.

Long, C. N. and Ackerman, T. P. : Identification of clear skies from broadband pyranometer measurements and calculation of downwelling shortwave cloud effects, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105, 15 609–15 626, 2000.

Madronich, S., McKenzie, R. L., Björn, L. O., and Caldwell, M. M. : Changes in biologically active ultraviolet radiation reaching the Earth's surface, *Journal of Photochemistry and Photobiology B : Biology*, 46, 5 – 19, 1998.

Matsumura, Y. and Ananthaswamy, H. N. : Toxic effects of ultraviolet radiation on the skin, *Toxicology and applied pharmacology*, 195, 298–308, 2004.

Meinshausen, M., Smith, S. J., Calvin, K., Daniel, J. S., Kainuma, M. L. T., Lamarque, J.-F., Matsumoto, K., Montzka, S. A., Raper, S. C. B., Riahi, K., Thomson, A., Velders, G. J. M., and van Vuuren, D. P. : The RCP greenhouse gas concentrations and their extensions from 1765 to 2300, *Climatic Change*, 109, 213, <https://doi.org/10.1007/s10584-011-0156-z>, 2011.

Mc Kinlay, A. F. and Diffey, B. L. : A reference action spectrum for ultraviolet induced erythema in human skin, *CIE J*, 6, 17–22, 1987.

Morgenstern, O., Braesicke, P., Hurwitz, M. M., O'Connor, F. M., Bushell, A. C., Johnson, C. E., and Pyle, J. A. : The World Avoided by the Montreal Protocol, *Geophysical Research Letters*, 35, n/a–n/a, <https://doi.org/10.1029/2008GL034590>, 2008.

Zepp, R. G., Erickson III, D. J., Paul, N. D., and Sulzberger, B. : Interactive effects of solar UV radiation and climate change on biogeochemical cycling, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 6, 286–300, <https://doi.org/10.1039/B700021A>, 2007.

LETTRE D'ENGAGEMENT DE NON-PLAGIAT

Je, soussigné(e) **Kévin LAMY** en ma qualité de doctorant(e) de l'Université de La Réunion, déclare être conscient(e) que le plagiat est un acte délictueux passible de sanctions disciplinaires. Aussi, dans le respect de la propriété intellectuelle et du droit d'auteur, je m'engage à systématiquement citer mes sources, quelle qu'en soit la forme (textes, images, audiovisuel, internet), dans le cadre de la rédaction de ma thèse et de toute autre production scientifique, sachant que l'établissement est susceptible de soumettre le texte de ma thèse à un logiciel anti-plagiat.

Fait à Saint-Denis le : 26/06/2018

Signature :



Extrait du Règlement intérieur de l'Université de La Réunion
(validé par le Conseil d'Administration en date du 11 décembre 2014)

Article 9. Protection de la propriété intellectuelle - Faux et usage de faux, contrefaçon, plagiat

L'utilisation des ressources informatiques de l'Université implique le respect de ses droits de propriété intellectuelle ainsi que ceux de ses partenaires et plus généralement, de tous tiers titulaires de ces droits.

En conséquence, chaque utilisateur doit :

- utiliser les logiciels dans les conditions de licences souscrites ;
- ne pas reproduire, copier, diffuser, modifier ou utiliser des logiciels, bases de données, pages Web, textes, images, photographies ou autres créations protégées par le droit d'auteur ou un droit privatif, sans avoir obtenu préalablement l'autorisation des titulaires de ces droits.

La contrefaçon et le faux

Conformément aux dispositions du code de la propriété intellectuelle, toute représentation ou reproduction intégrale ou partielle d'une œuvre de l'esprit faite sans le consentement de son auteur est illicite et constitue un délit pénal.

L'article 444-1 du code pénal dispose : « Constitue un faux toute altération frauduleuse de la vérité, de nature à causer un préjudice et accomplie par quelque moyen que ce soit, dans un écrit ou tout autre support d'expression de la pensée qui a pour objet ou qui peut avoir pour effet d'établir la preuve d'un droit ou d'un fait ayant des conséquences juridiques ».

L'article L335_3 du code de la propriété intellectuelle précise que : « Est également un délit de contrefaçon toute reproduction, représentation ou diffusion, par quelque moyen que ce soit, d'une œuvre de l'esprit en violation des droits de l'auteur, tels qu'ils sont définis et réglementés par la loi. Est également un délit de contrefaçon la violation de l'un des droits de l'auteur d'un logiciel (...) ».

Le plagiat constitué par la copie, totale ou partielle d'un travail réalisé par autrui, lorsque la source empruntée n'est pas citée, quel que soit le moyen utilisé. Le plagiat constitue une violation du droit d'auteur (au sens des articles L 335-2 et L 335-3 du code de la propriété intellectuelle). Il peut être assimilé à un délit de contrefaçon. C'est aussi une faute disciplinaire, susceptible d'entraîner une sanction.

Les sources et les références utilisées dans le cadre des travaux (préparations, devoirs, mémoires, thèses, rapports de stage...) doivent être clairement citées. Des citations intégrales peuvent figurer dans les documents rendus, si elles sont assorties de leur référence (nom d'auteur, publication, date, éditeur...) et identifiées comme telles par des guillemets ou des italiques.

Les délits de contrefaçon, de plagiat et d'usage de faux peuvent donner lieu à une sanction disciplinaire indépendante de la mise en œuvre de poursuites pénales.