



HAL
open science

Évolution de la colonne totale d’ozone à deux stations tropicales : observations et modélisation

Aymen Frihi

► **To cite this version:**

Aymen Frihi. Évolution de la colonne totale d’ozone à deux stations tropicales : observations et modélisation. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Sorbonne Université, 2018. Français. NNT : 2018SORUS240 . tel-02476395

HAL Id: tel-02476395

<https://theses.hal.science/tel-02476395>

Submitted on 12 Feb 2020

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.

Sorbonne Université

Université Pierre et Marie Curie

Thèse de Doctorat de Sorbonne Université

École doctorale « Sciences de l'environnement d'Ile de France »

Spécialité : Physique de l'Atmosphère

Laboratoire Atmosphère, Milieux et Observations Spatiales / STRATO

**Évolution de la colonne totale d'ozone à deux stations
tropicales : Observations et Modélisation**

Pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE SORBONNE UNIVERSITÉ

Présentée par **Frihi Aymen**

Présenté et soutenu publiquement le 9 Novembre 2018

Devant un jury composé de :

President du Jury :	M. Francois RAVETTA
Rapporteurs :	M. Valery CATOIRE M. Philippe RICAUD
Examineurs :	M. Daniel CARIOLLE Mme Virginie MARECAL
Co-Directeurs de thèse :	M. Jean-Pierre POMMEREAU Mme Andréa PAZMINO
Directeur de thèse :	M. Slimane BEKKI

Remerciements

Cette thèse ne serait sans la contribution, le soutien et l'encouragement de nombreuses personnes que je tiens à remercier infiniment.

Commençons par la personne qui dès le début m'a voué une grande confiance, mon directeur Slimane Bekki. Merci à toi pour ta confiance, ta disponibilité, pour nos échanges enrichissants et spécialement ta bonne humeur qui a su rendre le déroulement de cette thèse dans de parfaites conditions. Je tiens à remercier également et profondément mes co-directeurs de thèse Jean-Pierre Pommereau et Andréa Pazmiño, ainsi que Florence Goutail pour leurs très grande présence et disponibilité tout au long de cette thèse. Nos nombreux échanges et vos qualités pédagogiques m'ont énormément enrichi d'un point de vue scientifique et humain et qui sans vous, ce travail n'aurait pu être réalisé.

Mes remerciements vont également à François Ravetta d'avoir accepté d'être le président du jury de cette thèse et à tous les membres du jury que sont Valery Catoire, Philippe Ricaud, Daniel Cariolle, et Virginie Marecal. Un grand merci particulièrement à Valery Catoire et Philippe Ricaud d'avoir accepté d'être rapporteur et pour avoir lu et corrigé cette thèse. Je tiens également à remercier Virginie Marecal et Valery Catoire d'avoir accepté de suivre avec intérêt mes travaux en tant que comité de thèse.

Ensuite, j'aimerais remercier énormément tous mes camarades qui m'ont soutenu durant cette thèse plus particulièrement mon frère d'arme Jean-Luc. Toutes nos discussions et nos délires resteront inoubliables et merci de m'avoir initié et inclus dans le club très selecte qu'est l'ATC et dont je remercie les membres assez spéciaux que sont Gaetan, Vincent, Alexandre, Christophe et André-Jean qui feront de ce club traversé les âges. Je ne doute pas qu'un jour, un poème que dis-je une symphonie non une statue sera construite en l'honneur de ce club très prestigieux. Merci également à tout le personnel du labo et particulièrement au service informatique que sont Yann, Olivier et Brigitte.

Pour finir, un grand merci à tous mes frères de Bron, notamment Islam, Sami, Badis et Sofiene et à tous ceux dont l'espoir et le rêve est d'appartenir à cette famille principalement Hamouda, Tito et Azzedine, je vous dis courage car seuls les élus peuvent y parvenir. Merci également à toi Etienne, mon associé thésard brondillant de Paris. Et enfin le plus grand remerciement revient sans nul doute à mes parents sans qui je ne serais pas là.

Évolution de la colonne totale d'ozone à deux stations tropicales : Observations et Modélisation

Résumé: Alors que les tropiques couvrent une grande partie du globe, peu de données d'observations d'ozone sur le long terme existent dans cette région. En outre, les tropiques sont les régions où la majeure partie de l'ozone stratosphérique est formée. En effet, la région tropicale est le principal point d'entrée des espèces chimiques troposphériques et de la vapeur d'eau dans la stratosphère, redistribuées par la suite aux moyennes latitudes par la circulation de Brewer-Dobson.

Le suivi de l'évolution de la couche d'ozone dans ces régions est basé sur des observations (satellites, au sol et instruments embarqués sur ballons). Ce suivi permet la quantification de la variabilité et les tendances de l'ozone stratosphérique dans le but de comprendre les changements passés et valider les modèles utilisés pour prédire l'évolution de l'ozone dans ces régions. Dans cette optique, le travail de cette thèse se divise en deux parties : tout d'abord, l'analyse et la comparaison entre les données du spectromètre UV-Visible SAOZ et celles de 10 instruments satellitaires aux tropiques au-dessus des stations de Bauru (22.18S, 49.06O) au Brésil et de La Réunion (21.11S, 55.53E) dans l'Océan Indien. Les colonnes d'ozone montrent un biais moyen négatif (-0.84%) entre les colonnes satellites et SAOZ (SAT-SAOZ) à Bauru contrairement à La Réunion (0.75%), où le biais est positif. De plus on observe une augmentation de ce biais à partir de 2004 à Bauru de -1.78%/décennie, moins importante à la Réunion (-0.8%/ décennie). L'étude de cette dérive a montré que cette dernière est corrélée à un soulèvement du profil vertical d'ozone aux latitudes équatoriales caractérisé par une dérive de latitude équivalente de la station de Bauru, non prise en compte dans le calcul de facteur de masse d'air (AMF) utilisé pour convertir les colonnes obliques mesurées par SAOZ en colonnes verticales (TOC).

Par la suite, la capacité de 9 modèles de chimie-climat issus du projet CCMI à reproduire les colonnes observées, ses variations et les forçages externes sur la variabilité a été évaluée en comparant les simulations à celles de SAOZ et de la moyenne des satellites aux deux stations. Les modèles montrent une bonne restitution de la variabilité de la colonne d'ozone avec cependant une surestimation de 3% aux deux stations par rapport aux observations. L'analyse des forçages montre une contribution dominée par la QBO (~40%), suivie de l'ENSO (~20%), de l'activité solaire (~20%), de la dérive de latitude équivalente >10% à Bauru et <10% à La Réunion et plus faible pour les aérosols (<10%) en cohérence avec les observations.

Total column ozone evolution at two tropical stations: Observations and Modelling

Abstract : While the tropics cover a large part of the globe, few long-term ozone observations data exist in this region. In addition, the tropics are the regions where most of the stratospheric ozone is formed. Indeed, the tropical region is the main entry point for tropospheric chemical species and water vapor in the stratosphere, subsequently redistributed at mid-latitudes by the Brewer-Dobson circulation.

Monitoring the evolution of the ozone layer in these regions is based on observations (satellite, ground-based and aircraft instruments). This monitoring allows the quantification of stratospheric ozone variability and trends to understand past changes and validate the models used to predict the ozone evolution in these regions. In this perspective, the work of this thesis is divided into two parts: firstly, the analysis and comparison between the UV-Visible SAOZ spectrometer data and those of 10 satellite instruments in the tropics above the Bauru stations (22.18S, 49.06W) in Brazil and Reunion Island (21.11S, 55.53E) in the Indian Ocean. The ozone columns show a negative average bias (-0.84%) between the satellite columns and SAOZ (SAT-SAOZ) in Bauru unlike Réunion (0.75%), where the bias is positive. Moreover, we observe an increase in this bias from 2004 in Bauru of -1.78% / decade, less important in Reunion (-0.8% / decade). The study of this drift has shown that the latter is correlated with an uplift of the vertical ozone profile at equatorial latitudes characterized by an equivalent latitude drift of the Bauru station, which is not considered in the calculation of the Air Mass Factor (AMF) used to convert the slant column measured by SAOZ into vertical column (TOC).

Subsequently, the capacity of 9 CCMI-derived climate-chemistry models to reproduce the observed columns, its variations and external forcing on variability was evaluated by comparing the simulations with those of SAOZ and the monthly mean satellites at both stations. The models show a good restitution of the variability of the ozone column with however an overestimation of 3% at both stations compared to the observations. The analysis of the forcings shows a contribution dominated by QBO (~ 40%), followed by ENSO (~ 20%), solar activity (~ 20%), equivalent latitude drift > 10% at Bauru and < 10% at Reunion and lower for aerosols (<10%) consistently with observations.

Table des matières

Acronymes	- 16 -
0. Introduction	- 21 -
1. L’ozone stratosphérique aux tropiques	- 29 -
1.1 Structure de l’atmosphère	- 29 -
1.2 Chimie de l’ozone stratosphérique	- 31 -
1.3 Dynamique de l’ozone stratosphérique	- 33 -
1.4 Facteurs contrôlant la variabilité de l’ozone	- 36 -
1.4.1 Oscillation Quasi-Biennale (QBO)	- 36 -
1.4.2 Oscillation sud – El Niño (ENSO).....	- 37 -
1.4.3 Variabilité des aérosols stratosphériques.....	- 38 -
1.4.4 Variabilité solaire	- 39 -
1.5 Objectifs de la thèse	- 40 -
2. Description des données d’observations et des modèles	- 45 -
2.1 SAOZ	- 45 -
2.2 INSTRUMENTS SATELLITAIRES	- 49 -
2.3 MODÈLES	- 49 -
2.3.1 Description d’un CCM	- 49 -
2.3.2 Modèles CCMI.....	- 50 -
2.3.3 Simulation REF C1SD	- 51 -
2.3.4 LMDZ Reprobus	- 53 -
2.3.5 CMAM	- 54 -
2.3.6 UМУKCA-UCAM.....	- 54 -
2.3.7 MRI	- 55 -
2.3.8 EMAC.....	- 55 -
2.3.9 MOCAGE	- 55 -
2.3.10 CHASER-MIROC.....	- 56 -

2.3.11	CNRM-CM5	- 56 -
3.	<i>Méthodes d'analyses</i>	- 59 -
3.1	Traitement des données	- 61 -
3.1.1	Désaisonnalisation.....	- 61 -
3.1.2	Coefficient de corrélation	- 62 -
3.2	Régression linéaire multiple	- 63 -
3.2.1	Transformation de Cochran Orcutt.....	- 68 -
3.2.2	Paramètres indépendants	- 72 -
3.2.2.1	<i>Oscillation Quasi-Biennale (QBO)</i>	- 72 -
3.2.2.2	<i>Oscillation Sud El-Niño (ENSO)</i>	- 74 -
3.2.2.3	<i>Irradiance solaire</i>	- 75 -
3.2.2.4	<i>Aérosols volcaniques</i>	- 77 -
3.2.2.5	<i>Latitude équivalente</i>	- 78 -
3.3	Méthodes des ondelettes	- 79 -
4.	<i>Validation des colonnes totales d'ozones satellitaires par comparaison aux mesures SAOZ issues du réseau NDACC</i>	- 83 -
4.1	Introduction	- 87 -
4.2	Description of instruments and Total Ozone Column data	- 89 -
4.2.1	UV-VISIBLE SAOZ spectrometer	- 89 -
4.2.2	Satellite instruments	- 89 -
4.2.2.1	EP TOMS.....	- 89 -
4.2.2.2	SBUV.....	- 89 -
4.2.2.3	ESA CCI-processed GOME, SCIAMACHY, OMI & GOME 2.....	- 90 -
4.2.2.4	OMI DOAS & OMI TOMS.....	- 91 -
4.2.2.5	IASI	- 91 -
4.2.2.6	OMPS SUOMI NPP.....	- 92 -
4.2.2.7	OMI/MLS TROPOSPHERIC OZONE.....	- 92 -
4.2.3	TOTAL OZONE COLUMN TIMESERIES	- 92 -
4.2.3.1	Total Ozone Column seasonality	- 93 -
4.2.3.2	TOC interannual variability	- 94 -
4.3	SAT-SAOZ biases	- 95 -

4.3.1	SAT-SAOZ time series.....	- 95 -
4.3.2	Mean Bias	- 96 -
4.3.3	Temporal Drift	- 97 -
4.3.4	Seasonality	- 98 -
4.4	Origins of SAT-SAOZ variations	- 99 -
4.4.1	Biases.....	- 99 -
4.4.1.1	Spectral parameter.....	- 99 -
4.4.1.2	Ozone profile sensitivity (Averaging Kernels).....	- 101 -
4.4.1.3	Synthesis	- 102 -
4.4.2	Origins of SAT-SAOZ seasonality	- 102 -
4.4.2.1	SAOZ Air Mass Factor.....	- 103 -
4.4.2.2	Tropospheric ozone	- 104 -
4.4.2.3	Satellites clouds masking.....	- 105 -
4.4.2.4	Synthesis	- 107 -
4.4.3	Origin of the temporal drift.....	- 107 -
4.4.3.1	Ozone profile change in latitude	- 108 -
4.4.3.2	Synthesis	- 110 -
4.5	General conclusions	- 111 -
5.	<i>Étude comparative de la variabilité de la colonne d’ozone entre les données SAOZ/satellites et les modèles CCMI.....</i>	- 113 -
5.1	Introduction.....	- 115 -
5.2	Séries temporelles des données mensuelles de la colonne totale d’ozone.....	- 118 -
5.2.1	Cycle saisonnier et biais	- 121 -
5.2.1.1	Cycle saisonnier	- 121 -
5.2.1.2	Biais moyen par rapport aux observations SAOZ.....	- 122 -
5.2.2	Diagramme de Taylor.....	- 125 -
5.2.2.1	Construction du diagramme.....	- 126 -
5.2.2.2	Diagramme avec SAOZ comme référence	- 127 -
5.2.2.3	Diagramme avec observations satellitaires comme référence	- 130 -
5.3	Variabilité interannuelle : contribution de différents forçages -	132 -
5.3.1	Analyse en ondelettes.....	- 132 -

5.3.1.1	Bauru	- 133 -
5.3.1.2	Réunion.....	- 137 -
5.3.2	Contribution de différents forçages à la variabilité de la colonne d’ozone-	139 -
5.4	Conclusion	- 144 -
6.	<i>Conclusion générale et perspectives.....</i>	- 147 -
7.	<i>Annexes</i>	- 153 -
	<i>Références</i>	- 165 -

Acronymes

ACCMIP : *Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project*
AerChemMIP : *Aerosols and Chemistry Model Intercomparison Project*
AEROCOM : *Aerosol Comparisons between Observations et Models*
AEROCOM2 : *Aerosol Comparisons between Observations and Models*
AMF : *Air Mass Factor*
AMIP II : *Atmospheric Model Intercomparison Project II*
BD : *Brewer-Dobson*
BDM : *Brion, Daumont and Malicet*
BP : *Bass and Paur*
CCD : *Charge-Coupled Devices*
CCI : *Climate Change Initiative*
CCMVal : *Chemistry – Climate Model Validation Activity*
CDAS : *Climate Data Assimilation System*
CERFACS : *Centre Européen de Recherche et de Formation Avancée*
CLA : *Couche Limite Atmosphérique*
CFC : *ChloroFluoCarbures*
CHASER-MIROC : *Chemical Atmospheric general circulation model for Study of atmospheric Environment and Radiative forcing-Model for Interdisciplinary Research on Climate*
CIRA : *Cooperative Institute for Research in the Atmosphere*
CMAM : *Canadian Middle Atmosphere Model*
CMIP : *Coupled Model Intercomparison Project*
CNRM-CM : *Centre National de Recherches Météorologiques–Groupe d'études de l'Atmosphère Météorologique-Chemistry Model*
CTM : *Chemical Transport Model*
DOAS : *Differential Optical Analysis System*
ECMWF : *European Centre for Medium Range Weather Forecasts*
EMAC : *ECHAM/MESSy Atmospheric Chemistry*
ENSO : *El-Niño South Oscillation*
EP-TOMS : *Earth Probe-Total Ozone Mapping Spectrometer*

ERA-Interim : ERA-Interim
ESA : European Spatial Agency
GCM : General Circulation Model
GHG : Greenhouse Gas
GODFIT : GOME-type Direct Fitting
GOES : Geostationary Operational Environmental Satellite
GOME : Global Ozone Monitoring Experiment
GOME 2 : Global Ozone Monitoring Experiment-2
IASI : Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infra-rouge
IR : Infra-Rouge
IGAC : International Global Atmospheric Chemistry
JAMSTEC : Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology
JRA-55 : Japanese 55-year ReAnalysis
LMDz-Reprobus : Laboratoire de Météorologie Dynamique « zoom »
LP : Limb Profiler
LUT : Look-up Table
LT : Local Time
MERRA : Modern Era Retrospective ReAnalysis
METRO : Transport Meridional d'Ozone dans la Basse Stratosphère
MLS : Microwave Limb Sounder
MLR : Multi-Linear Regression
MIMOSA : Modèle Isentrope du transport Méso-échelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection
MOCAGE : Modèle de Chimie Atmosphérique de Grande Échelle
MRI : Meteorological Research Institute
NASA : National Aeronautics and Space Administration
NCAR : National Center for Atmospheric Research
NCEP : National Center for Environmental Prediction
NDACC : Network Detection of Atmospheric Composition Change
NOAA : National Oceanic and Atmospheric Agency
NM : Nadir Mapper
NP : Nadir Profiler
NPP : National Polar Orbiting Partnership
NRLSSI : Naval Research Laboratory Solar Spectral Irradiance

OMI : *Ozone Monitoring Instrument*
OMM : *Organisation Météorologique Mondiale*
OMPS : *Ozone Mapping Profiler Suite*
OSIRIS : *Optical Spectrograph and Infrared Imager System*
PV : *Potential Vorticity*
QBO : *Quasi-Biennial Oscillation*
RACM : *Regional Atmospheric Chemistry Mechanism*
RCP : *Representative Concentration Pathways*
SAD : *Surface Aerosols Density*
SAGE : *Stratospheric Aerosols and Gas Experiment*
SBUV : *Solar Backscatter Ultraviolet*
SCIAMACHY : *Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography*
SG : *Serdyuchenko-Gorshchev*
SPARC : *Stratospheric Processes And their Role in Climate*
SST : *Surface Sea Temperature*
SZA : *Sun Zenithal Angle*
TOC : *Total Column Ozone*
UMUKCA-UCAM : *Unified Model/U.K Chemistry Aerosol Community– U. Cambridge Model*
UV : *Ultra-Violet*
WMO : *World Meteorologic Organisation*

0. Introduction

Les premières études sur la capacité d'absorption de l'ozone à une certaine bande de longueurs d'ondes du rayonnement ultraviolet (UV) solaire ont débuté au dix-neuvième siècle avec Cornu (1879) et Hartley (1881). L'intérêt de l'ozone provient du fait que sa capacité d'absorption du rayonnement solaire affecte directement la structure thermique de l'atmosphère et la quantité de rayonnement UV arrivant aux organismes vivants à la surface terrestre. La réduction de l'ozone entraîne une augmentation du rayonnement UV, qui peut affecter la santé des humains, des animaux et des plantes (Van Der Leun, 1998). Les premières observations de la colonne totale d'ozone ont commencé à partir du vingtième siècle. Dès lors, des mesures systématiques ont été mises en place. Elles ont révélé que les colonnes totales d'ozone dans de nombreuses régions du globe ont diminué à partir des années 1980 mettant en cause l'utilisation de Substances Appauvrissant la couche d'Ozone (SAO ou Ozone Depleting Substances en anglais).

En conséquence, l'appauvrissement de la couche d'ozone est devenu l'un des grands problèmes environnementaux du vingtième siècle (Solomon, 1999). Le suivi de l'évolution de la colonne d'ozone atmosphérique à l'échelle globale est devenu une nécessité et représente un enjeu fondamental. Adopté en 1987, le protocole de Montréal a permis la réglementation de la production et l'utilisation des SAO (chlorofluorocarbones (CFC), halons). Les actions menées dans le cadre du protocole ont permis de commencer à diminuer l'abondance des SAO, rendant possible un retour de la couche d'ozone vers ses niveaux de références de 1980 à partir des années 2060 (Arctique et Antarctique) (WMO, 2014).

Afin d'avoir un meilleur suivi de l'évolution de la couche d'ozone, il est important de comprendre sa dynamique. En effet, la distribution de l'ozone à l'échelle globale est régie par la dynamique de la stratosphère. L'évolution de l'ozone stratosphérique est sujette à la variabilité atmosphérique notamment la partie haute troposphère-basse stratosphère à des échelles de temps variant entre la journée et la décennie. La variabilité saisonnière est facilement identifiable et connue. Par contre, la variabilité forcée est la conséquence de forçage radiatifs externes tels que l'Oscillation Quasi-biennale (QBO) d'environ 26 mois de période, l'oscillation australe El-Niño Southern Oscillation (ENSO) de période variable, l'activité solaire de 11 ans de période, les éruptions volcaniques, les émissions anthropiques ainsi que les changements à grandes échelles du transport (Randel et Thompson, 2011).

Le suivi de l'évolution de l'ozone est basé sur une couverture globale d'observations et de modèles. Les observations ont été fédérées par la mise en place de missions satellitaires et d'instruments au sol. La première série d'évaluations de l'ozone a commencé en 1981 (World Meteorological Organization (WMO), 1982). De nombreux efforts ont été consacrés à l'identification des tendances et à la variabilité de l'ozone dans diverses régions. Le satellite TOMS (*Total Ozone Mapping Spectrometer*) a permis par exemple de mettre en évidence l'extension spatiale du trou d'ozone en Antarctique. Le spectromètre UV-Visible SAOZ (*Système d'Analyse par Observation Zénithale*) a permis d'observer la réduction de l'ozone en Arctique à partir de 1988 (Pommereau et Goutail, 1988). Depuis le rapport de WMO 1988 (WMO, 1990), les tendances de la distribution verticale d'ozone dérivée des observations par télédétection satellitaire et issues de mesures au sol ont été étudiées (Reinsel et al., 1984). Ces différentes mesures sont regroupées au sein de réseaux internationaux tel que le NDACC (*Network for Detection of Atmospheric Composition Change*). En parallèle, la communauté scientifique a mis en œuvre des méthodes numériques dans le but de décrire et comprendre les principales caractéristiques de l'atmosphère et l'interaction de l'ozone avec le climat. Les instituts de recherche ont donc développé des modèles pouvant décrire à la fois la dynamique de l'ozone, sa chimie et ses rétroactions avec le climat. Ces modèles ont pour appellation modèles de chimie-climat (CCM ou *Chemistry Climate Model* en anglais) (Eyring et al., 2007).

Avec la mise en place de nombreux modèles, leur robustesse a dû être évaluée. En 2003, un programme d'inter-comparaison et de validation a été initié dans la cadre du projet SPARC (*Stratospheric Processes And their Role in Climate*) scindé en deux parties sous l'appellation CCMVal-1 et CCMVal-2 (*Chemistry-Climate Model Validation Activity*). CCMVal-1 est dédiée à l'état de l'art de la modélisation passée et future de la couche d'ozone et des phénomènes associés au transport, des effets radiatifs et de la dynamique (Forster et al., 2011). Quant à CCMVal-2, ce dernier est dédié à la prévision de l'évolution future de la couche d'ozone (Eyring et al., 2010), des interactions haute troposphère-basse stratosphère (Gettelman et al., 2010), à la variabilité stratosphérique (Butchart et al., 2011) ainsi qu'à l'inter-comparaison de la variabilité interannuelle des composés chimiques stratosphériques entre les modèles et observations (Poulain et al., 2016). Dans le but d'améliorer les modèles de chimie – climat, et dans la continuité du programme CCMVal et ACCMIP (*Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project*) (Lamarque et al., 2013), les processus chimiques troposphériques ont été implémentés dans les modèles. C'est alors qu'un nouveau programme d'inter-comparaison a vu le jour. Le projet CCMI (*Chemistry-Climate Model Initiative*)

conjoint entre l'IGAC (*International Global Atmospheric Chemistry*) et SPARC, a été créé dans cet objectif (CCMI; Eyring et al., 2013)

Quantifier la variabilité et les tendances de l'ozone stratosphérique à partir d'observations historiques est un élément clé pour comprendre les changements passés et valider ainsi les modèles utilisés pour prédire l'évolution de l'ozone dans le monde. Alors que les tropiques couvrent une grande partie du globe, peu de données fournissent des observations à long terme de l'ozone dans ces régions. De plus, les tropiques sont les régions où la majeure partie de l'ozone stratosphérique est formée. En effet, la région tropicale est le principal point d'entrée des espèces chimiques troposphériques et de la vapeur d'eau dans la stratosphère, redistribuées par la suite aux moyennes latitudes par la circulation de Brewer-Dobson (WMO, 1999).

SAGE I (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*) et SBUV (*Solar Backscatter Ultraviolet*) représentent les premiers instruments dédiés à l'analyse des tendances d'ozone aux tropiques. Les observations de l'ozone stratosphérique tropical montrent une variabilité sur une gamme d'échelle de temps variables, incluant un cycle annuel, des variations interannuelles et des tendances à long terme (Stolarski et al., 2014). Dans la bande tropicale, l'ozone total observé est resté pratiquement inchangé, avec une variabilité interannuelle importante due aux cycles de QBO, El Niño-Southern Oscillation (ENSO), et au cycle solaire de 11 ans. Au cours des dernières années, la colonne d'ozone tropicale a légèrement augmenté, comme prévu au moins en partie, dû au cycle solaire montrant un maximum en 2012–2014. Contrairement aux observations, qui montrent peu de changement à long terme de l'ozone des années 1960-1970 aux années 1990, les simulations CCMVal-2 présentent un déclin de l'ozone (WMO, 2014).

Dans un objectif de suivi de l'évolution de l'ozone dans les régions tropicales, une approche intégrée s'appuyant sur l'analyse conjointe des mesures sol et satellitaires et l'utilisation de modèles numériques est utilisée. Cette approche nécessitera en particulier de vérifier la cohérence des séries de mesures utilisées compte tenu de leurs caractéristiques instrumentales. Les mesures de deux instruments UV-Visible SAOZ installées aux tropiques depuis mi-1990 sont utilisées pour valider les données satellitaires et les simulations numériques.

Le travail de cette thèse s'est déroulé en deux parties :

- Tout d'abord l'analyse et l'inter-comparaison entre les données du spectromètre

UV-Visible SAOZ et celles de 10 traitements satellitaires aux tropiques au-dessus des stations de Bauru au Brésil et de La Réunion dans l'Océan Indien. Des analyses de biais, de tendance, et de variabilité interannuelle à long-terme de l'ozone ont été réalisées en vue de la validation des données d'ozone issues des instruments satellitaires en les comparant aux données du spectromètre UV-Visible SAOZ.

- Ensuite, la capacité de 9 modèles de chimie-climat issus du projet CCMI à reproduire la colonne totale, les variations de l'ozone, et les forçages externes sur la variabilité de l'ozone a été évaluée en comparant leurs données d'ozone à celles de SAOZ et à la moyenne des satellites aux deux stations.

La thèse est composée de cinq chapitres. Le premier chapitre présente les notions importantes sur la structure dynamique de l'atmosphère, la chimie de l'ozone stratosphérique et les principaux forçages radiatifs influant l'ozone aux tropiques. Dans le deuxième chapitre, les données d'observations instrumentales et de modèles de chimie-climat utilisées dans cette thèse sont présentées. Le chapitre 3 est dédié aux méthodes d'analyses statistiques et spectrales utilisées. Ensuite le chapitre 4 présente une étude comparative entre les colonnes totales d'ozone satellitaires et SAOZ. Cette partie est l'objet d'un article en vue d'une soumission à *ACP (Atmospheric Chemistry and Physics)*. Le chapitre 5 présente une étude comparative de la variabilité de la colonne totale d'ozone observée par les observations satellitaires, le SAOZ et les modèles et l'impact de différents forçages externes. La dernière partie est consacrée aux conclusions générales et présente les perspectives.

1. L'ozone stratosphérique aux tropiques

1.1	Structure de l'atmosphère	- 29 -
1.2	Chimie de l'ozone stratosphérique	- 31 -
1.3	Dynamique de l'ozone stratosphérique	- 33 -
1.4	Facteurs contrôlant la variabilité de l'ozone	- 36 -
1.4.1	Oscillation Quasi-Biennale (QBO)	- 36 -
1.4.2	Oscillation sud – El Niño (ENSO).....	- 37 -
1.4.3	Variabilité des aérosols stratosphériques.....	- 38 -
1.4.4	Variabilité solaire.....	- 39 -
1.5	Objectifs de la thèse	- 40 -

1. L'ozone stratosphérique aux tropiques

Ce premier chapitre introduit les notions importantes de la structure verticale de l'atmosphère en fonction de la température, suivi par une description de la chimie et de la dynamique de l'ozone stratosphérique. Finalement, les forçages influant la variabilité de l'ozone stratosphérique seront présentés.

1.1 Structure de l'atmosphère

Les nombreuses mesures effectuées dans l'atmosphère permettent de comprendre la répartition verticale des températures et de sa composition chimique. Diverses tentatives ont été faites pour définir une stratification verticale type de la température de l'atmosphère. Après bien des controverses, la nomenclature la plus généralement admise actuellement fut recommandée par l'Union Internationale de Géodésie et de Géophysique à Helsinki en 1960, puis par le Comité exécutif de l'Organisation Météorologique Mondiale (OMM) en 1962. L'atmosphère est l'enveloppe gazeuse retenue par l'attraction terrestre qui entoure notre planète, elle est composée à 78,09% d'azote, 20,95% d'oxygène, 0,93% d'argon et de divers gaz trace jouant un rôle important dans la chimie stratosphérique et le bilan radiatif terrestre.

Suivant les variations du profil vertical de température, on distingue plusieurs couches au sein de l'atmosphère. Le passage d'une couche à l'autre est défini comme le point de rupture du gradient de température. La figure 1 présente la structure verticale de l'atmosphère issue de l'US Standard Atmosphere 1976 (<http://www.pdas.com/atmos.html>), avec la variation du profil de température (trait rouge), de la densité (trait noir) et de l'ozone (trait vert) en fonction de l'altitude (en km).

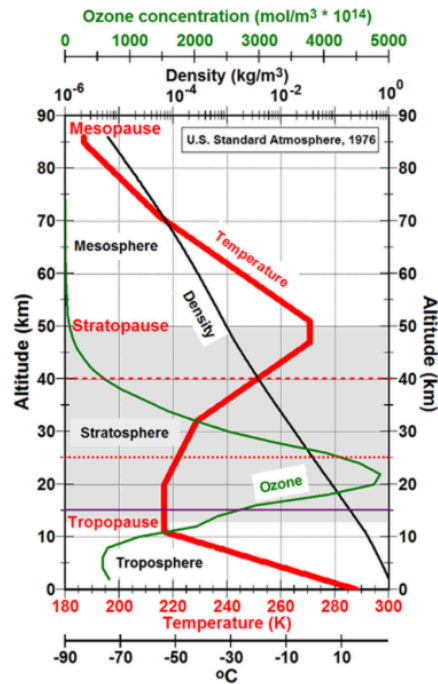


Figure 1. Structure verticale de l'atmosphère : profil vertical de la température moyenne (trait rouge), de la densité (trait noir), et de l'ozone (trait vert) en fonction de l'altitude (en km) (<http://ozonedepletiontheory.info/primary-cause-of-warming.html>).

La troposphère correspond à la partie basse de l'atmosphère (la première couche), s'étendant du sol à environ 11 km (environ 8 km aux pôles et jusqu'à 16 km à l'équateur) et contient environ 90% de la masse de l'atmosphère. La température y décroît en moyenne de 6.5°C/km jusqu'à atteindre la tropopause. Le profil de température résulte d'un équilibre entre le forçage radiatif et la convection. Des phénomènes d'inversions interviennent dans la troposphère, se traduisant par une diminution ou une augmentation de la température suivant l'altitude. La couche limite atmosphérique (CLA) est située dans la partie inférieure de la troposphère juste au-dessus de la surface, d'épaisseur variant de quelques centaines de mètres à 3 km. La CLA définit la partie de l'atmosphère influencée par la surface sur de courtes échelles de temps (typiquement une journée). Elle est le siège de mouvements météorologiques de fortes intensités où il s'opère un mélange des espèces chimiques. Au dessus de la CLA, sommet de la troposphère libre se trouve la tropopause où l'inversion du gradient de température marque le début de la stratosphère.

La stratosphère s'étend jusqu'à 50 km et contient très peu de vapeur d'eau (à cause des températures très basses rencontrées à la tropopause) mais la plupart de l'ozone avec un maximum autour de 20-25 km (figure 1). L'absorption du rayonnement solaire ultraviolet par l'ozone explique que la température de la stratosphère augmente avec l'altitude jusqu'à la

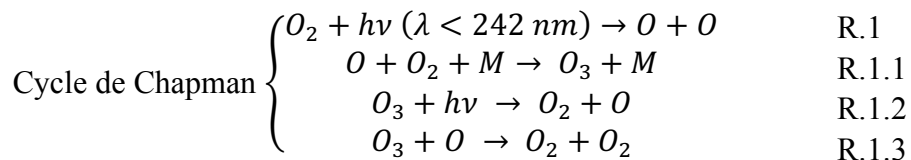
stratopause. Cette structure verticale très stable inhibe fortement les mouvements verticaux, ce qui explique que la stratosphère soit organisée comme son nom l'indique en couches horizontales (stratifiée). La formation des nuages y est très peu favorable (excepté dans la stratosphère polaire durant l'hiver) se traduisant par un temps de résidence de particules très long favorisant un bilan global d'énergie dominé par les processus radiatifs.

La couche située au-dessus de la stratopause est la mésosphère entre 50 et 85 km. La mésosphère voit sa température décroître suivant la verticale fortement liée à l'émission infrarouge de l'oxygène atomique ($O^3(P)$), de l'oxyde d'azote (NO) et du dioxyde de carbone (CO_2). Contrairement à la stratosphère, elle ne contient que peu d'ozone. Tout comme la troposphère et la stratosphère, la limite de la mésosphère est marquée par une stabilité du gradient de température définissant le début de la mésopause et est souvent considérée comme la zone la plus froide de l'atmosphère terrestre, la température peut y atteindre des valeurs aussi basses que 130 K avec une densité d'air très faible (figure 1).

1.2 Chimie de l'ozone stratosphérique

L'ozone stratosphérique joue un rôle capital dans la protection des organismes vivants par sa propriété à absorber le rayonnement ultraviolet solaire de courte longueur d'onde. Composant primordial dans le système climatique, l'ozone stratosphérique assure l'équilibre du bilan radiatif global en absorbant le rayonnement ultraviolet solaire assurant le réchauffement de la stratosphère. La stratosphère est la couche contenant la majeure partie de l'ozone, à hauteur de 90%. Cependant, l'ensemble des molécules d'ozone ramenés sur une colonne verticale à la pression et à la température du niveau de la mer, représenterait environ une colonne de 3 mm d'épaisseur soit 300 Unités Dobson, l'unité universellement utilisée pour la colonne d'ozone. Dans l'atmosphère, la concentration d'ozone est relativement faible dépassant rarement la valeur maximale d'environ $5 \cdot 10^{12}$ molécules.cm⁻³ (figure 1), avec maximum de concentration vers 25 km d'altitude près de l'équateur et 16 km au niveau des pôles. Cette distribution traduit une circulation ascendante vers l'équateur comprimant la couche d'ozone alors que vers les pôles, le phénomène inverse se produit, transportant ainsi les masses d'air riches en ozone vers les hautes latitudes (Son et al., 2010).

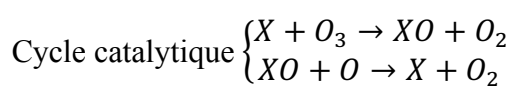
L'ozone stratosphérique a pour principale source la photodissociation de l'oxygène moléculaire par le rayonnement ultraviolet à très courtes longueurs d'onde (~ 250 nm) suivant la réaction R.1. Une fois dissocié, l'oxygène moléculaire produit de l'oxygène atomique qui, par recombinaison, forme de l'ozone (R.1.1). L'ozone est alors photodissocié (R.1.2) ou se recombine avec l'oxygène atomique (R.1.3). Ce cycle, introduit par Chapman en 1930, permet d'expliquer la présence et la destruction de l'ozone dans la stratosphère suivant les réactions :



où M est un troisième corps ($M = N_2$ ou O_2) permettant la stabilisation des produits de réactions.

La réaction R.1.1 du cycle de Chapman est très rapide et elle libère de l'énergie sous forme de chaleur, qui est à l'origine du gradient positif de température dans la stratosphère. De plus, ce cycle permet d'expliquer quantitativement le profil d'ozone observé sur la figure 1. Dans la haute stratosphère, l'ozone diminue en gagnant en altitude par manque de molécule d'oxygène, tandis que dans la basse stratosphère, le rayonnement à courte longueur d'onde pour dissocier l'oxygène diminue en raison de l'absorption par l'ozone dans les couches supérieures.

En considérant seulement les réactions du cycle de Chapman où seuls les composés oxygénés sont pris en compte, l'ozone est surestimé en regard des concentrations observées. Le cycle de Chapman ne parvient pas donc à lui seul à expliquer la diminution de l'ozone observée dans l'atmosphère. D'autres réactions conduisant à l'élimination de l'ozone doivent être considérées. Ces espèces ne sont pas consommées par les cycles de réaction et donc interviennent en tant que catalyseurs dans le cycle de destruction de l'ozone. Les réactions catalytiques de destruction d'ozone font intervenir les composés hydrogénés, les composés azotés dont la découverte fut attribuée à Paul Crutzen (1970) qui lui a valu le Prix Nobel en 1995, les composés bromés et les composés chlorés dans un cycle de réaction présenté de la manière suivante :



le X représente les différents catalyseurs que sont l'hydrogène atomique (H), le radical hydroxyle (OH), le monoxyde d'azote (NO), le chlore (Cl) et le brome (Br).

La chimie complète de la stratosphère est en fait beaucoup plus complexe que le schéma simplifié décrit plus haut. Elle met en particulier en jeu un nombre important d'espèces dont les principales sont celles jouant un rôle de « réservoir » vis-à-vis des radicaux actifs sur l'ozone. On distingue par exemple l'acide nitrique HNO_3 , le pentoxyde d'azote N_2O_5 , l'acide chlorhydrique HCl et le radical ClONO_2 . Au total il faut prendre en compte une cinquantaine de constituants liés par une centaine de réactions si l'on veut décrire d'une façon plus complète la chimie de la stratosphère. Seule la modélisation permet de résoudre numériquement ce système complexe, et de prédire la concentration des espèces mineures et l'évolution à long terme de la couche d'ozone.

1.3 Dynamique de l'ozone stratosphérique

La formation de l'ozone se produit majoritairement dans la stratosphère tropicale par photodissociation comme mentionné dans la section 1.2. Cependant, les observations et les modèles montrent une concentration d'ozone plus importante aux latitudes plus élevées (Steinbrecht et al., 2003; Poulain et al., 2016). La réponse à cette interrogation a été donnée pour la première fois vers le milieu du vingtième siècle par Brewer (1949) et Dobson et al. (1946) qui ont mis en évidence la présence d'une circulation méridienne permettant d'expliquer le déplacement de l'ozone des régions tropicales vers les latitudes moyennes et polaires. Cette circulation est connue sous l'appellation de circulation de Brewer-Dobson, dont un modèle simplifié de trois étapes est représenté par la figure 2 :

- Le soulèvement de masses d'air (flèches blanches) de la troposphère vers la basse et moyenne stratosphère.
- Suivi de leur transport des latitudes tropicales vers les moyennes et hautes latitudes.
- Et enfin de leur descente aux hautes latitudes.

Cependant la circulation de Brewer-Dobson est plus complexe, mettant en jeu à la fois une circulation troposphérique dominée par des mouvements verticaux très rapides et des mouvements horizontaux lents et une circulation stratosphérique dominée par des mouvements verticaux lents avec des mouvements horizontaux très rapides.

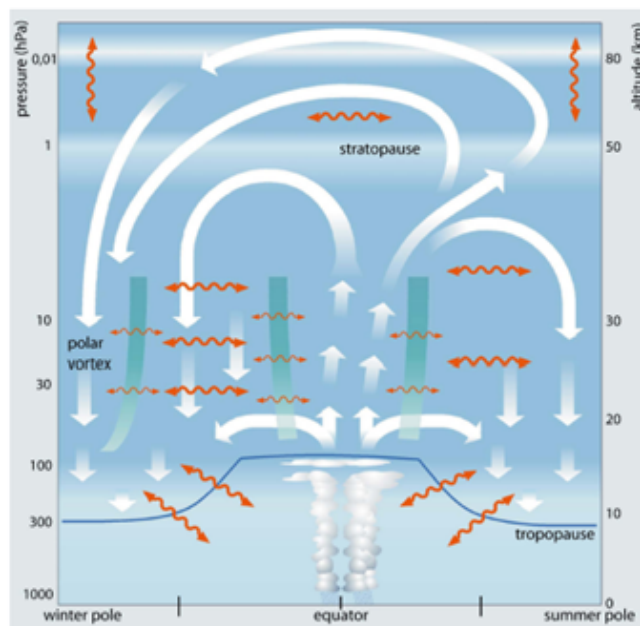


Figure 2. Schéma de la Circulation de Brewer-Dobson. La circulation des masses d'air est représentée par les flèches blanches et le processus de mélange par les flèches ondulées orange. Les barrières de mélange sont représentées par les lignes épaisses vertes. Le processus de mélange et la circulation ont pour origine les ondes atmosphériques dont l'influence varie à différentes échelles de temps (Bönisch et al., 2011).

En région tropicale, les masses d'air soulevées de la troposphère vers la stratosphère sont sèches et appauvries en ozone. L'ascendance tropicale dans la basse stratosphère est lente, de l'ordre de 20 à 30 mètres par jour. La majeure partie des masses d'air atteignant la basse stratosphère n'atteint jamais la haute stratosphère. En effet, une décroissance de la densité de l'air de 90% se produit entre 16 et 32 km avec pour conséquence que la majeure partie de masses d'air atteignant la stratosphère se déplacent vers les latitudes moyennes. Il faut généralement plus de 6 mois pour que l'air à 16 km s'élève jusqu'à 27 km.

La bande tropicale se caractérise par un renversement des trajectoires des masses d'air provoqué par la rencontre entre l'air chaud résultant du chauffage solaire direct et l'air froid issu du refroidissement lors de leur transport vers les hautes latitudes. Ces masses d'air subissent également la force de Coriolis due à la rotation de la Terre ce qui provoquera une déviation vers l'Est (l'Ouest) en considérant un mouvement de l'équateur vers les tropiques (des tropiques vers l'équateur). Ce renversement est connu sous le nom de cellule de Hadley, mis en évidence par George Hadley au 18^e siècle.

La ceinture tropicale vers 30° de latitude dans chaque hémisphère, est une région chaude et sèche souvent désertique due à la subsidence de l'air associée à la branche descendante de la circulation de Hadley. Cependant, la latitude de celle-ci n'est pas constante, variant avec la saison en raison des cycles d'insolation. Des études récentes d'observations satellitaires ont suggéré l'existence d'une tendance à l'élargissement sur le long terme de la ceinture tropicale (Seidel et al., 2007; Birner et al., 2014). La ceinture tropicale est caractérisée par des concentrations plus faibles d'ozone stratosphérique, un taux de radiation solaire plus élevé et une tropopause plus élevée. L'évolution de ces quantités depuis 1979 semble indiquer une expansion des tropiques, à un taux compris entre 0,2° et 2° de latitude par décennie, selon le paramètre analysé (Solomon et al., 2016).

Dans les régions extratropicales, la circulation de Brewer-Dobson transporte les masses d'air stratosphériques de l'équateur vers les pôles. Sur la figure 3, on observe des valeurs plus importantes d'ozone aux altitudes des latitudes extratropicales par rapport aux régions tropicales, ce qui est une conséquence directe de cette circulation.

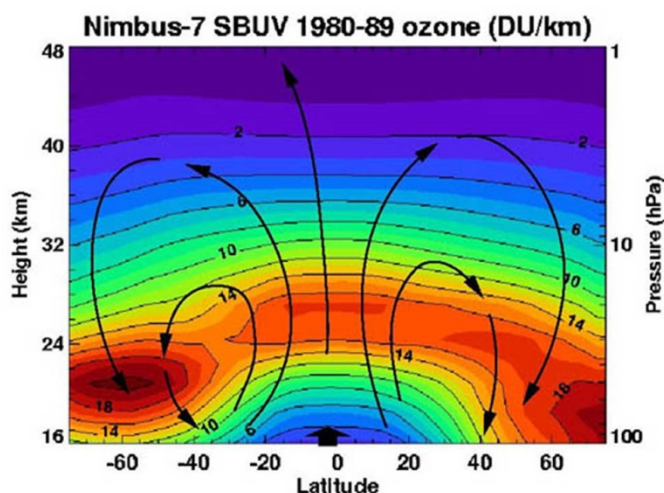


Figure 3. Schéma de la circulation de Brewer-Dobson et de la distribution de l'ozone dans les deux hémisphères en fonction de l'altitude à partir des observations SBUV entre 1980 et 1989. Une certaine symétrie de la distribution d'ozone est observée [<https://www.nasa.gov>].

Une autre raison pour laquelle les quantités d'ozone augmentent dans la basse stratosphère aux latitudes extratropicales est la durée de vie des molécules d'ozone plus longue que dans les régions tropicales. Comme expliqué précédemment, l'ozone est produit par photolyse de l'oxygène moléculaire (produisant deux atomes d'oxygène libres), et il est détruit par des réactions catalytiques (utilisant généralement des atomes d'oxygène libres). Comme il y a peu d'atomes d'oxygène dans la basse stratosphère, conséquence de l'atténuation du rayonnement

UV solaire à basse altitude, la durée de vie de l'ozone est plus longue et la destruction de l'ozone y est moins importante (R.1.1.3). En conséquence, l'ozone peut s'accumuler au fur et à mesure que la circulation de Brewer-Dobson déplace les masses d'air vers les pôles.

1.4 Facteurs contrôlant la variabilité de l'ozone

L'ozone stratosphérique dans la région tropicale est sujet à des oscillations à différentes échelles de temps, s'étendant de la journée à la décennie. Les principales causes de variation sont la QBO, l'ENSO, les éruptions volcaniques et l'activité solaire. Cette partie du chapitre sera dédiée à la description de ses oscillations ainsi qu'à leur impact sur l'ozone stratosphérique.

1.4.1 Oscillation Quasi-Biennale (QBO)

La variabilité de la stratosphère équatoriale (~16-50 km) est dominée par une oscillation influençant la distribution de l'ozone nommée oscillation quasi-biennale (QBO ou *Quasi Biennial Oscillation* en anglais) (Baldwin et al., 2001). Le phénomène de QBO est caractérisé par des bandes alternées de vents d'est et d'ouest, générées à une altitude d'environ 30 km et descendant dans la basse stratosphère à la vitesse d'environ 1 km par mois (figure 4). Les deux régimes de vent se répètent à des intervalles variant de 26 mois en moyenne (Baldwin et al., 2001), d'où le nom de quasi-biennale. Bien que le QBO soit un phénomène tropical, il affecte les flux stratosphériques d'un pôle à l'autre.

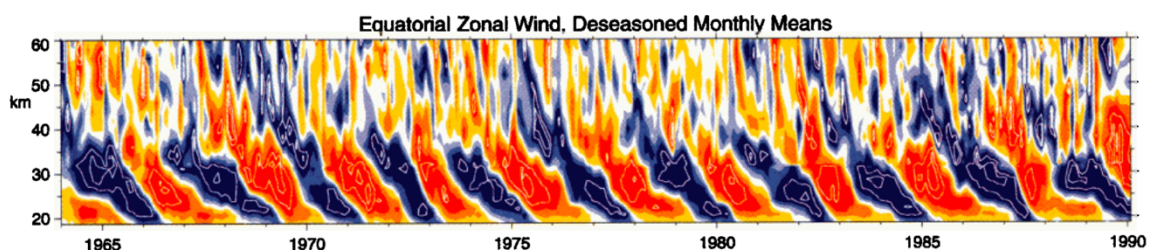


Figure 4. Distribution du vent zonal désaisonnalisé en fonction de l'altitude en moyenne mensuelle observée en région équatoriale entre 1964 et 1990. L'alternance de vents d'Est (bleu) et d'Ouest (rouge) est représenté par la variation des couleurs (Baldwin et al., 2001).

L'impact de la QBO sur l'ozone stratosphérique dans les régions de notre étude (Bauru et Réunion) a été mis en évidence dans des travaux effectués par Poulain et al. (2016). Poulain et al. se sont intéressés à l'évaluation de la variabilité interannuelle de la composition chimique de plusieurs espèces de la stratosphère à l'aide des modèles du projet CCMVal et d'observations

au sol dont celles du spectromètre UV-Visible SAOZ. Ils ont pu ainsi montrer que les variations dans la région tropicale étaient largement dominées par la QBO pour une amplitude de 10 à 20% cohérente avec les estimations de Brunner et al. (2006). De plus l'alternance de phase de la QBO s'accompagne d'anomalies positives et négatives de températures au-dessus de l'équateur entre 30 et 50 hPa affectant directement l'équilibre thermique dans la moyenne et basse stratosphère générant une variabilité saisonnière de la circulation de Brewer-Dobson (Cordero et Nathan, 2000). En effet, une anomalie négative de la température va favoriser le mécanisme d'accélération de la phase ascendante de la circulation de Brewer-Dobson se traduisant par une accélération du transfert des masses d'air des tropiques vers les régions subtropicales et réduisant ainsi les concentrations d'ozone aux tropiques. Le phénomène s'inverse lors d'une anomalie positive (Barsby et Diab, 1995; Cordero et Nathan, 2000).

1.4.2 Oscillation sud – El Niño (ENSO)

L'oscillation australe d'El Niño (ENSO, *El Niño Southern Oscillation* en anglais) est un phénomène intervenant dans le Pacifique tropical caractérisé par des variations de vent et de température à la surface des océans sur des périodes de 24 à 96 mois (Trenberth, 1997). La phase ENSO se traduit par un affaiblissement des vents Alizés dans le Pacifique et donc par un échauffement de la mer sur l'Est du Pacifique dû à une diminution de remontée des eaux profondes du courant de Humbolt avec pour conséquence une augmentation de l'intensité de la convection en Amérique du Sud. Les phases El-Niño (rouge) et La-Niña (bleue) sont représentées dans la figure 5 par l'indice Multi-variable. La figure montre notamment que les phénomènes El-Niño les plus intenses se sont produits en 1997 et dernièrement en 2016. D'autre part les variations de température des eaux de surface (SST : *Sea Surface Temperature* en anglais) engendrent des variations longitudinales de vent vertical appelé circulation de Walker (Trenberth, 1997).

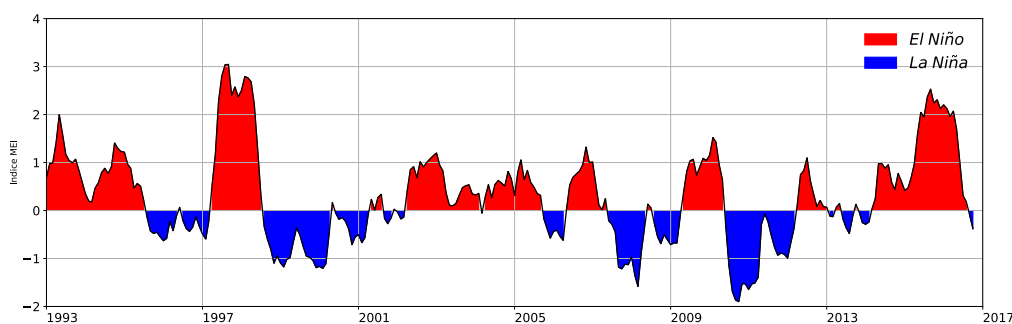


Figure 5. Évolution temporelle de l'indice ENSO 3.4 (MEI : Multivariate ENSO index)

durant les phases El-Niño (rouge) et La-Niña (bleue) au-dessus de la région du pacifique de 1993 à 2016. L'indice 3.4 correspond à la bande longitudinale 170-120°O.

La variation de l'ozone dans la basse stratosphère est directement liée au cycle de l'ENSO (Manatsa and Mukwada, 2017). Zerefos et al. (1992) ont montré que l'ENSO contribue de manière non négligeable à la variabilité interannuelle de l'ozone. Les épisodes El-Niño conduisent à une accélération de la circulation de Hadley générant un transport plus important de l'ozone vers les sub-tropiques se traduisant par une augmentation de l'ozone à l'Ouest du Pacifique et une diminution à l'Est (Randel et Thompson, 2011). Cette conclusion est confirmée par Poulain et al. (2016) qui montrent que l'ENSO explique 5 à 10% de la variabilité de la colonne d'ozone aux tropiques à Bauru et à La Réunion.

1.4.3 Variabilité des aérosols stratosphériques

Les aérosols volcaniques font partie des événements primordiaux influant le bilan radiatif terrestre. Lors d'une éruption volcanique explosive majeure, la charge stratosphérique en aérosols peut considérablement augmenter et peut conduire à une diminution sensible du flux solaire au niveau du sol. D'autre part, dans le cas d'une très forte éruption, les aérosols peuvent avoir un impact sur la chimie stratosphérique et donc sur l'ozone. C'est ainsi que l'éruption majeure du Mont Pinatubo en juin 1991 a injecté une grande quantité de SO₂ jusqu'à 27 km d'altitude dans la stratosphère convertie dans les mois suivant en aérosols liquides d'acide sulfurique conduisant à une diminution sensible de l'ozone (Bekki et al., 1993; Grant, 1996). D'autres éruptions volcaniques moins intenses et plus récentes ont conduit à une modification de la colonne d'ozone (Vernier et al., 2011).

L'augmentation des aérosols stratosphériques va engendrer, d'une part, une augmentation de l'épaisseur optique de l'atmosphère causant un réchauffement de la basse stratosphère tropicale (Solomon et al., 2011), et d'autre part, une diminution de la colonne d'ozone à travers des réactions hétérogènes qui vont convertir les espèces réservoirs halogénés en radicaux halogénés participant à la destruction de l'ozone à travers des cycles catalytiques (destruction de l'ozone par les halogénés contenus dans les CFC, favorisée par la diminution d'oxyde d'azote transformés en acide nitrique) (Muthers et al., 2015). Par exemple, Telford et al. (2009) ont montré par l'utilisation de modèles et d'observations que l'impact de l'éruption

du Pinatubo a eu pour conséquence une diminution de la colonne d'ozone tropicale de l'ordre de 2%.

1.4.4 Variabilité solaire

La variabilité du soleil est corrélée au nombre d'éruptions solaires observées à sa surface. De nombreuses méthodes ont été adoptées pour mesurer son cycle : le flux radioélectrique solaire à 10.7 cm, le Mg II du flux solaire du spectre UV, le calcul du nombre d'éruptions ou de tâches (*sunspots* en anglais). La méthode la plus communément utilisée est la mesure du flux radioélectrique à 10.7 cm (2800 MHz). Ces méthodes ont permis d'identifier un cycle solaire de période de 11 ans (Fioletov, 2009). Les observations satellitaires ont permis d'évaluer la variation de la luminosité du soleil de l'ordre 0.1% au cours d'un cycle de 11 ans, ce qui peut être observé sur la figure 6. Cependant, cette variation aussi infime soit-elle peut avoir un effet significatif sur le climat terrestre par le biais de l'ozone stratosphérique, notamment aux tropiques, où le flux solaire est le plus important (Monteith, 1972). Étant donné que les variations de rayonnement solaire les plus importants (jusqu'à 100%) se produisent dans la partie UV du spectre solaire, les variations du flux solaire peuvent influencer la production et la destruction de l'ozone stratosphérique. En raison de ses propriétés radiatives, ce changement d'ozone modifie ensuite les températures stratosphériques qui, à leur tour, modifient la propagation ascendante et la rupture des ondes planétaires qui dirigent la circulation Brewer-Dobson. Les variations de l'ozone dans la basse stratosphère tropicale peuvent également affecter le gradient de température de l'équateur et donc influencer les circulations de cellules troposphériques (Walker et Hadley) (Dhomse et al., 2011).

L'influence du cycle solaire sur l'ozone a très largement été étudiée par les observations satellitaires et les modèles, notamment aux tropiques, où le rayonnement UV est intense toute l'année et ses fluctuations peuvent fortement influencer la photochimie de l'ozone (Haigh, 1994). Par exemple, Poulain et al. (2016) ont montré que le forçage solaire explique une part importante de la variabilité de l'ozone dans les stations tropicales, autour de 15% en moyenne, atteignant 30% à la Réunion.

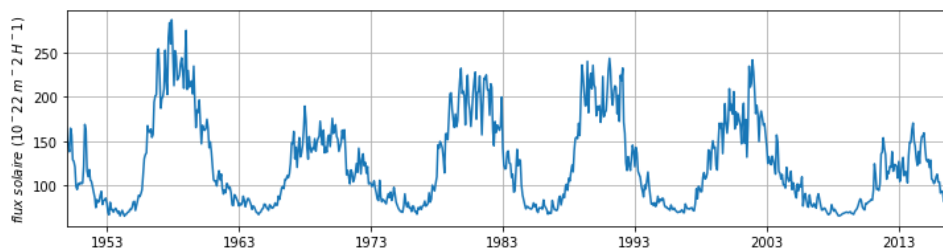


Figure 6. Variation de la densité du flux solaire à 10.7cm (2800 MHz) au cours de la période 1950-2016 [www.swpc.noaa.gov/SolarCycle].

1.5 Objectifs de la thèse

L'objectif de cette thèse est la vérification et la validation de bases de données par l'analyse de variations temporelles, de la variabilité interannuelle et de tendances à long-terme de l'ozone stratosphérique aux tropiques en s'appuyant sur des mesures directes et des modèles de simulation atmosphérique. Dans le cadre de cette thèse, les longues séries temporelles d'observations satellitaires, modèles et de mesures au sol ont été analysées de 1993 à 2016 aux deux stations tropicales, Bauru (22°S, 49°O) et La Réunion (21°S, 55°E).

Le premier chapitre de résultat (chapitre 4) a pour objectif l'évaluation et la validation de colonnes totales d'ozone des instruments satellitaires par comparaison aux mesures au sol de l'instrument SAOZ associés au NDACC (*Network Detection of Atmospheric Composition Change*), réseau mondial de surveillance des changements de composition de l'atmosphère. L'analyse s'est orientée sur la variabilité du biais, le cycle saisonnier et les tendances observées de la colonne totale d'ozone entre satellites et SAOZ. Les différences instrumentales et les mécanismes atmosphériques ont été analysés et diagnostiqués pour valider les mesures d'ozone des satellites.

Le second chapitre de résultat (chapitre 5), s'intéresse à l'évaluation et la capacité des modèles à reproduire les variations temporelles et la variabilité interannuelle induites par les forçages externes aux tropiques. Pour cette étude, les simulations de 9 modèles de chimie-climat sont comparées aux mesures satellitaires et SAOZ. Étant donné que les satellites opèrent sur des périodes différents, et pour avoir une homogénéité des mesures satellitaires, la comparaison entre les modèles et les satellites a été réalisée en moyennant tous les satellites. L'étude est principalement orientée sur l'évaluation de la réponse des modèles, des mesures satellitaires et

Chapitre 1 : L'ozone stratosphérique aux tropiques

des mesures SAOZ, aux forçages externes et ainsi quantifier le lien entre les forçages externes et leurs réponses.

2. Description des données d'observations et des modèles

2.1	SAOZ	- 45 -
2.2	INSTRUMENTS SATELLITAIRES	- 49 -
2.3	MODÈLES	- 49 -
2.3.1	Description d'un CCM	- 49 -
2.3.2	Modèles CCMI.....	- 50 -
2.3.3	Simulation REF C1SD	- 51 -
2.3.4	LMDZ Reprobus	- 53 -
2.3.5	CMAM	- 54 -
2.3.6	UMUKCA-UCAM.....	- 54 -
2.3.7	MRI	- 55 -
2.3.8	EMAC.....	- 55 -
2.3.9	MOCAGE	- 55 -
2.3.10	CHASER-MIROC.....	- 56 -
2.3.11	CNRM-CM5	- 56 -

2. Description des données d'observations et des modèles

Ce chapitre décrit les observations et les modèles utilisés dans cette thèse pour l'analyse des colonnes totales d'ozone aux tropiques. La première section présente le spectromètre UV-visible SAOZ (*Système d'Analyse par Observation Zénithale*) et les différents instruments satellitaires. Dans la seconde section, la définition de modèle de chimie-climat est présentée ainsi que le projet CCMI (*Chemistry-Climate Model Initiative*). Les modèles utilisés dans l'analyse de la variabilité de l'ozone stratosphérique sont décrits ainsi que les différents scénarios utilisés.

2.1 SAOZ

Le SAOZ (*Système d'Analyse par Observations Zénithale*) est un spectromètre UV-Visible développé en 1988 à la suite de la découverte du trou d'ozone en Antarctique en 1985 (Farman et al., 1985). Il fait partie du réseau international NDACC (*Network for the Detection of Atmospheric Composition Change*), opérationnel depuis 1991 et est actuellement constitué de 16 instruments SAOZ repartis sur le globe. Le SAOZ mesure l'absorption par l'atmosphère de la lumière solaire diffusée au zénith durant le crépuscule. La méthode DOAS (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*) (Platt et Stutz, 2008) est utilisée pour calculer la colonne d'O₃ et de NO₂ depuis le sol, et par tous les temps (Pommereau et Goutail, 1988).

La géométrie de la mesure de la lumière solaire diffusée au zénith est présenté sur la figure 2.1.1. :

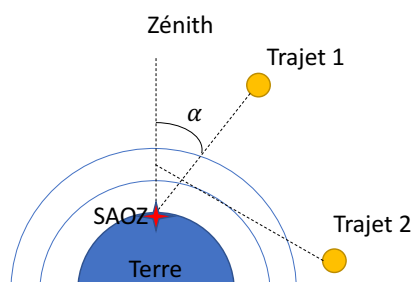


Figure 2.1.1. Principe d'observation du SAOZ où α est l'angle zénithal, les trajets 1 et 2 correspondent aux distances zénithales avec un faible et un grand α .

L'angle zénithal α correspond à l'angle compris entre le zénith et les rayons solaires. Lorsque α est faible (trajet 1), les rayons solaires traversent l'atmosphère obliquement et sont principalement diffusés près du sol. Un facteur multiplicatif $1/\cos(\alpha)$ est assigné au trajet oblique par rapport à un trajet zénithal (lorsque le soleil est au zénith et donc $\alpha = 0$). Lorsque α est important (trajet 2), au crépuscule, les rayons solaires traversent une grande épaisseur atmosphérique, passant par un minimum d'altitude appelé altitude du point tangent. L'atténuation des rayons solaires est d'autant plus importante que la longueur d'onde est courte (diffusion Rayleigh = $1/\lambda^4$) et que l'altitude du point tangent est faible. Les mesures effectuées durant le lever et le coucher du soleil favorisent la mesure dans la stratosphère là où le parcours optique est de l'ordre de 200 km (~20 fois le parcours optique dans la troposphère), ce qui accentue la sensibilité du SAOZ à la stratosphère et par tous les temps.

Dans la spectrométrie UV-Visible, les espèces minoritaires sont quantifiées en comparant le spectre de radiance obtenu à un grand angle zénithal solaire (SZA) à un spectre de référence peu atténué par la stratosphère mesurée à un faible SZA. Le spectre de référence est mesuré vers 45° SZA. Afin de minimiser les effets des nuages et donc d'obtenir un spectre de référence bruité par la diffusion multiple, le choix du spectre de référence se fait par temps clair. Le spectre mesuré est recalé sur le spectre de référence en utilisant 15 raies solaires de Fraunhofer dans le domaine spectral de la mesure dont les positions en longueur d'onde sont connues comme montré en figure 2.1.2.

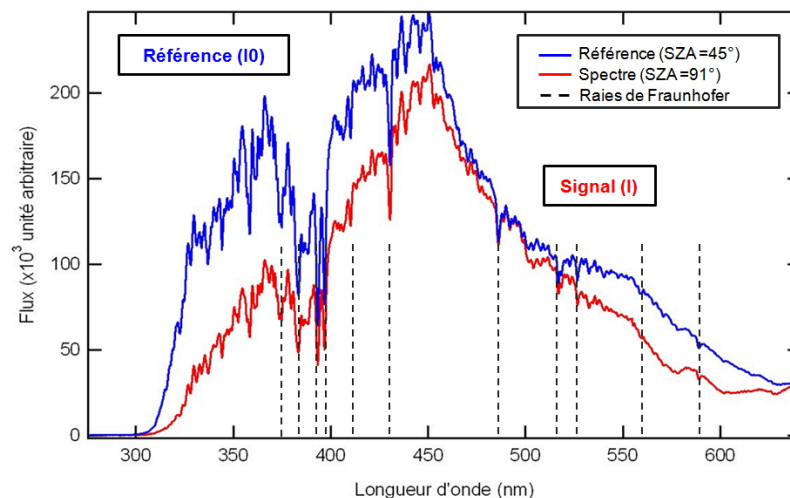


Figure 2.1.2. Spectre de référence du SAOZ et ajustement par rapport aux principales raies de Fraunhofer dans le visible

L'identification et la quantification des concentrations des espèces s'établissent suivant la loi de Beer Lambert :

$$I = I_0 \cdot e^{-\tau} \rightarrow \tau = -\ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \rightarrow \tau = \sigma \cdot N \cdot L$$

où I est le spectre observé, I_0 le spectre de référence, τ l'épaisseur optique d'un absorbant dans l'atmosphère (prenant en compte la diffusion Rayleigh et Mie) à une longueur d'onde donnée, σ la section efficace de l'absorbant et N le nombre de molécules suivant la ligne de visée L .

Les concentrations mesurées sont ensuite obtenues par corrélation du spectre de référence aux sections efficaces d'absorption des divers constituants par la méthode des moindres carrés. Cette méthode s'effectue sur chaque constituant sur des bandes étroites en longueur d'onde qui présentent des signatures significatives. La figure 2.1.3 présente les signatures des différents constituants.

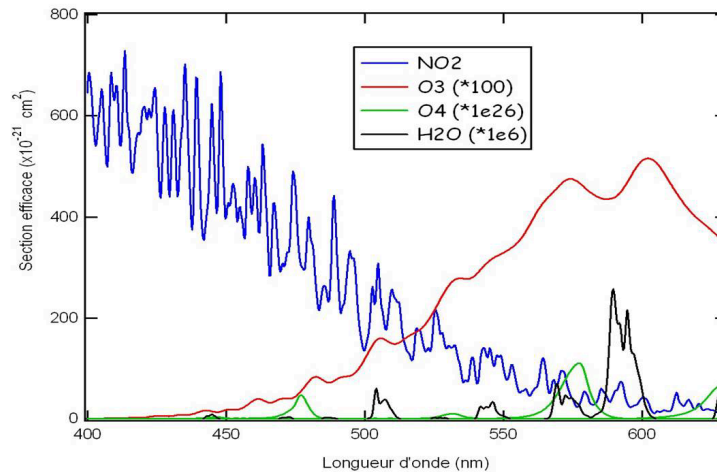


Figure 2.1.3. Signature des différents constituants mesurés par le SAOZ

Dans le but d'éliminer les signatures spectrales à large bande qui pourraient apparaître, le rapport du spectre observé, c'est à dire l'épaisseur optique est normalisée dans le calcul de corrélation. L'utilisation d'une méthode itérative est utilisée en amont du calcul de corrélation pour la mesure de chaque constituant pour minimiser l'interférence entre les bandes d'absorption. Cette méthode consiste à filtrer le signal et la section efficace par l'utilisation d'un filtre passe haut permettant la suppression des signaux à bandes plus large que les

signatures de l'absorbant recherché, et un filtre passe-bas permettant l'élimination des signatures à plus hautes fréquences. Le résultat du calcul de corrélation fournit ensuite la quantité observée de chaque constituant le long de la ligne de visée moins la quantité obtenue dans le spectre de référence, c'est à dire la colonne oblique du constituant.

La colonne oblique de chaque constituant minoritaire obtenue est ensuite convertie en colonne verticale à l'aide d'un facteur de masse d'air (Air Mass Factor en anglais : AMF) suivant la formule :

$$Nv = \frac{Ns + RDC}{AMF}$$

Avec : Nv : colonne verticale (SAOZ VCD)

Ns : colonne oblique (SAOZ SCD)

RDC : quantité résiduelle dans le spectre de référence

AMF : Air Mass Factor

Depuis 2010, le calcul de l'AMF d'O₃ est basé sur une climatologie (Hendrick et al., 2011) dans le cadre d'une homogénéisation des mesures d'ozone total produites par les spectromètres UV-Visible du réseau NDACC. Le nouvel AMF O₃ est basé sur une climatologie mensuelle de profils moyens zonaux d'ozone et de température issues de TOMSv8 (Wellemeier et al., 2004). Cette climatologie comprend des profils entre 90°S et 90°N de latitude tous les 10°, couvrant une altitude de 0 à 60 km, pour des colonnes d'ozone comprises entre 225 à 325 DU dans les régions tropicales avec un pas de 50 DU, intégrés dans des look-up tables (LUTs). La climatologie TOMSv8 est issue de la combinaison de données de profil d'ozone de SAGEII (*Stratospheric Aerosols and Gas Experiment II*), MLS (*Microwave Limb Sounder*) et de sondes d'ozone. Les LUTs de l'AMF d'O₃ développées au Belgian Institute for Space Aeronomy (*BIRA-IASB*) sont calculées à partir du modèle de transfert radiatif UVSPEC/DISORT (Mayer et Kylling, 2005), comprenant un traitement de diffusion multiple et un albédo de surface compris entre 0 et 1 suivant les surfaces considérées. Un profil moyen représentant l'extinction des aérosols, construit à partir du modèle d'aérosol de Shettle (Shettle, 1989) est également utilisé dans le modèle UVSPEC/DISORT. Les paramètres nécessaires au calcul des LUTs sont la latitude, le jour de l'année, la colonne d'ozone, la longueur d'onde, le SZA, l'albédo de surface et l'altitude de la station considérée. Le calcul de la colonne totale d'ozone se fait ensuite par interpolation dont la routine est accessible à l'adresse suivante : [- 48 -](http://uv-</p></div><div data-bbox=)

vis.aeronomie.be/groundbased. Les données consolidées SAOZ de toutes les stations sont accessibles sur le site http://saoz.obs.uvsq.fr/SAOZ_consol_v3.html. L'ozone est mesuré dans les bandes visibles de Chappuis sur une bande de longueur d'onde de 100 nm centrée à 500 nm prenant en compte les signatures spectrales d'O₃, NO₂, H₂O, O₄, et l'effet Ring (Grainger et Ring, 1962) dont l'origine est la diffusion Raman non élastique. Afin de minimiser l'interférence entre les bandes d'absorption, des filtres sont utilisés. Les sections efficaces d'ozone utilisées dans cette étude sont issues de Bogumil (Bogumil et al., 2003).

2.2 INSTRUMENTS SATELLITAIRES

Les colonnes d'ozones issues des observations satellitaires analysées et utilisées dans cette thèse sont décrites dans la section 4.2.

2.3 MODÈLES

Le « trou » dans la couche d'ozone stratosphérique identifié vers la fin des années 80 (Farman et al., 1985) a montré l'impact de l'action à long terme de composés chimique halogénés dans l'atmosphère. Dès lors, il est devenu primordial de s'intéresser à l'évolution future de l'ozone et des concentrations atmosphériques des gaz à effet de serre. Ainsi, le couplage de modèles de chimie atmosphérique et de climat a donné naissance à une nouvelle génération de modèles, dénommée modèles de Chimie-Climat (CCM, *Chemistry-Climate Model* en anglais).

2.3.1 Description d'un CCM

Durant des décennies, l'approche permettant la modélisation la plus représentative de traceurs à des conditions atmosphériques d'une période de temps donnée était réalisée soit par les modèles de circulation générale (*General Circulation Model* : GCM), soit par les modèles de chimie – transport (*Chemical Transport Model* : CTM). Ces modèles numériques se concentrent soit sur la simulation dynamique atmosphérique (GCM) soit sur les interactions et le flux de plusieurs espèces chimiques (CTM).

Concernant le GCM, celui-ci simule la dynamique du climat à travers les équations de conservation du moment et de l'énergie en calculant les champs de température et de vents pour la partie dynamique mais utilise une climatologie pour les calculs de transferts radiatifs. Cela

implique une absence de l'influence de la dynamique sur les champs de concentrations des espèces chimiques sur le plan radiatif. Donc par définition le GCM ne simule pas la chimie atmosphérique.

Contrairement, un CTM simule les processus de transport contraints par des analyses météorologiques, chimie, émissions et déposition pour décrire la variabilité en espace et en temps de la chimie atmosphérique. Ceci est fait en résolvant les équations de continuité de la conservation de la masse et permet le calcul de la composition chimique, des champs de température et de vent donnés. Le couplage d'origine chimique entre les espèces radiatives et l'effet du transport sur la composition chimique est pris en compte par le modèle mais néglige l'effet des variations de composition chimique sur la dynamique et donc par définition le CTM ne simule pas la dynamique atmosphérique. Cependant, il est possible de générer et simuler l'impact d'une variation de la composition chimique sur le climat à partir du concept de forçage radiatif.

Quant au modèle de chimie – climat (CCM), il est le résultat d'un couplage d'un GCM et d'un CTM (Austin et Butchart, 2003; Eyring et al., 2006). Dans un CCM, contrairement aux GCM qui utilisent des climatologies des gaz radiatifs, les champs de concentrations des espèces radiatives sont simulés par le modèle lui-même et sont utilisés dans le calcul du taux de chauffage et de refroidissement. Par conséquent, une variation de la concentration de ses espèces influe directement sur le taux de chauffage net et affecte directement les variables qui décrivent la dynamique atmosphérique tels que le vent, la température et la pression. Un CCM est donc un modèle de type GCM dans lequel les espèces chimiques réactives et réactions associées sont incluses. Le CCM permet donc un véritable couplage entre la chimie, la dynamique et le rayonnement.

2.3.2 Modèles CCMI

La chimie et la dynamique de l'atmosphère ont évolué dans les modèles climatiques. Parti de GCM pour les modèles de circulation générale et de CTM pour ceux de chimie-transport, le modèle de chimie-climat (CCM) s'est vite imposé comme étant le modèle de référence dans le couplage chimie-dynamique. Le CCM contribue de manière essentielle à la compréhension et la prévision de l'ozone et de ses interactions avec le climat.

En 2003, le projet SPARC (*Stratospheric Processes And their Role in Climate*) a mis en place un programme d'inter-comparaison et de validation des modèles de chimie – climat nommé CCMVal (*Chemistry – Climate Model Validation Activity*) (Eyring et al., 2010). Le programme

est centré sur les processus liés à la destruction et l'évolution passée et future de l'ozone stratosphérique (WMO, 2007; 2010; 2014). La première partie de ce programme nommée CCMVal-1, est consacrée à l'état de l'art de la modélisation passée et future de la couche d'ozone et des phénomènes associés au transport, des effets radiatifs et de la dynamique (Eyring et al., 2006; Eyring et al., 2007; Butchart et al., 2010; Forster et al., 2011). Quant à la deuxième partie, CCMVal-2, celle-ci est consacrée à l'évolution future de la couche d'ozone (Austin et al., 2010; Eyring et al., 2010), les interactions haute troposphère/basse stratosphère (Gettelman et al., 2010) et à la variabilité stratosphérique (Butchart et al., 2011). Dans le but d'améliorer les modèles de chimie – climat, et dans la continuité du programme CCMVal et ACCMIP (*Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project*) (Lamarque et al., 2013), les processus de chimie troposphériques ont été implémentés dans les modèles. C'est alors qu'un nouveau programme d'inter-comparaison a vu le jour. Le projet Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) conjoint entre l'IGAC (*International Global Atmospheric Chemistry*) et SPARC, a été créé dans cet objectif (CCMI; Eyring et al., 2013). Pas moins de 20 modèles ont participé à ce programme, la liste et la description de ces modèles sont décrites par Morgenstern (2017). Semblable au programme CCMVal, le projet CCMI est constitué de deux phases, l'une intitulée CCMI-1 s'appuyant sur CCMVal et ACCMIP, centrée sur l'inter-comparaison des modèles combinant océan-atmosphère (troposphère + stratosphère). La deuxième étape à venir est CCMI-2, où des simulations seront menées conjointement avec le projet *Aerosol Comparisons between Observations et Models* (AEROCOM) et contribueront au 6^{ème} projet CMIP6 (*Coupled Model Intercomparison Project*) sous le projet AerChemMIP (*Aerosols and Chemistry Model Intercomparison Project*).

2.3.3 Simulation REF C1SD

Le but des simulations CCMI est d'obtenir la science la plus exacte possible dans le domaine atmosphérique. Les simulations imposées sont séparées en deux types : les simulations de référence (REF) et de sensibilité (SEN). Les simulations de référence sont subdivisées en trois : REF C1, REF C1SD et REF C2, celles de sensibilité en cinq : SEN C1-Emis, SEN C1SD-Emis, SEN C1-fEmis, SEN C1SD-fEmis et SEN C1-SSD. Dans cette thèse, nous ne nous intéresserons qu'aux modèles issus de la simulation REF et plus particulièrement REF-C1SD.

Le REF C1SD est une simulation analogue au REF C1 qui est-elle même l'analogie de la simulation REF B1 du programme CCMVAL-2. Contrairement au REF B1 où la simulation s'étendait sur la période 1960 – 2006, le REF C1 correspond à une simulation couvrant la période 1960 – 2010 (et jusqu'à 2013 pour certains modèles). La particularité du REF C1SD, est que les modèles sont « nudgés » ('SD' pour Specified Dynamics). Le « nudging » est un terme pour signifier que les résultats d'un modèle sont poussés vers les résultats issus d'observations (mesures de vent, de température, de pression, ...). L'idée a été d'ajouter dans les équations des modèles de la simulation REF C1 un terme de rappel entre les observations et les quantités correspondantes venant des calculs des modèles, permettant ainsi de satisfaire un compromis entre le modèle et les observations. Cette simulation peut donc être directement comparée aux observations et permettra de quantifier à quel point les modèles peuvent reproduire les comportements passés en termes de climatologie, tendance et variabilité interannuelle de l'ozone troposphérique et stratosphérique (ainsi que d'autres espèces) et comprendre ainsi les interactions de chimie-climat et les processus qui les régissent. Une discontinuité des données de réanalyse météorologique est apparue vers 1979 qui a rendu l'utilisation de ces données problématique et donc ne permet la simulation qu'à partir de 1980. Dans l'objectif d'étudier la variabilité de l'ozone des modèles à reproduire une bonne estimation de l'état de l'atmosphère future en réponse à une augmentation des gaz à effet de serre (GHG), le scénario de Meinshausen (2011) basé sur le scénario A1 a été pris en compte de 1980 à 2005 suivi du RCP 8.5 (*Representative Concentration Pathways*) basé sur le scénario A2r (Riahi et al., 2011) jusqu'à 2010 (2013 pour certains modèles). Le scénario de Meinshausen est basé sur une homogénéisation des valeurs des GHG d'un ensemble de modèles d'un scénario donné. Le scénario A1 prend en compte la réduction des émissions de chlorofluorocarbone et de halon suite au protocole de Montréal (WMO, 2011). Le scénario RCP 8.5 combine les hypothèses d'une forte croissance de la population et d'une croissance lente de revenu avec un taux modeste de changement technologique conduisant à long terme à une forte demande d'énergie et donc à une augmentation des GHG en l'absence de politique de changement climatique. Les émissions naturelles biogéniques et de NO_x formées par rayonnement sont calculées par le modèle lui-même. Les émissions anthropiques et de biocarburants sont issues des données MACCity (MACC/CityZEN EU) (Granier et al., 2011). Les émissions de combustion de biomasse sont fournies par AEROCOM2 (*Aerosol Comparisons between Observations and Models*), basées sur les émissions d'ACCMIP (Lamarque et al., 2010). Les températures de surface de la mer (*Sea Surface Temperature* en anglais) et la concentration de glace de mer sont imposées par HasISST1 (Rayner et al., 2003).

Concernant l'oscillation quasi-biennale (*Quasi-Biennial Oscillation en anglais*), les modèles ne la générant pas se voient imposer une QBO en forçant les champs de vents zonaux à l'équateur. Le « nudging » des CCMs impose une continuité des données de réanalyse des champs météorologiques, les systèmes de réanalyses utilisés sont ceux d'ERA Interim, NCEP/NCAR (*National Center for Environmental Prediction/ National Center for Atmospheric Research*), MERRA (*Modern Era Retrospective ReAnalysis*), CIRA (*Cooperative Institute for Research in the Atmosphere*) et JRA-55 (*Japanese 55-year ReAnalysis*). L'activité solaire est similaire à celle utilisée dans CCMVal et CMIP5, celle-ci étant définie comme l'irradiance spectrale solaire résolu du model NRLSSI (*Naval Research Laboratory Solar Spectral Irradiance*) puis reconstruite à partir d'indicateurs solaire selon la méthode de Lean et al. (2005). Les densités de surface des aérosols (SAD) sont prises en compte dans les calculs de chimie hétérogène. Les SAD créées pour cette simulation montrent une meilleure cohérence dans la distribution que celles utilisées dans CCMVal-2. D'autre part, les effets radiatifs des aérosols conduisant à un réchauffement de la stratosphère à la suite des éruptions volcaniques ont été implantés dans les modèles à partir des observations issues de la version 6 de l'algorithme de SAGE II contrairement à CCMVal-2 où le traitement était généré avec la version 5. Les modèles ne simulant pas les aérosols troposphériques de manière interactive nécessitent une climatologie variant de manière temporelle, laquelle est fournie de manière décennale par Lamarque et al. (2010).

Les modèles utilisés dans cette thèse sont présentés ici.

2.3.4 LMDZ Reprobis

Le modèle LMDz-reprobis (*Laboratoire de Météorologie Dynamique « zoom »*) est un CCM couplé, formé par le couplage du modèle de circulation générale LMDZ5 (Hourdin et al., 2013) et du module de chimie atmosphérique REPROBUS (Lefèvre et al., 1998; Marchand et al., 2012). Le modèle a été développé au LMD (*Laboratoire de Météorologie Dynamique*). La partie dynamique est basée sur la méthode des différences finies des équations primitives de la météorologie. La partie chimie calcule l'évolution chimique de 55 espèces atmosphériques comprenant une description complète de la chimie stratosphérique. La chimie troposphérique est quant à elle gérée par le CTM TOMCAT (Savage et al., 2004). Le modèle LMDz-reprobis utilisé pour CCMVal-2 se constituait de 50 niveaux et d'une résolution de $2,5^\circ$ latitude \times $3,75^\circ$ de longitude avec une altitude maximale à environ 65 km. Concernant le couplage océan-

atmosphère, le modèle est combiné au modèle NEMO. Les simulations CCM1-1 REF C1SD ont été réalisées avec la version CMIP5 (LMDz-REPROBUS-CM5) à 31 niveaux et une résolution de $2,5^\circ$ latitude \times $3,75^\circ$ de longitude avec une hauteur maximale d'environ 70 km (Dufresne et al., 2013). Dans le futur, les mêmes simulations CCM1-1 seront relancées avec la version CM6 possédant 79 niveaux et une résolution de $1,25^\circ$ latitude \times $2,5^\circ$ longitude avec une hauteur d'altitude maximale d'environ 80 km.

2.3.5 CMAM

Le CMAM (*Canadian Middle Atmosphere Model*) est un GCM du « *Canadian Centre for Climate Modelling and Analysis* » (CCCma) (de Grandpre et al., 2000). Par rapport à la version utilisée pour CCMVal-2, le CMAM utilisé pour les simulations CCM1-1 calcule la chimie dans toute la troposphère, bien que le seul hydrocarbure considéré soit le méthane. Pour les simulations CCM1-1, les SSTs et les champs de glace de mer ont été spécifiés là où celui-ci a été couplé à un modèle océanique pour CCMVal-2. La résolution horizontale est passée de T31 à T47 correspondant à un passage de $3.75^\circ(\text{lat.}) \times 3.75^\circ(\text{long.})$ à $2.5^\circ(\text{lat.}) \times 2.5^\circ(\text{long.})$. Pour CCMVal-2, une vitesse de dépôt sec constante a été utilisée pour certaines espèces, alors que pour CCM1-1, celle-ci est calculée par une approche de type « big-leaf » permettant une meilleure prise en compte de la variation spatiale des espèces. De plus, une correction de la climatologie nuageuse est apportée suivant l'approche de Chang et al. (1987).

2.3.6 UMOKCA-UCAM

Le modèle UMOKCA-UCAM (*Unified Model/U.K Chemistry Aerosol Community- U. Cambridge Model*) est un CCM à atmosphère uniquement, basé sur le modèle HadGEM3. La chimie est basée sur un schéma similaire de celui utilisé dans CCMVal-2 (Bednarz et al., 2016), mais avec une amélioration sur le traitement des gaz sources d'halogène (les gaz sont différenciés les uns des autres). Par rapport au modèle CCMVal-2, des améliorations sur la physique de l'atmosphère ont été implantées malgré une réduction de la résolution du modèle fonctionnant à $3.75^\circ(\text{long.}) \times 2.5^\circ(\text{lat.})$ avec une hauteur maximale de 84km étendu sur 31 niveaux. Concernant la physique atmosphérique, l'amélioration la plus importante est la prise en compte de la photolyse par un modèle de calcul, permettant ainsi d'augmenter les taux de photolyse dans la stratosphère en tenant compte des nuages, et des aérosols en plus de l'ozone.

2.3.7 MRI

Le modèle MRI-ESM1r1 (*Meteorological Research Institute*) est une nouvelle version du modèle MRI-ESM1, anciennement utilisé dans 5^{ème} rapport de l'IPCC (2013). Par rapport à ESM1, la résolution verticale a été améliorée (L80) avec une altitude maximale de 80 km. Les modules d'atmosphère, océan, aérosols et de chimie sont couplés. Par rapport à CCMVal-2, un nouveau module de chimie a été implanté, améliorant la prise en compte des hydrocarbures dans la troposphère.

2.3.8 EMAC

EMAC (*ECHAM/MESSy Atmospheric Chemistry*) est le résultat du couplage entre le GCM ECHAM5 et le gestionnaire de module Messy (*Modular Earth Submodel System*) (Jöckel et al., 2006). La configuration du modèle est de 47 niveaux pour l'EMAC47 et 90 pour EMAC90, avec une hauteur maximale de 80km et une résolution horizontale de 2.8° x 2.8°. De nouvelles mises à jour ont été introduites dans le modèle (chimie atmosphérique, physique de l'atmosphère, nouvelles méthodes de calcul). La description de toutes les améliorations sont décrites dans Jöckel et al. (2016).

2.3.9 MOCAGE

MOCAGE (*Modèle de Chimie Atmosphérique de Grande Échelle*) est un CTM de Météo-France. Le modèle est une combinaison entre la chimie troposphérique de RACM et stratosphérique de REPROBUS (cf Lacressonnière et al. 2012 pour la liste des espèces et des principales réactions). Dans la version utilisée pour CCMI, il inclut 109 espèces chimiques, 52 réactions de photolyse, 312 réactions en phase gazeuse ainsi que 9 réactions hétérogènes pour la stratosphère. La résolution du modèle est de 2° x 2° sur une grille de latitude-longitude, avec 47 niveaux de pression allant de la surface jusqu'à 5hPa. MOCAGE étant un CTM, les champs de réanalyses météorologiques ERA-Interim sont utilisés directement comme paramètres d'entrée du modèle.

2.3.10 CHASER-MIROC

Le modèle CHASER (*Chemical Atmospheric general circulation model for Study of atmospheric Environment and Radiatif forcing-Model for Interdisciplinary Research on Climate*) développé à l'université de Nagoya et à l'institut JAMSTEC (*Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology*), est un CCM simulant à la fois la chimie atmosphérique et les aérosols. Le modèle est basé sur le modèle MIROC. CHASER simule une chimie détaillée dans la troposphère et la stratosphère incluant une simulation des aérosols comprenant la production de nitrates particulaires et d'aérosols organiques secondaires. La résolution horizontale sélectionnée est de $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ sur une grille de latitude-longitude avec 57 niveaux allant jusqu'à 55 km.

2.3.11 CNRM-CM5

CNRM-CM5 est un GCM développé conjointement par le CNRM-GAME (*Centre National de Recherches Météorologiques–Groupe d'études de l'Atmosphère Météorologique*) et le Cerfacs (*Centre Européen de Recherche et de Formation Avancée*) dont les simulations ont servi au projet CMIP5 (Voldoire et al., 2012). Le CCM inclut de nouvelles modifications par rapport à la version précédente, qui a été largement évaluée dans le contexte de CCMVal-2. Les changements les plus notables concernent le code de radiation du GCM, le paramétrage des ondes de gravité, la paramétrisation des systèmes de convection et une chimie stratosphérique plus détaillée. La résolution horizontale sélectionnée est de $2^\circ \times 2^\circ$ sur une grille de latitude-longitude avec 31 niveaux. Il n'y a pas de chimie troposphérique dans CNRM-CM5, juste un rappel à une climatologie dans la troposphère.

3. Méthodes d'analyses

3.1	Traitement des données	- 61 -
3.1.1	Désaisonnalisation.....	- 61 -
3.1.2	Coefficient de corrélation.....	- 62 -
3.2	Régression linéaire multiple	- 63 -
3.2.1	Transformation de Cochran Orcutt.....	- 68 -
3.2.2	Paramètres indépendants	- 72 -
3.2.2.1	<i>Oscillation Quasi-Biennale (QBO)</i>	- 72 -
3.2.2.2	<i>Oscillation Sud El-Niño (ENSO)</i>	- 74 -
3.2.2.3	<i>Irradiance solaire</i>	- 75 -
3.2.2.4	<i>Aérosols volcaniques</i>	- 77 -
3.2.2.5	<i>Latitude équivalente</i>	- 78 -
3.3	Méthodes des ondelettes.....	- 79 -

La première partie de ce chapitre est dédiée à la description des séries « d'anomalies » et à l'indice statistique utilisé pour l'inter-comparaison instrumentale qui est le coefficient de corrélation. Une deuxième partie porte sur les différentes méthodes employées pour déterminer les contributions de processus dynamiques, radiatifs et aérosols (QBO, ENSO, cycle solaire, ...) sur la variabilité de l'ozone. Les méthodes utilisées sont la régression linéaire multiple avec la transformation de Cochrane-Orcutt, et l'analyse spectrale par la méthode des ondelettes.

3.1 Traitement des données

3.1.1 Désaisonnalisation

Une grande partie de la thèse est dédiée à étudier la variabilité interannuelle des séries temporelles d'ozone de différents instruments. Les colonnes d'ozone aux tropiques présentent une variabilité saisonnière qui se traduit par un signal annuel prédominant lors d'analyse spectrale masquant ainsi tout autre phénomène géophysique d'amplitude inférieure. Il a été donc décidé de désaisonnaliser les séries afin d'éliminer la variabilité périodique provenant des cycles saisonniers et ne laisser que les variations interannuelles et hautes fréquences. La méthode choisie pour désaisonnaliser les séries est la suppression de la moyenne climatologique de chaque mois de l'année aux séries mensuelles suivant l'équation :

$$y_{des}(t) = y(t) - \sum_{i=1}^{12} \alpha_i \beta_{it} \quad (1)$$

$y_{des}(t)$ représente la série désaisonnalisée, $y(t)$ la série mensuelle et $\sum_{i=1}^{12} \alpha_i \beta_{ij}$ l'estimation du cycle saisonnier. La variable t représente le mois dans la série de données, α_i la moyenne climatologique de chaque mois i pour toute la série, avec i variant de 1 à 12 et β_{it} le coefficient de pondération qui vaut 1 si t correspond au mois i de l'année en cours et 0 dans les autres cas.

A titre d'exemple, le tableau 3.1.1 montre la contribution du cycle saisonnier sur la TOC pour chaque satellite et l'instrument SAOZ de 1993 à 2016 aux deux stations. A Bauru, la contribution saisonnière la plus importante est observée sur GOME qui est de $85\% \pm 2.3\%$ et la plus faible sur IASI et OMI DOAS qui sont de $77\% \pm 2.8\%$. La moyenne totale de l'ensemble des instruments correspond à $81\% \pm 2.4\%$. A la Réunion, le cycle saisonnier montre un impact

maximal sur GOME et GOME 2 de $92\% \pm 2.3\%$ et un minimum sur OMI DOAS de $87\% \pm 2.2\%$. La contribution moyenne de l'ensemble des instruments est de $89\% \pm 2.3\%$.

	Bauru	Réunion
SAOZ	$82\% \pm 2.3\%$	$91\% \pm 2.3\%$
SBUV	$82\% \pm 2.4\%$	$88\% \pm 2.1\%$
OMI CCI	$81\% \pm 2.2\%$	$89\% \pm 2.0\%$
OMI DOAS	$77\% \pm 2.8\%$	$87\% \pm 2.2\%$
OMI TOMS	$79\% \pm 2.7\%$	$88\% \pm 2.5\%$
GOME	$85\% \pm 2.3\%$	$92\% \pm 2.3\%$
GOME 2	$83\% \pm 2.3\%$	$92\% \pm 2.3\%$
OMPS	$79\% \pm 2.1\%$	$90\% \pm 2.2\%$
SCIAMACHY	$84\% \pm 2.4\%$	$91\% \pm 2.1\%$
TOMS	$84\% \pm 2.2\%$	$89\% \pm 2.6\%$
IASI	$77\% \pm 2.8\%$	$90\% \pm 2.4\%$
Moyenne	$81\% \pm 2.4\%$	$89\% \pm 2.3\%$

Table 3.1.1. Contribution du cycle saisonnier dans les variations de TOC satellites et SAOZ observées aux deux stations de 1993 à 2016.

On remarque que l'impact du cycle saisonnier sur la variabilité de l'ozone est plus important à la Réunion qu'à Bauru. De plus, on remarque une cohérence aux deux stations avec un maximum pour GOME et un minimum pour OMI DOAS. Le cycle saisonnier correspondant à plus de 77% de la variabilité interannuelle de l'ozone dans les deux stations doit être soustrait de la colonne totale d'ozone pour pouvoir mettre en évidence les autres facteurs influents. Une fois le cycle saisonnier soustrait, les séries désaisonnalisées portent le nom d'anomalies.

3.1.2 Coefficient de corrélation

La relation entre deux variables statistiques X et Y est déterminée par le coefficient de corrélation. Le calcul du coefficient de corrélation entre deux variables statistiques X et Y doit justifier l'existence d'un terme de covariance de la variable X et Y (Cov_{xy}). La covariance mesure la liaison linéaire qui peut exister entre les variables X et Y tel que :

$$Cov_{xy} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (X_i - \mu_x)(Y_i - \mu_y) \quad (2)$$

Cependant, la covariance n'est pas un indicateur final. Celle-ci mesure le lien de variables n'ayant pas nécessairement la même unité. Afin que celle-ci puisse être un bon estimateur de la relation entre deux variables statistiques, il faut diviser le terme par le produit des écart-types. La covariance est alors standardisée (sans dimension) et peut donc être considérée comme un bon estimateur. Ce terme appelé coefficient de corrélation linéaire (ou de Bravais-Pearson) est déterminé par la relation suivante :

$$R = \frac{Cov_{xy}}{\sigma_x \sigma_y} \quad (3)$$

Le coefficient R est compris entre -1 et 1 car la covariance est inférieure ou égale au produit des écarts-types. Un signe négatif indique que Y varie en sens inverse de X, les variables sont anti-corrélées. Si le coefficient est proche de 0, les deux variables ne sont pas linéairement dépendantes. Une relation linéaire entre deux variables est d'autant plus importante que le coefficient R s'approche de 1 ou -1.

3.2 Régression linéaire multiple

L'outil statistique le plus utilisé dans l'étude de données multi-paramètres est le modèle de la régression linéaire multiple (MLR, *multi-linear regression* en anglais). Le modèle MLR est souvent considéré comme une généralisation naturelle de la régression simple. Cette méthode a été largement utilisée dans le domaine des sciences atmosphériques sur des observations satellitaires, au sol et des simulations. Par exemple l'influence du cycle solaire sur la tendance et sur la variabilité de l'ozone dans la basse stratosphère tropicale a été estimée en appliquant le modèle MLR sur des observations satellitaires de SAGE II et OSIRIS (*Optical Spectrograph and Infrared Imager System*) (Sioris et al., 2014). Dans un cadre plus proche à notre étude, Poulain et al. (2016) ont utilisé le modèle MLR pour analyser la variabilité de l'ozone aux différents forçages radiatifs à partir de données issues d'observations satellitaires, au sol et de simulations de différents modèles de Chimie-Climat.

Le modèle MLR permet d'expliquer la variation d'une variable quantitative à partir d'une ou de plusieurs variables quantitatives. Une variable quantitative Y (dite exogène ou à expliquer) est mise en relation avec n variables quantitatives $X_1, X_2, X_3, \dots, X_n$ (dites endogènes ou explicatives). Une dépendance linéaire est supposée entre la variable exogène et les variables endogènes. La variable exogène $Y(t)$ est représentée par la somme des variables endogènes pondérées $X_i(t)$ par un paramètre inconnu (équation 4) :

$$Y(t) = \beta_0 + \beta_1 X_1(t) + \beta_2 X_2(t) + \dots + \beta_n X_n(t) + \varepsilon(t) \quad (4)$$

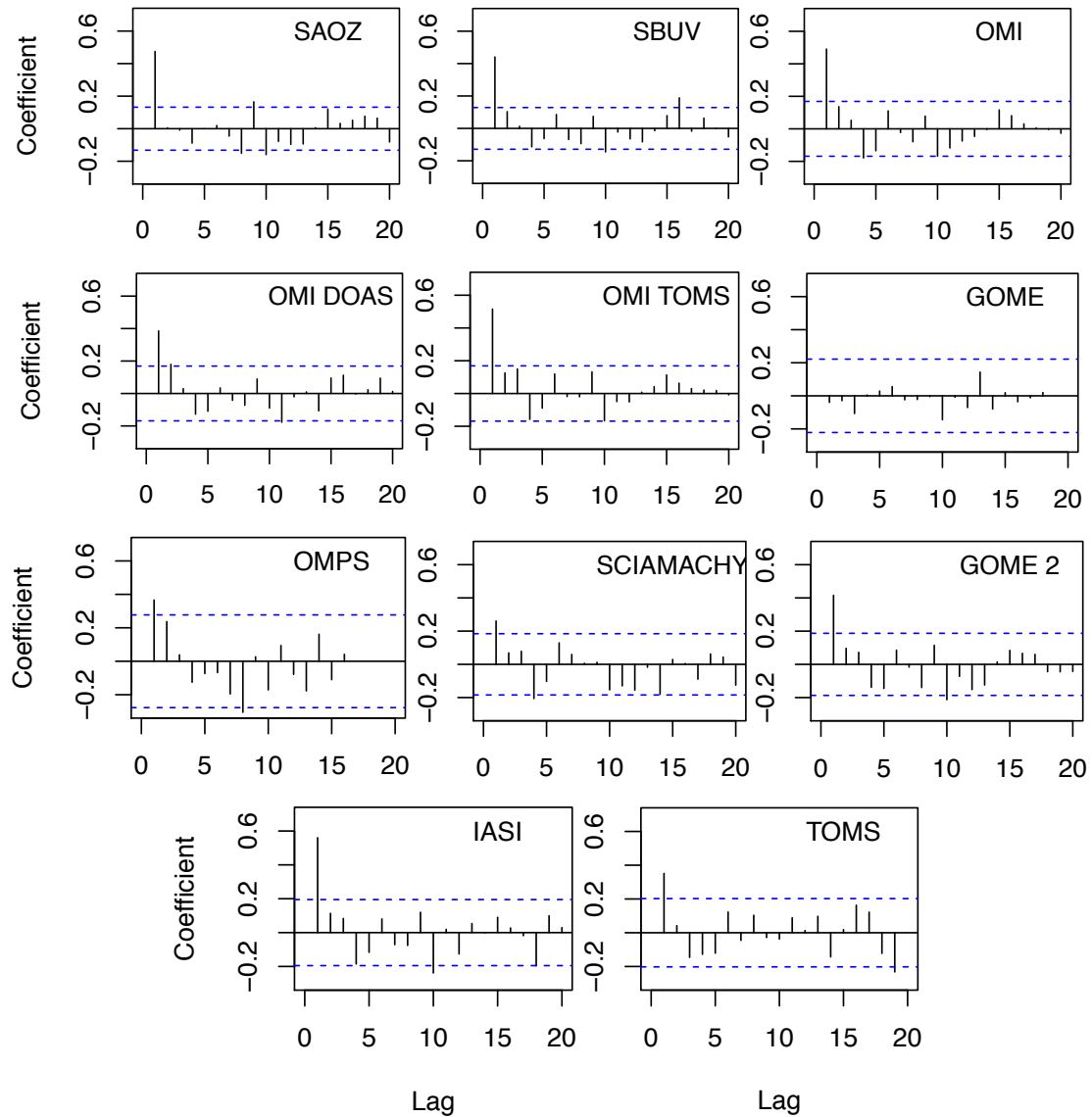
où $Y(t)$ la variable exogène, t le temps en mois allant de 1 à N , $X_1, X_2(t), \dots, X_n(t)$ les variables endogènes avec n le nombre de variables endogènes et $\varepsilon(t)$ le terme résiduel du modèle MLR. Les paramètres $\beta_0, \beta_1, \beta_2, \dots, \beta_n$ sont les coefficients de la régression linéaire. Le coefficient de régression β_i indique dans quelle mesure la valeur de la variable $Y(t)$ varie avec la variation de la valeur de la variable endogène $X_i(t)$. La méthode des moindres carrés consistant à minimiser la somme des carrés des écarts des valeurs observées $Y(t)$ est utilisée pour le calcul des coefficients $\beta_0, \beta_1, \beta_2, \dots, \beta_n$. Le coefficient $\varepsilon(t)$ représente cet écart. Dans notre étude, $Y(t)$ correspond à la moyenne mensuelle de colonnes totales d'ozone, $X(t)$ les moyennes mensuelles séries temporelles de paramètres utilisés, et $\varepsilon(t)$ la quantité résiduelle des colonnes totales d'ozone non expliquée par le modèle régression.

Cependant pour appliquer ce type de modèle, des hypothèses doivent être prises en compte :

- H0 : les variables endogènes sont indépendantes et connues.
- H1 : le nombre de variables endogènes est inférieur à la longueur de la série
- H2 : les résidus sont des termes d'erreur, non observés, de moyenne nulle et de variance constante.
- H3 : aucune corrélation n'existe entre les résidus et les variables endogènes.
- H4 : aucune corrélation n'existe entre les résidus entre eux.

D'autre part les séries temporelles de données géophysiques montrent souvent la présence d'une autocorrélation significative des résidus invalidant ainsi l'hypothèse H4 et donc les résultats du modèle MLR. Les figures 3.1.3.1 et 3.1.3.2 présentent l'autocorrélation respectives

par pas d'un mois (lag) des résidus des mesures d'ozone SAOZ, satellitaires et modèles à Bauru et à la Réunion. Un seuil de significativité à 99% a été choisi et est représenté par la ligne en pointillée bleue.



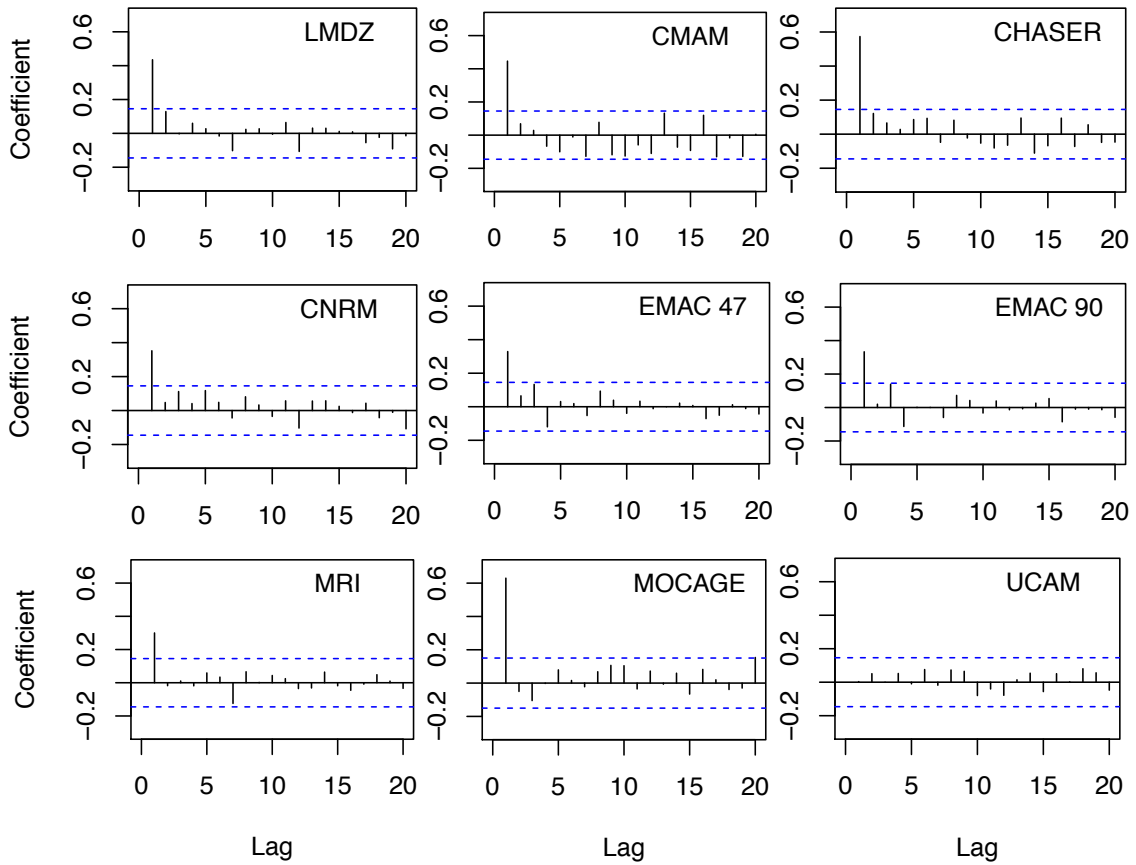
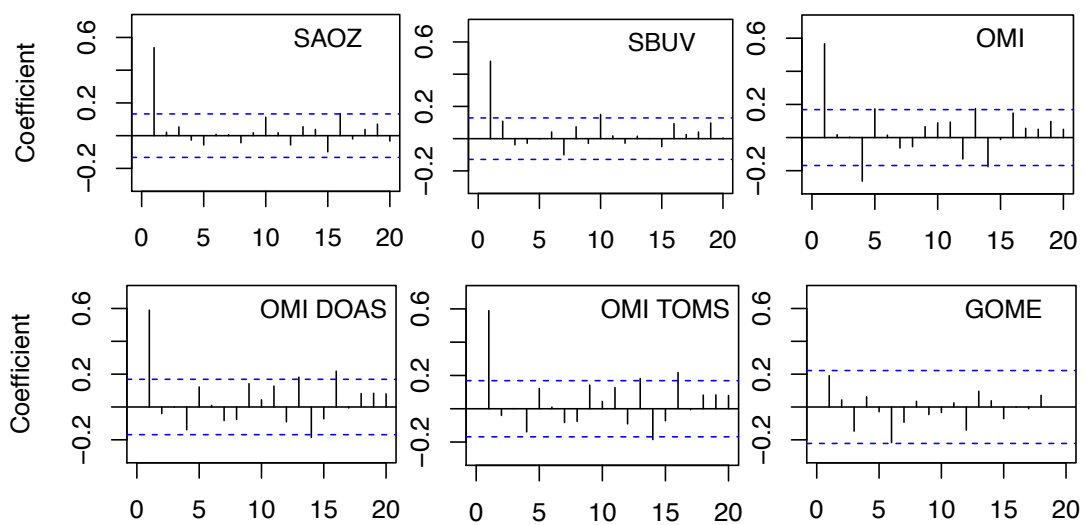


Figure 3.1.3.1. Coefficients d'autocorrélation des résidus d'ozone à Bauru issus de la régression multiple simple sur les données SAOZ, satellitaires et de modèles. La ligne en pointillée bleue est le seuil de confiance fixé à 99%.



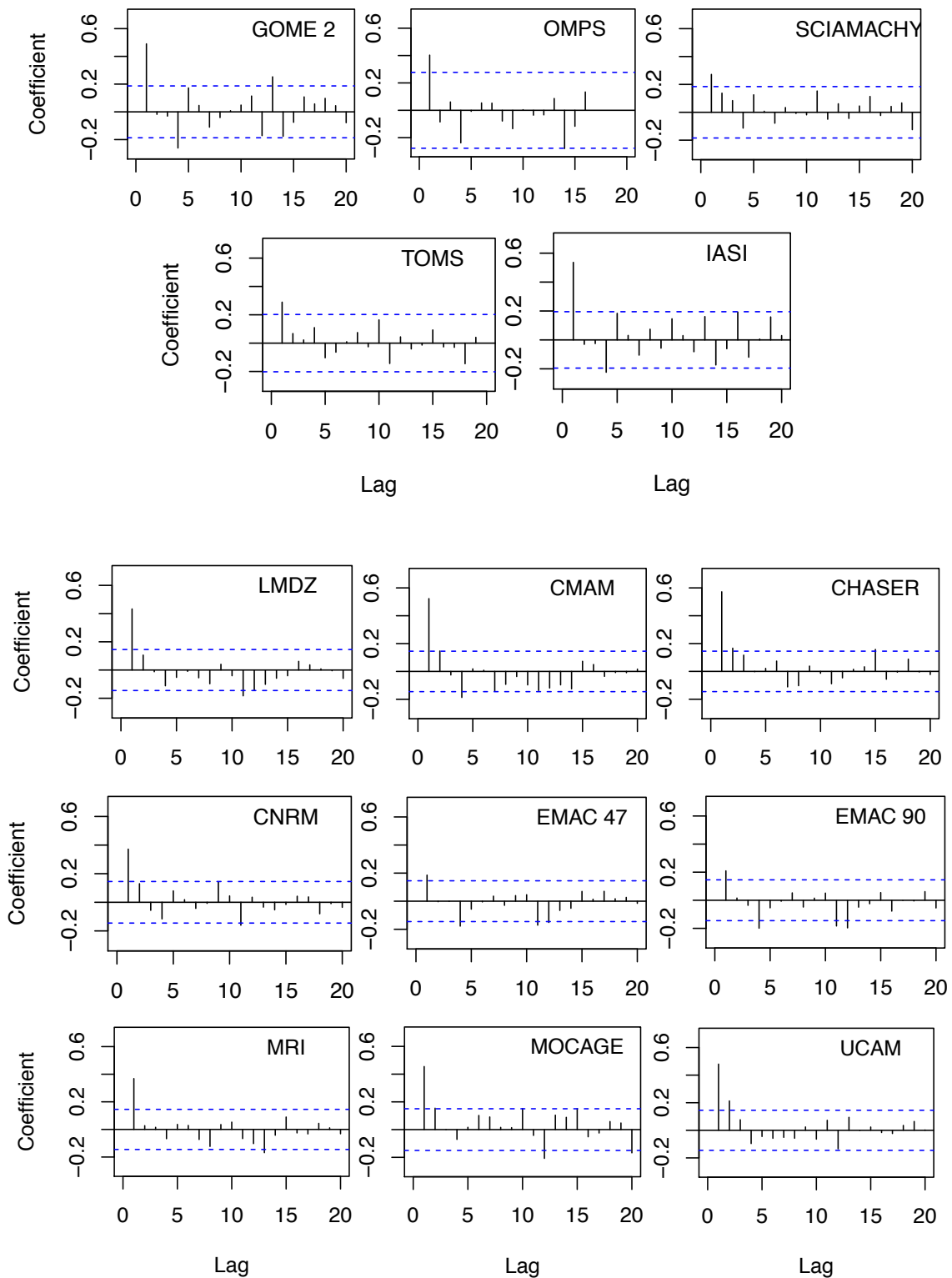


Figure 3.1.3.2. Idem à la figure 3.1.3.2 à la Réunion.

L'autocorrélation des résidus pour un décalage (lag en anglais) d'un mois est significative pour un seuil à 99% sur tous les instruments excepté GOME (pas d'autocorrélation). Pour les autres décalages, l'autocorrélation est non significative à 99%.

3.2.1 Transformation de Cochrane Orcutt

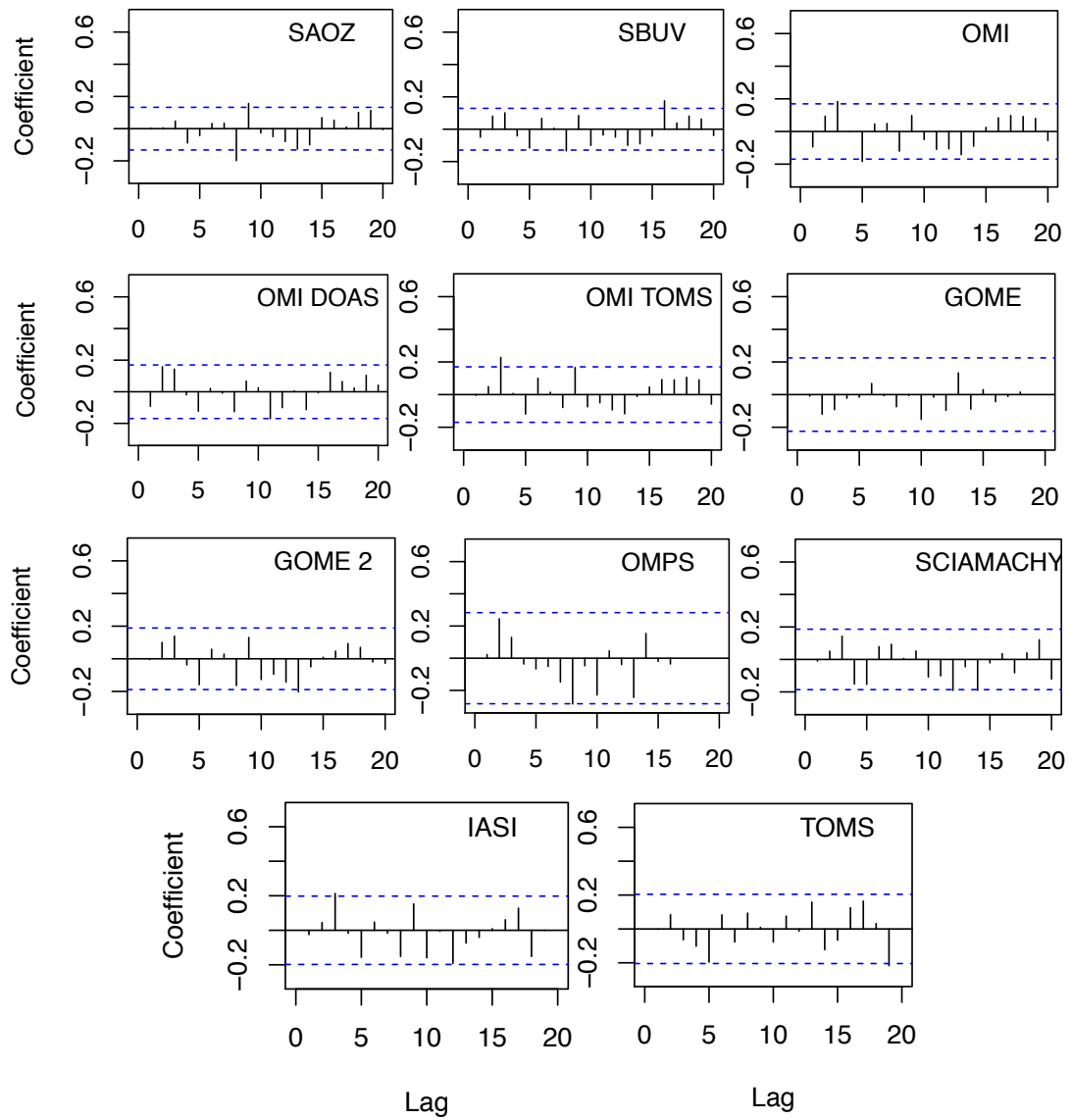
La présence d'une autocorrélation importante invalide l'hypothèse H4 du modèle de MLR et induit une incertitude supplémentaire sur les coefficients de régression (variance importante). Les origines de cette autocorrélation sont souvent des phénomènes mal pris en compte dans le modèle de MLR. Il est donc important de prendre en compte cette autocorrélation permettant ainsi une meilleure estimation de barres d'erreurs des coefficients de régression. Plus le coefficient d'autocorrélation est important, plus la barre d'erreur est grande. Un modèle d'auto-régression au premier ordre (équation 5) peut être utilisé pour représenter la quantité résiduelle et définir son autocorrélation :

$$\epsilon(t) = \phi \cdot \epsilon(t - 1) + \delta(t) \quad (5)$$

Avec $\delta(t)$ un bruit blanc, t le temps allant de 1 à N (avec N le nombre d'années du mois étudié), ϕ le coefficient d'auto-corrélation dans le modèle de MLR, et $\epsilon(t - 1)$ la quantité résiduelle à t-1. Ce modèle d'auto-régression permet de montrer l'existence d'une corrélation entre les paramètres et peut être ainsi appliqué sur la variable exogène et les variables endogènes dans la MLR simple. Cette méthode est appelée transformation de Cochrane-Orcutt (Cochrane et Orcutt, 1949). Cette méthode a été appliquée avec un temps de latence d'un mois suivant le modèle de régression de Tiao et al. (1990) :

$$Y(t) - \phi \cdot Y(t - 1) = \beta_0(1 - \phi) + \sum_i^n (\beta_i X_i(t) - \phi \beta_i X_i(t - 1)) + \delta(t) \quad (6)$$

L'autocorrélation est ensuite réinjectée dans l'équation 6 afin de générer une série temporelle dont les variables sont linéairement indépendantes. Ensuite, il suffit d'appliquer à nouveau le modèle MLR à cette série et de vérifier une diminution majeure de l'autocorrélation. Tant que l'autocorrélation ne converge pas vers une valeur constante, la transformée est réitérée. La transformée de Cochrane-Orcutt ne modifie pas de manière significative les coefficients obtenus avec le modèle MLR. Les figures 3.1.3.3 et 3.1.3.4 présentent respectivement l'autocorrélation des résidus des mesures d'ozone SAOZ, satellitaires et modèles après application de la transformation de Cochrane-Orcutt à Bauru et à la Réunion.



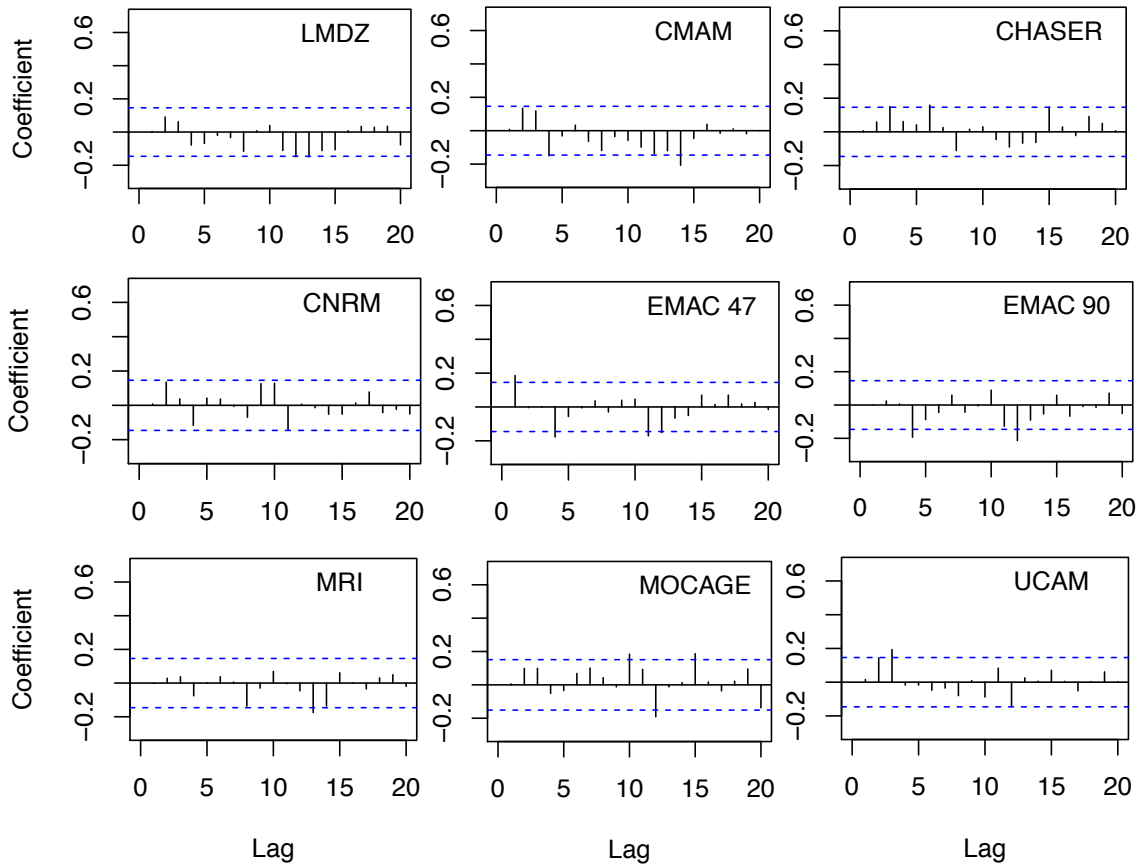
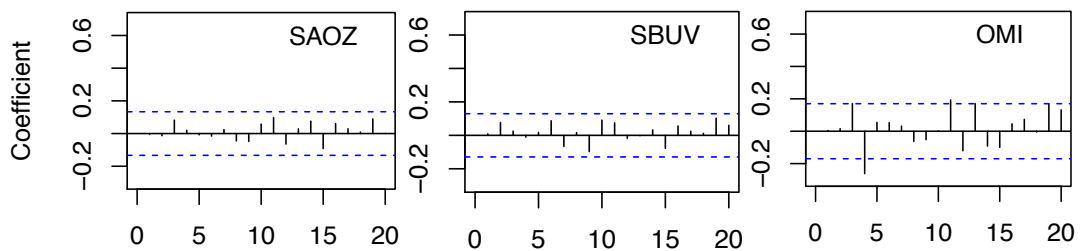


Figure 3.1.3.3. Coefficients d'autocorrélation des résidus d'ozone SAOZ, satellitaires et modèles à Bauru issus de la transformation de Cochrane-Orcutt. La ligne en pointillée bleue est le seuil de confiance fixé à 99%.



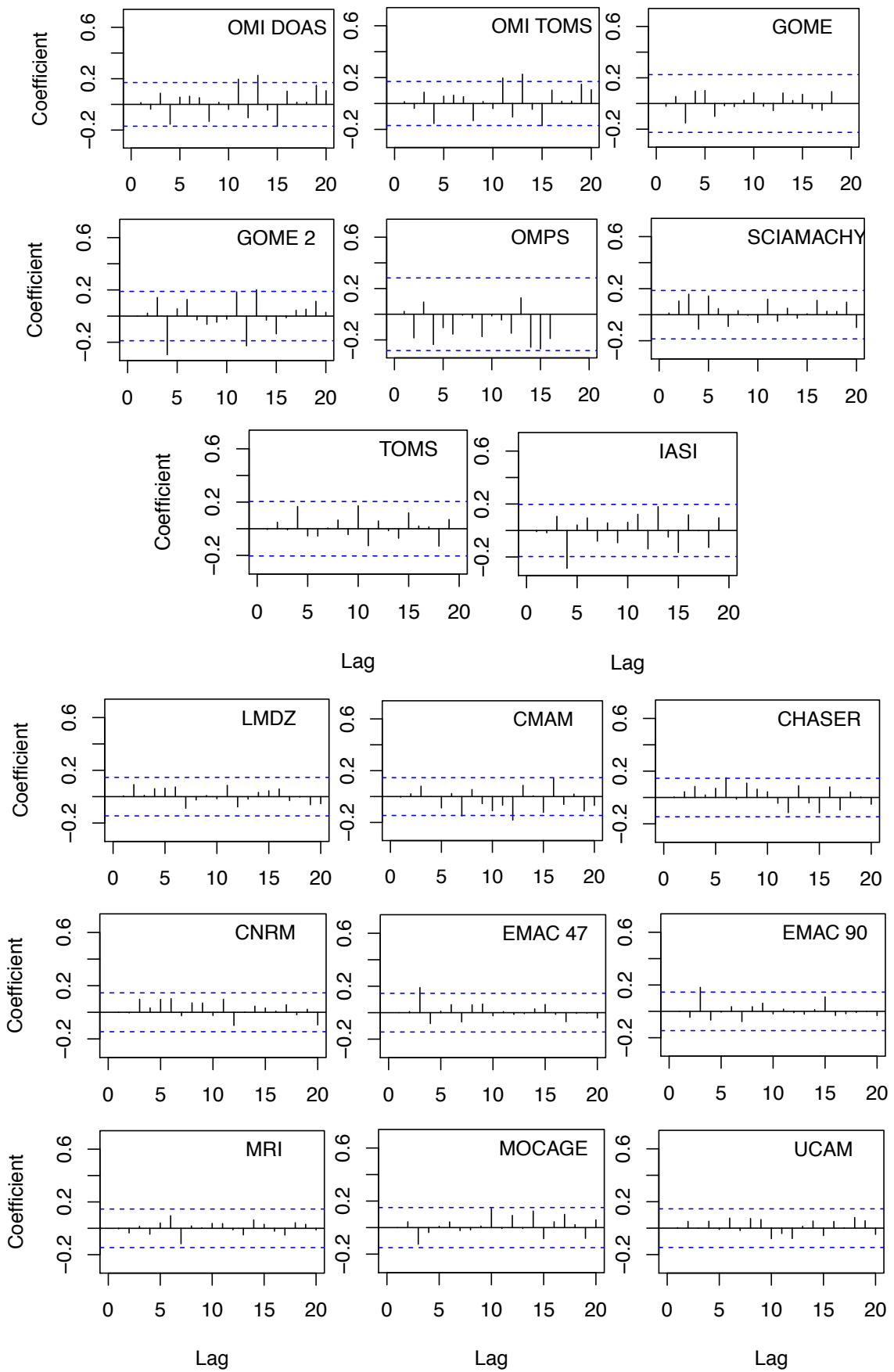


Figure 3.1.3.4. Idem à la figure 3.1.3.3 à la Réunion.

L'autocorrélation des résidus au lag 1 ($t+1$) est non significative sur tous les instruments. Cependant, on remarque une significativité de l'autocorrélation à certains lags sur certains instruments et modèles traduisant une autocorrélation d'ordre supérieur qu'on négligera. La transformation de Cochrane-Orcutt est limitée par la taille de la série, la rendant moins robuste et significative (Tiao et al., 1990). En effet, la transformation de Cochrane-Orcutt est une méthode itérative permettant d'améliorer l'estimation à chaque itération jusqu'à obtenir deux estimations consécutives pratiquement identiques. Il est donc nécessaire d'avoir une série assez longue puisque, à chaque itération, un terme de l'échantillon est utilisé.

3.2.2 Paramètres indépendants

La variabilité de l'ozone aux tropiques est dominée par les effets de l'Oscillation Quasi-Biennale (QBO), et de l'oscillation australe El Niño. Cependant d'autres effets peuvent faire fluctuer l'ozone stratosphérique tel que l'irradiance solaire et la charge d'aérosols stratosphérique. Dans cette thèse, ces forçages externes sont utilisés comme des paramètres pour l'analyse de la variabilité de l'ozone stratosphérique. Ces proxies diffèrent entre les observations et les modèles. Dans les observations, les proxies sont récupérés de différentes bases de données. Contrairement aux observations, tous les forçages utilisés dans les modèles étudiés dans cette thèse sont issus d'ERA-Interim (<http://www.ecmwf.int/en/-research/climate-reanalysis/era-interim>), excepté MOCAGE dont les réanalyses sont fournies par JRA-55 (http://jra.kishou.go.jp/JRA-55/index_en.html).

3.2.2.1 Oscillation Quasi-Biennale (QBO)

La QBO est généralement décrite par le profil de vent zonal mesuré à l'équateur à 30 hPa et 50 hPa. Elle représente un mode de variabilité interne de l'atmosphère qui domine la variabilité interannuelle du vent dans la stratosphère tropicale contribuant ainsi à la variabilité dynamique extratropicale. La QBO est un processus dynamique nécessaire à tenir en compte pour la compréhension de la variabilité de l'ozone (et d'autres espèces) dans les régions tropicales et extratropicales. Il apparaît donc être un paramètre important à générer dans les modèles de chimie-climat pour l'étude de l'ozone des stations tropicales. Cependant, les modèles de circulation générale (GCM) de l'atmosphère ont des difficultés à simuler

spontanément la QBO. Afin de simuler une QBO réaliste, un modèle devrait être capable de supporter un spectre réaliste (temporel et spatial) d'ondes se propageant vers le haut dans les tropiques. C'est un défi majeur car ce spectre d'ondes dépend de nombreux aspects techniques d'un modèle de circulation générale atmosphérique, tels que la paramétrisation de la convection tropicale, la stabilité de la troposphère, la SST, les résolutions verticales et horizontales et les paramétrages d'ondes de gravité atmosphérique (Manzini et al., 2010). Un modèle qui ne simule pas adéquatement la QBO dans le vent zonal, déforme sévèrement les variations naturelles de l'ozone associées à la QBO (Punge et Giorgetta, 2008). Par conséquent, certains groupes de modélisation ont imposé la QBO par des techniques d'assimilation des vents zonaux équatoriaux ou de la vorticité appelés le « nudging » en anglais. La première simulation à avoir pris en compte la QBO dans un GCM ont été Takahashi et Nagashima (1998) montrant un biais de ~13% (40 DU) entre le modèle et les observations. La méthode de forçage de la QBO utilisée dans CCM1 est la même que celle utilisée dans CCMVal-2 avec une légère différence, liée à une prise en compte des effets de bord absents sur CCMVal-2. La figure 3.4.1.1 montre une coupe temps-pressure du vent zonal ($m.s^{-1}$) issue d'observations météorologiques à Canton Islang ($3^{\circ}S-172^{\circ}O$), Gan ($1^{\circ}S-73^{\circ}E$) et Singapore ($1^{\circ}N-104^{\circ}E$). La zone encadrée par la ligne violette représente le domaine vertical d'observations, les données extérieures à cette zone sont extrapolées avec une vitesse de phase de $2 km.mois^{-1}$ au dessus de 10 hPa et $1 km.mois^{-1}$ au-dessous de 70 hPa.

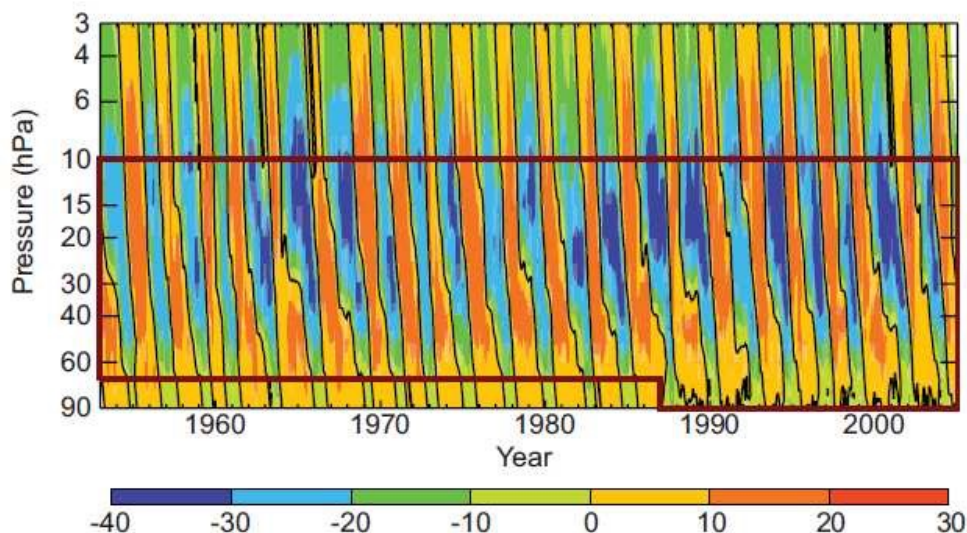


Figure 3.4.1.1. Coupe temps-pressure du vent zonal observée aux stations météorologiques de Canton Islang, Gan et Singapore. Les données à l'intérieur de la zone encadrée représentent le domaine vertical des observations ; les données à l'extérieur sont extrapolées avec une vitesse

de phase de 2 km.mois^{-1} au-dessus de 10 hPa et 1 km. mois^{-1} en dessous de 70 hPa (CCMVal, 2010)

Pour les observations, la QBO utilisée dans le modèle de régression multilinéaire est basée sur les données journalières de la moyenne zonale du vent zonal à 30 mb (~25 km) de radiosondes à Singapour intégrées dans les réanalyses CDAS (*Climate Data Assimilation System*).

3.2.2.2 Oscillation Sud El-Niño (ENSO)

Les températures de surface de mer et les concentrations de glace de mer sont issues des analyses HadISST1 fournies par le centre UK Met Office Hadley Centre (Rayner et al., 2006). Ces données sont les mêmes que celles utilisées dans le REFB1 du projet CCMVal. Une correction a été apportée pour minimiser la variance due à l'interpolation temporelle causée par le calcul de données en moyennes mensuelles. Des corrections du point de vue du forçage radiatif ont été apportées telles que la diffusion et l'albédo océanique, issues des réanalyses AMIP II (*Atmospheric Model Intercomparison Project II*) (<http://www.pcmdi.llnl.gov/projects/amip/AMIP2EXPDSN/BCS/bcsintro.php>). La figure 3.4.2.1 représente la tendance de la température de la surface de la mer issue de HadISST sur la période 1960–2010 (Morgenstern et al., 2017). Les données sont issues de moyenne annuelles. Un réchauffement est observé sur diverses zones de l'océan plus particulièrement proches des côtes équatoriales (zones rouges dans la Fig. 3.4.2.1), contrairement aux zones tropicales, où un refroidissement (zones bleues) est principalement observé.

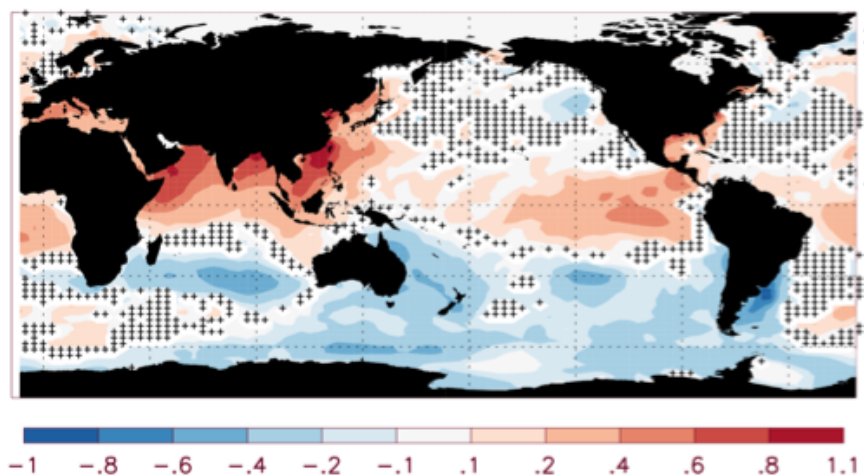


Figure 3.4.2.1. Tendance des températures de surface de la mer (SSTs), issue de HadISST de

1960–2010 (K/siècle). Données en moyennes annuelles. La zone poinçonnée représente les tendances non significatives à 95% de confiance (Morgenstern et al., 2017).

Pour les observations, les données de l'indice ENSO sont accessibles sur le site de la NOAA [<https://www.ncdc.noaa.gov/teleconnections/enso/>]. Il existe plusieurs indices pour surveiller le Pacifique tropical, qui sont tous basés sur les anomalies SST moyennées dans une région donnée. Habituellement, les anomalies sont calculées par rapport à une période de base de 30 ans. L'indice Niño 3.4 et l'indice *Oceanic Niño* (ONI) sont les indices les plus couramment utilisés pour définir les événements El Niño et La Niña. D'autres indices sont aussi utilisés pour aider à caractériser la nature unique de chaque événement. Le nombre derrière l'indice correspond à des bandes de latitudes et longitudes spécifiques aux mesures. Les anomalies de Niño 3.4 (indice utilisé dans la thèse) sont considérées comme étant la moyenne de la SST équatoriale dans la bande 5°N-5°S et 170°O-120°O. L'indice Niño 3.4 utilise généralement une moyenne glissante de cinq mois, et les événements El Niño ou La Niña sont définis lorsque les SST Niño 3.4 dépassent $\pm 0,4^{\circ}\text{C}$ pendant une période de six mois ou plus.

3.2.2.3 Irradiance solaire

Les données spectrales de l'irradiance solaire de 1960 – 2010 sont fournies par le modèle NRLSSI (*Naval Research Laboratory Solar Spectral Irradiance*) (Lean et al., 2005) pour les modèles, les mêmes que celles utilisées précédemment dans CCMVal et CMIP5. La figure 3.4.3.1 montre l'évolution temporelle de l'indice des taches solaires en noire et de l'irradiance solaire totale reconstruite à partir d'indicateurs solaires en bleue. Le changement par rapport à CCMVal et CMIP5 est l'ajout dans le modèle NRLSSI des données du taux d'ionisation atmosphérique par les protons solaires lequel est corrélé à la production de HO_x et de NO_x. Le taux d'ionisation est calculé suivant l'approche de Jackman et al. (2009) basée sur les mesures de flux de protons d'instruments à bord des satellites GOES (*Geostationary Operational Environmental Satellite*).

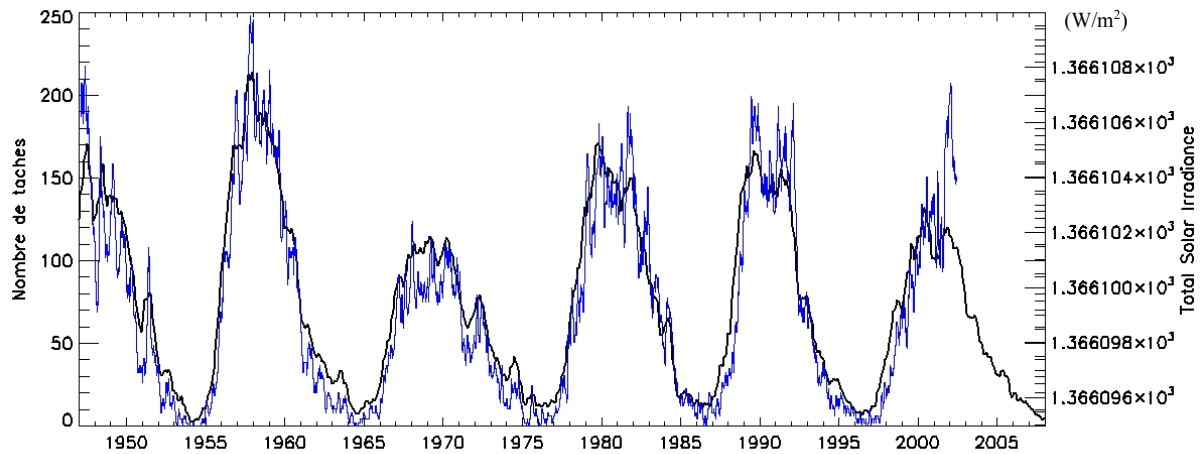


Figure 3.4.3.1. Évolution temporelle des taches solaires (courbe noire) et de l'irradiance solaire totale (W/m^2) (courbe bleue) [<http://www.lesia.obspm.fr/perso/jean-marie-malherbe/cycle/index.html>].

Le cycle solaire de 11 ans est clairement visible dans la figure montrant une amplitude moyenne d'environ 1W/m^2 autour de la valeur de référence de 1366W/m^2 avec un minimum d'amplitude entre 1965 et 1970 de 0.7W/m^2 et un maximum d'amplitude entre 1955 et 1960 de 1.5W/m^2 . Une grande variabilité de l'irradiance solaire est observée aux hautes fréquences et donc aux faibles longueurs d'onde. Le flux UV joue un rôle clé dans la chimie stratosphérique, en particulier celle de l'ozone. Shindell et al. (1999) ont montré que 10 à 20% de la variabilité solaire se produit dans les radiations UV, lesquelles sont largement absorbées par l'ozone stratosphérique. Il est donc essentiel de tenir compte des variations spectrales pour le calcul du taux de photolyse et des taux de chauffage. Le progrès par rapport au projet CCMVal-2 est l'utilisation de l'algorithme version 6 de SAGE II améliorant de manière significative la prise en charge des couches d'aérosols volcaniques denses. Tous les CCMs résolvent spectralement le forçage solaire pour les calculs radiatifs et de photolyse en utilisant les reconstructions du spectre solaire de Lean et al. (2005), à l'exception de MRI et UCAM.

Dans cette thèse, l'étude est faite à partir de l'indice radio solaire à 10.7 cm (aussi appelé l'indice F10.7). Les émissions radio à 10.7 cm sont élevées dans la chromosphère et faibles dans la couronne de l'atmosphère solaire. L'indice F10.7 est bien corrélé avec le nombre de taches solaires ainsi qu'avec un certain nombre d'enregistrements d'irradiation solaire Ultraviolet (UV) et visible (Tapping, 2013). Le F10.7 a été mesuré régulièrement au Canada depuis 1947, d'abord à Ottawa, en Ontario puis à l'Observatoire de Penticton en Colombie-Britannique (Canada). Contrairement à de nombreux indices solaires, le flux radio F10.7 peut

facilement être mesuré de manière fiable au jour le jour à partir de la surface de la Terre, quel que soit le temps (Tapping, 2013). Rapporté en "unités de flux solaire", (1 s.f.u. équivaut à $10^{-22} \text{m}^{-2} \text{Hz}^{-1}$), le F10.7 peut varier de moins de 50 s.f.u. à plus de 300 s.f.u., au cours d'un cycle solaire.

3.2.2.4 Aérosols volcaniques

La figure 3.4.4.1 montre l'évolution temporelle de la distribution des aérosols stratosphériques mesurés à environ 22 km construite à partir des mesures satellitaires SAGE II (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*) lancé en Octobre 1984 (Arfeuille et al., 2013) à partir de la base de données SPARC. La principale différence avec les données utilisées par CCMVal-2, est la présence d'une injection majeure d'aérosols dans la stratosphère pendant la période 1974-1975, due à l'éruption du volcan Fuego (Guatemala) qui avait été ignoré dans les précédentes données. L'éruption de 1963 est quant à elle attribuée au volcan Agung situé à Bali en Indonésie. Une augmentation de la densité d'aérosols est observée durant la dernière décennie attribuée à une série de petite éruptions volcaniques (Vernier et al., 2011).

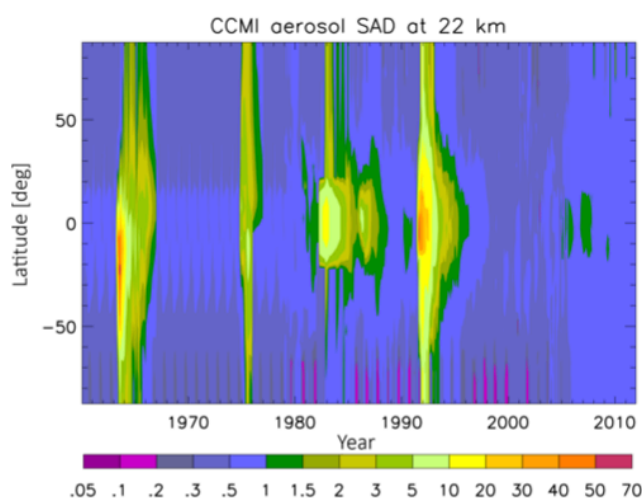


Figure 3.4.4.1. Moyenne zonal de la densité de surface ($\mu\text{m}^2/\text{cm}^3$) des aérosols mesurés à 22 km (Morgenstern et al., 2017).

La charge d'aérosols stratosphérique utilisée dans la régression linéaire multiple des observations est donnée par les profils d'extinction des aérosols mesurés à partir de données SAGE II V7.0, OSIRIS V5.07, CALIOP V4.0 et OMPS V0.5 à 532 nm dans la bande de latitude $0^\circ\text{S} - 65^\circ\text{S}$.

3.2.2.5 Latitude équivalente

Un des problèmes majeurs dans l'étude de l'ozone est de parvenir à distinguer les variations liées à la chimie de celle liées à la dynamique. L'une des méthodes permettant de distinguer la dynamique est la combinaison de traceurs passifs avec des calculs de trajectoires. Les cartes isentropiques quotidiennes de vorticité potentielle (PV) sont très utiles pour analyser le mouvement de l'air dans la haute troposphère et la stratosphère (Hoskins et al., 1985). Ceci est dû au fait que la PV est approximativement conservée sous mouvement adiabatique sur des échelles de temps synoptiques et qu'elle maintient des gradients suffisamment importants sur la surface isentropique (Allen et Nakamura, 2003). En effet, ses gradients monotones de pôle à pôle permettent d'utiliser la PV comme traceur et marqueur de « latitude » (Allen et Nakamura, 2003). Cependant, l'inconvénient d'utiliser la PV comme coordonnée est la variation exponentielle de son ordre de grandeur avec l'altitude ce qui rend la comparaison entre les niveaux isentropes assez complexe.

Dans cette thèse, nous proposons d'utiliser la latitude équivalente comme traceur dynamique qui est l'une des variables dérivées de la PV. Les premiers à avoir introduit le concept de latitude équivalente ont été Mc Intyre et Palmer (1984) et Butchart et Remsberg (1986). La latitude équivalente $Eq.Lat$ correspond par définition à une valeur donnée de PV directement fonction de l'aire contenue à l'intérieur d'une ligne d'iso-vorticité potentielle (McIntyre et Palmer, 1984; Butchart et Remsberg, 1986) et est donnée par l'équation 7 :

$$Eq.Lat = \arcsin\left(\frac{A}{2\pi a^2} - 1\right) \quad (7)$$

où $A = A(q, \theta, t)$ est la surface dans laquelle la PV est inférieure à q (correspondant au maximum de PV) pour un niveau isentrope θ à l'instant t , et a est le rayon de la terre.

Les champs de PV sont calculés à différentes surfaces isentropiques par le modèle MIMOSA (*Modèle Isentrope du transport Méso-échelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection*) sur une couverture spatiale globale dont la discrétisation élémentaire est de 37 km. MIMOSA a été initialement développé au Service d'Aéronomie du CNRS pour le projet européen METRO (*Transport Meridional d'Ozone dans la Basse Stratosphère*) pour capturer et quantifier les structures filamentaires qui traversent l'Europe en hiver et au printemps, et évaluer l'importance de ces structures dans le transport irréversible de l'air polaire dans les moyennes latitudes (Hauchecorne et al., 2002).

L'utilisation de champs météorologiques sont nécessaires pour le calcul de la PV et proviennent des analyses du centre Européen ECMWF (*European Centre for Medium Range Weather Forecasts*) situé à Reading en Grande-Bretagne. Les données sont assimilées pour calculer les champs 3D sur une grille toutes les 6h00 et sont ensuite archivées sous forme d'harmonique sphérique (données spectrales). La résolution spectrale utilisée est T106, correspondant à la troncature triangulaire d'ordre 106 (seuls les 106 premiers nombres zonaux sont pris en compte dans la reconstruction du champ). Cette résolution grande échelle n'est pas assez fine pour pouvoir obtenir les filaments. La résolution spatiale de la grille gaussienne est de $1.125^\circ \times 1.125^\circ$, correspondant à 320 points en longitude et 160 en latitude. Les champs météorologiques sont calculés sur 14 niveaux de pression, de 1000 à 10 hPa. Les champs de vents isentropiques (données ECMWF) sont introduits ensuite dans MIMOSA où ils sont interpolés sur une grille de projection azimutale équidistante avec une résolution très fine (pour le calcul de filaments), typiquement plusieurs points par degré. La PV est soumise à une advection isentropique en utilisant un pas de temps d'une heure et ré-interpolée sur une grille de longitude-latitude régulière.

Dans une atmosphère idéalement adiabatique sans frottement, la PV isentropique est un traceur conservé avec un gradient latitudinal positif en moyenne zonale dans toute la stratosphère (c'est-à-dire croissant en latitude dans l'hémisphère nord) et avec un gradient plus marqué dans les régions séparant le vortex polaire des plus basses latitudes (Leblanc et al., 2006). Par conséquent, la PV présente des caractéristiques de traceur similaires à celles de l'ozone dans la basse stratosphère et, dans des conditions d'équilibre naturel de l'ozone, on peut s'attendre à un degré élevé de corrélation entre le PV stratosphérique et l'ozone (Leblanc et al., 2006).

3.3 Méthodes des ondelettes

Comme l'analyse de Fourier, l'analyse par ondelettes traite de l'expansion des fonctions en termes d'un ensemble de fonctions de base. Contrairement à l'analyse de Fourier, l'analyse par ondelettes étend les fonctions en termes d'ondelettes générées sous la forme de translations et de dilatations d'une fonction fixe appelée l'ondelette mère (Yamamoto et Lee, 1994). L'ondelette mère $\psi(\eta)$ utilisée dans cette étude est celle de Morlet, qui a pour équation une

onde plane modulée par une fonction gaussienne représentée par l'équation 10 :

$$\psi(0) = 0 \quad (9)$$

$$\psi(\eta) = (e^{-i\omega_0\eta} - e^{-\frac{\omega^2}{2}})e^{-\frac{\eta^2}{2}} \quad (10)$$

où, ω_0 est la fréquence et η un paramètre temps non dimensionnel. La fréquence ω_0 est souvent choisie de sorte que le rapport entre le premier maximum de ψ et le deuxième maximum soit d'environ 1/2 :

$$\omega_0 = (2/\ln 2)^{1/2} \sim 5,336\dots$$

En pratique, la valeur prise de ω_0 est généralement 5 ou 6 (6 dans notre étude). Pour cette valeur de ω_0 , le second terme de l'équation est si petit qu'il peut être négligé en pratique. Par conséquent, l'ondelette de Morlet peut être considérée comme une forme d'onde gaussienne modulée. Le modèle de Morlet pour une ondelette d'une longueur de 100 observations et pour $\omega_0 = 6$ est montré sur la Figure 3.5.1.

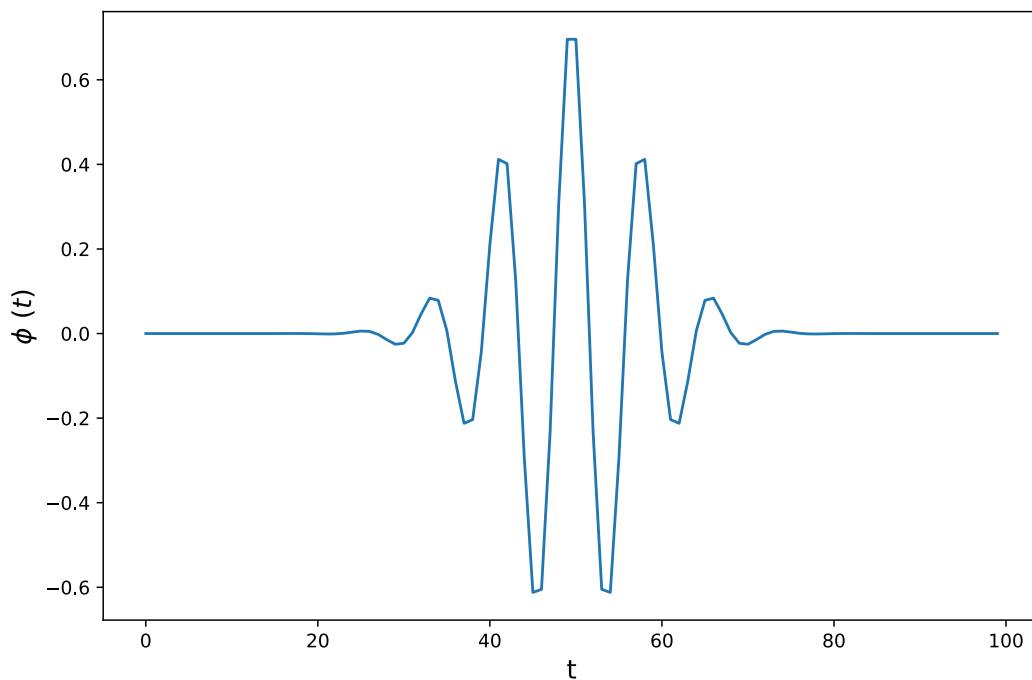


Figure 3.5.1. Ondelette de Morlet pour $\omega_0 = 6$.

La motivation d'utiliser la transformée en ondelette vient de la limitation de la transformée de Fourier aux signaux ayant une fréquence de signal non stationnaire. Tandis que la transformée en ondelette est capable de gérer cette non stationnarité en décomposant le signal en une famille d'ondelettes étalées et dilatées. La transformée en ondelettes continue d'une série temporelle discrète X_n , avec un intervalle de temps égal Δt , avec $n = 0, \dots, N-1$, est définie par l'équation 11 :

$$W_n(s) = \sum_{n'=0}^{N-1} x_n \psi^* \left[\frac{(n-n')\Delta t}{s} \right] \quad (11)$$

où le terme (*) indique le complexe conjugué et s la fréquence (échelle de dilatation) du signal. Les différents modes de variabilité ainsi que les amplitudes du signal temporel sont obtenus par la variation et la translation de la fréquence s à un instant $n - n'$ (Torrence et Compo, 1998).

L'équation 10 montre que la transformée est de forme complexe, or les séries géophysiques possèdent exclusivement des composantes réelles, donc une partie imaginaire nulle, ce qui implique une phase infinie. Le spectre de puissance de la transformée est donc le carré de l'amplitude, $|W_n(s)|^2$. Kestin et al. (1998) ont montré l'importance de normaliser le spectre de puissance par rapport à la variance du signal (σ^2) dans le but de rendre unitaire la variance totale de chaque série permettant ainsi une meilleure comparaison des spectres issus de l'analyse de différentes séries. La formulation de normalisation est déterminée par l'équation 12 :

$$X_n = \frac{(X_n - \mu(X))}{\sqrt{\sigma^2}} \quad (12)$$

Dans le but de mettre en évidence l'intensité moyenne des fréquences les plus significatives d'un signal, Percival (1995) a suggéré de moyenniser le spectre de puissance ce qui a donné le spectre d'ondelettes globale :

$$\overline{W^2}(s) = \frac{1}{N} \sum_{n=0}^{N-1} |W_n(s)|^2 \quad (13)$$

4. Validation des colonnes totales d’ozones satellitaires par comparaison aux mesures SAOZ issues du réseau NDACC

4.1	Introduction.....	- 87 -
4.2	Description of instruments and Total Ozone Column data	- 89 -
4.2.1	UV-VISIBLE SAOZ spectrometer	- 89 -
4.2.2	Satellite instruments	- 89 -
4.2.2.1	EP TOMS.....	- 89 -
4.2.2.2	SBUV.....	- 89 -
4.2.2.3	ESA CCI-processed GOME, SCIAMACHY, OMI & GOME 2.....	- 90 -
4.2.2.4	OMI DOAS & OMI TOMS.....	- 91 -
4.2.2.5	IASI	- 91 -
4.2.2.6	OMPS SUOMI NPP	- 92 -
4.2.2.7	OMI/MLS TROPOSPHERIC OZONE.....	- 92 -
4.2.3	TOTAL OZONE COLUMN TIMESERIES	- 92 -
4.2.3.1	Total Ozone Column seasonality	- 93 -
4.2.3.2	TOC interannual variability.....	- 94 -
4.3	SAT-SAOZ biases.....	- 95 -
4.3.1	SAT-SAOZ time series.....	- 95 -
4.3.2	Mean Bias	- 96 -
4.3.3	Temporal Drift	- 97 -
4.3.4	Seasonality	- 98 -
4.4	Origins of SAT-SAOZ variations	- 99 -
4.4.1	Biases.....	- 99 -
4.4.1.1	Spectral parameter.....	- 99 -
4.4.1.2	Ozone profile sensitivity (Averaging Kernels).....	- 101 -
4.4.1.3	Synthesis	- 102 -
4.4.2	Origins of SAT-SAOZ seasonality	- 102 -
4.4.2.1	SAOZ Air Mass Factor.....	- 103 -
4.4.2.2	Tropospheric ozone	- 104 -
4.4.2.3	Satellites clouds masking.....	- 105 -
4.4.2.4	Synthesis	- 107 -
4.4.3	Origin of the temporal drift.....	- 107 -
4.4.3.1	Ozone profile change in latitude	- 107 -
4.4.3.2	Synthesis	- 110 -
4.5	General conclusions	- 111 -

Résumé

Ce chapitre est l'objet d'un article qui va être soumis à *Atmospheric Chemistry and Physics* (ACP), dont le résumé est ci-dessous.

Depuis la découverte du « trou d'ozone » en antarctique (Farman et al., 1985), l'ozone est particulièrement surveillé. Adopté en 1987, le Protocole de Montréal et ses amendements ont permis la réduction des substances appauvrissant la couche d'ozone (SAO) à l'aide d'observations au sol et satellitaires. La ceinture intertropicale est une région clé pour l'ozone stratosphérique et le climat. Quantifier la variabilité et les tendances de l'ozone aux tropiques à partir d'observations historiques est un élément primordial pour comprendre l'impact des changements climatiques sur la couche d'ozone car le bilan de l'ozone tropical est fortement piloté par l'intensité de la circulation stratosphérique et sa variabilité. Par conséquent, il est important d'avoir de longues séries de mesures sol et satellitaires de la colonne tropicale avec des biais bien quantifiés.

L'objectif de cette étude est d'évaluer la qualité des mesures d'ozone total (*Total Ozone Column* : TOC) des séries satellitaires par rapport à celles de l'instrument au sol UV-Visible SAOZ (Pommereau et Goutail, 1988) (*Système d'Analyse par Observation Zénithale*) issu du réseau NDACC (*Network for Detection of Atmospheric Composition Changes*) aux deux stations tropicales, Bauru (22°S, 49°O) et la Réunion (21°S, 55°E). Les mesures satellitaires considérées sont celles de SBUV, TOMS, GOME, GOME 2, OMI, OMI DOAS, OMI TOMS et SCIAMACHY. L'objectif est de produire des jeux de données robustes et homogènes pour la région tropicale. L'analyse des séries de TOC a mis en évidence une variabilité interannuelle largement dominée par l'influence de la QBO et du cycle solaire de 11 ans. L'analyse des différences entre observations satellitaires et SAOZ met en évidence l'existence d'un biais avec un cycle saisonnier aux deux stations. L'existence de biais entre les données satellitaires et entre données satellitaires et SAOZ est observée. Il faut souligner qu'en général, les biais sont faibles, de l'ordre de 1-2%. L'un des résultats les plus déroutants est une dérive du biais entre SAOZ et toutes les données satellitaires entre 2003-2004 et 2016 à Bauru, contrairement à la Réunion où aucun changement significatif du biais n'est observé. Enfin, cette analyse a mis en évidence l'existence de biais entre les différents jeux de mesures. Différents facteurs ont été étudiés pour expliquer ces biais entre les différents jeux de mesures. Les causes les plus plausibles des biais

systematiques sont les différences de caractéristiques instrumentales : bandes de longueur d'onde de la mesure (qui va de l'UV à l'infrarouge), sections efficaces y compris la dépendance en température, et le traitement d'inversion des données brutes. La saisonnalité du biais entre SAOZ et les données satellitaires a probablement comme origine des variations saisonnières de la couverture nuageuse, en partie liées à la saison des cyclones à la Réunion, et les événements convectifs et orageux pendant la saison estivale à Bauru. Contrairement aux instruments spatiaux, le SAOZ est beaucoup moins sensible à la présence des nuages du fait d'un parcours optique essentiellement dans la stratosphère. Il est aussi possible que la saisonnalité des climatologies de profils zonaux utilisée dans le calcul du facteur de masse d'air (AMF, qui permet de calculer la colonne verticale d'ozone, c'est-à-dire la TOC, à partir de la mesure SAOZ de la colonne oblique) ne soit pas entièrement correcte, ce qui contribuerait à un artefact de saisonnalité de la mesure SAOZ et donc du biais entre SAOZ et les observations satellitaires.

Concernant la dérive à Bauru non observée à la Réunion, elle pourrait être expliquée par une dérive de la position de Bauru par rapport à l'écoulement moyen en stratosphère. Cette dérive est mise en évidence en suivant la position de la station en latitude équivalente (coordonnée dérivée de la vorticité potentielle). Ces variations à long terme de latitude équivalente sont certainement accompagnées de variations du profil d'ozone. Comme la climatologie des profils utilisée dans le calcul de l'AMF pour la restitution SAOZ est seulement basée sur la latitude géographique, la forme du profil d'ozone ne change pas d'une année sur l'autre ce qui pourrait introduire un biais dérivant de la TOC de SAOZ.

4.1 Introduction

The stratospheric ozone layer plays a central role in the Earth's environment. It absorbs harmful solar ultraviolet (UV) radiation, protecting living organisms at the Earth's surface. This UV absorption is also the main source of heat in the stratosphere and hence largely controls the thermal and dynamical structure of the atmosphere. The discovery of the so-called ozone hole in 1985 (Farman et al., 1985) has demonstrated the negative impact of Ozone Depleting Substances (ODS), CFCs and halons, on the ozone layer. As a result of this discovery, the production and emission of most ODS are now banned or, at least, strictly regulated within the framework of the Montreal Protocol and its amendments. The full recovery of the ozone layer from ODS is expected to take place around 2060 (WMO, 2014).

The monitoring of the evolution of the ozone layer is based on a global coverage of observations. A great deal of effort has been devoted to the identification of ozone trends in various regions. This ideally requires time series as homogeneous and as long as possible. It was one of the reasons to set up the network of ground-based UV-Visible SAOZ (Système d'Analyse par Observation Zénithale) spectrometers (Pommereau and Goutail, 1988) as part of the international Network for the Detection of Stratospheric Composition Change (NDACC). The SAOZ network now comprises 15 instruments in operation distributed between the poles allowing the acquisition of daily measurements of total columns of O₃ and NO₂. SAOZ time series are more than 20 years long. The SAOZ datasets have also been compared with other ground-based instruments, Dobson and Brewer (Van Roozendaal et al., 1998), and satellite surveys (Tohir et al., 2015).

The tropics is the region where most of the stratospheric ozone is produced and is the main entry point for tropospheric chemical species and water vapour into the stratosphere that are redistributed thereafter to mid- and high latitudes by the Brewer-Dobson circulation (WMO, 1999). The tropics are the only latitudinal region where no significant long-term trends in total ozone column (TOC) have been reported so far, though chemistry-climate models (CCMs) predict a small decrease in the tropical stratospheric ozone column (WMO, 2014). It is possible that this small decrease might be compensated in the column by an increase in tropical tropospheric ozone (Shepherd et al., 2014).

The only SAOZ stations data available in the tropics are those of Reunion Island in the Indian Ocean (21°S, 55°E) and the Bauru site in a continental region of Brazil (22°S, 49°W). A comparison of SAOZ TOC with satellite datasets (EP-TOMS, GOME GDP5, SCIAMACHY OL3, OMI DOAS, OMI TOMS) has been carried out for the tropics by Pastel et al. (2014) who

found a mean bias of -1.9 % and + 0.1 % at Bauru and Reunion, respectively. Several possible sources of biases between SAOZ and satellite data have been identified such as differences in absorption cross-sections and measurement local time. The use of climatological profiles in SAOZ retrieval may also result into uncertainties of up to 5 % in SAOZ data in some cases (Hendrick et al., 2011). Another source of biases is the fact that SAOZ measurements are not sensitive to tropospheric ozone compared to the nadir viewing satellite measurements (Thompson et al., 2014).

The purpose of the present study is to extend Pastel et al. (2014) work by considering longer periods (1993-2016) and recently updated satellite datasets. It also aims at understanding better and, when possible, resolving some of the differences between tropical SAOZ and satellite data at Bauru and Reunion stations. This is important because SAOZ time series are used as reference for assessing the quality and consistency of satellite datasets and understanding the differences between satellite datasets obtained at different periods. Homogenized composite satellites datasets are essential for trend detection and analysis. The satellite datasets considered here are TOC time series from GOME, OMI, SCIAMACHY and GOME 2 all processed by the European Space Agency's (ESA) Climate Change Initiative (CCI) ozone project [<http://www.esa-ozone-cci.org>], as well as data SBUV/2 (Bhartia et al., 2013), OMI DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy) (Veefkind et al., 2006), OMI TOMS (McPeters et al., 2008), OMPS NPP (Flynn et al., 2014) and IASI (Boynard et al., 2016). The paper is organised as follow: section 2 describes the different instruments considered, and section 3 provides a total ozone column analysis (seasonality and interannual variability); Section 4 provides a discussion on the possible origins of SAT-SAOZ variations and drift; and the last section summarises the conclusions.

4.2 Description of instruments and Total Ozone Column data

This section describes the operating ranges, wavelength bands, cross sections, and retrieval algorithms of the various instruments used in this study.

4.2.1 UV-VISIBLE SAOZ spectrometer

The SAOZ instrument was developed in 1988 after the ozone hole discovery in Antarctica in 1985 and is part of the NDACC network. The network is now made up of 15 instruments spread over the globe. The instrument is a UV-Visible spectrometer observing sunlight scattered by the atmosphere at zenith to retrieve spectral signature of O₃, NO₂, H₂O and O₄ from the ground at sunset and sunrise in all weather conditions (Pommereau and Goutail, 1988). The species are measured by a method of differential absorption in the visible, in the Chappuis bands centred around 500 nm. Ozone absorption cross-sections used in the retrieval are those of Bogumil et al. (2003), thereafter referred as Bogumil.

4.2.2 Satellite instruments

4.2.2.1 EP TOMS

Earth Probe Total Ozone Mapping Spectrometer (EP - TOMS) is the latest in a series of four NASA TOMS instruments launched in July 1996 onboard the heliosynchronous nadir viewing satellite Earth Probe (McPeters et al., 1998) with a local equator crossing time at 11:15 LT (Local Time). EP-TOMS data are available for the 1996-2005 period. Ozone is measured at 317.5 and 331.2 nm wavelengths. The algorithm used to obtain the ozone column is TOMSv8 (Wellemeyer et al., 2004). Ozone absorption cross-sections are taken from Bass and Paur (1984), thereafter referred to as BP.

4.2.2.2 SBUV

The Solar Backscatter UltraViolet (SBUV) is a series of 11 instruments launched on NASA and NOAA satellites since April 1970. Nimbus 4 was the first instrument. Then came the Nimbus 7 instrument launched in October 1978 up to NOAA 19, until today. The nadir sighting instruments are in polar orbit measuring the solar spectrum backscattered by the atmosphere at four wavelength band of the near ultraviolet (312.5, 317.6, 331.2 and 339.9 nm) (Bhartia et al., 1996) with a local equator crossing time between 8:00 and 16:00 LT (all instruments). The

spatial resolution of the instrument is 170 km x 170 km. The algorithm used for processing ozone data is version 8.6 (Bhartia et al., 2013; Kramarova et al., 2013; Labow et al., 2013). Ozone absorption cross-sections are from BDM.

4.2.2.3 ESA CCI-processed GOME, SCIAMACHY, OMI & GOME 2

The Ozone Climate Change Initiative (CCI) is a project of the European Space Agency (ESA) to improve O₃ datasets from different satellites. It aims at minimizing the sources of bias and uncertainties by applying the same retrieval algorithm to different satellite datasets (GOME, GOME 2, SCIAMACHY, OMI). The GODFIT (GOME-type Direct Fitting) retrieval algorithm was developed for this purpose. The latest version is the GODFITv4 replacing the GODFITv3 (Lerot et al., 2014; Van Roozendaal et al., 2012). Changes with the respect to the first versions include new ozone cross sections, thereafter referred as SG (Serdyuchenko-Gorshchev) (Serdyuchenko et al., 2014) and a new climatology of ozone profiles based on ozone sondes and MLS satellite data (Labow et al., 2015). TOC is derived by a least squares minimization method of the difference between the radiation simulated by the LInearized Discrete Ordinate Radiatif Transfer (LIDORT) model (Spurr et al., 2008) and the radiation measured by the instrument in the 325-335 nm absorption band.

4.2.2.3.1 GOME

Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) (Burrows et al., 1999) is a nadir scanning UV spectrometer on ERS-2, a heliosynchronous satellite launched in April 1995. The spatial resolution of the instrument is 320 km x 40 km with a local equator crossing time at 10:30 LT. The spectrometer measures the solar radiation scattered by the atmosphere and GOME TOC is retrieved with GODFITv4 algorithm. The GOME TOC are covering the 1995-2011 period.

4.2.2.3.2 OMI

The Ozone Monitoring Instrument (OMI) is a nadir looking spectrometer launched in July 2004 aboard EOS-Aura in a solar-heliosynchronous polar orbit at 705 km altitude by the NASA with a spatial resolution of 25 km x 13 km and an equator crossing time at 13:45 LT and has been providing ozone data since August 9, 2004 (Levelt et al., 2006). The OMI TOC is retrieved with GODFITv4 will be simply referred as OMI CCI.

4.2.2.3.3 SCIAMACHY

The Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography (SCIAMACHY) was launched aboard ENVISAT in March 2002 (Bovensmann et al., 1999) until April 2012. ENVISAT is a sun-synchronous nadir sighting satellite with an equator crossing time in descending node of 10:30 LT. The nominal sweep is 960 km with a spatial resolution of 60 km x 30 km. The data product of the total ozone column was updated with the GODFIT v4 algorithm and will be referred as SCIA CCI. The SCIAMACHY TOC are covering the 2002-2011 period.

4.2.2.3.4 GOME 2

The Global Ozone Monitoring Experiment-2 (GOME-2) instrument was installed on the MetOp-A satellite launched in October 2006 in a polar sun-synchronous orbit at an altitude of 817 km. MetOp-A was developed jointly by ESA and EUMETSAT (Munro et al., 2006; 2016) that crosses the equator at 9:30 LT in descending orbit. GOME-2 is a nadir sighting spectrometer. The global coverage of a sunny part of the atmosphere can be achieved in 1 day. The spatial resolution of GOME 2 is 80 km x 40 km, four times smaller than that of GOME (320 km x 40 km), and improved polarization and calibration (Munro et al., 2006). The ozone column is retrieved with the GODFIT v4 algorithm and will be referred as GOME 2 CCI.

4.2.2.4 OMI DOAS & OMI TOMS

In addition to GODFITv4, two other retrieval algorithms are used with OMI: DOAS (Bhartia et Wellemeyer, 2002; Veefkind et al., 2006) and TOMSv8 (Bhartia and Wellemeyer, 2002). The DOAS algorithm processes data in the near UV, from 331.1 nm to 336.1 nm band, (Veefkind et al., 2006) with BDM cross sections. The TOMSv8 algorithm processes data in the far UV, at three wavelengths, 312.6 nm, 317.6 nm and 331.3 nm with cross sections taken from Bass and Paur (1984), thereafter referred as BP cross sections. OMI TOMS data analysed here are from the TOMS v8.5 version (Bhartia and Wellemeyer, 2002).

4.2.2.5 IASI

The near-infrared interferometer (IASI) is a nadir sighting sounder designed by CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) and placed aboard the European MetOp-A satellite. It has a spatial resolution of 50 km x 50 km. IASI measures the infrared thermal radiation emitted by the

surface and the Earth's atmosphere. Ozone data are processed using the FORLI-O3 (Fast Optimal Retrievals and Layers for IASI) retrieval code at 9.6 μm absorption band (Clerbaux et al., 2009; Hurtmans et al., 2012). IASI crosses the equator at 9:30 LT in descending node and at 21:30 LT in ascending mode.

4.2.2.6 OMPS SUOMI NPP

The OMPS (Ozone Mapping Profiler Suite) instrument launched in 2011 aboard the Suomi NPP (National Polar Orbiting Partnership) satellite is composed of 3 sensors providing 3D distribution of ozone and other atmospheric constituents since 2012 (Flynn et al., 2004). The Nadir Mapper (NM) sensor measures TOC to four wavelengths (313, 318, 331 and 340 nm) with a spatial resolution of about 50 km x 50 km. The TOMSV8 algorithm (Bhartia and Wellemeyer, 2002) is used to retrieve the TOC with NM. Ozone absorption cross-sections are those of BDM. The equator crossing time of OMPS-NPP is 1:30 LT in ascending node and 10:30 UTC in descending node [npp.gsfc.nasa.gov]. The OMPS-NPP TOC will be referred as OMPS.

4.2.2.7 OMI/MLS TROPOSPHERIC OZONE

The tropospheric ozone columns are derived from the difference between TOC from OMI instrument (2.2.3.2) and the stratospheric column of the MLS (Microwave Limb Sounder) instrument, launched in July 2004 and still operating. Data are available on a NASA website [<http://acdb-ext.gsfc.nasa.gov>] (Ziemke et al., 2006).

The measurements of each instrument have been described in this section to analyse the biases, variations and trends of TOCs between satellites and stations.

4.2.3 TOTAL OZONE COLUMN TIMESERIES

TOC time series of each instrument at Bauru and Reunion are shown in Figure 1. The period of analysis expands from 1995/11 to 2016/12 at Bauru and 1993/08 to 2016/12 at Reunion. Overall, the TOC is 10 DU (3 %) larger at Reunion than at Bauru. Most visible temporal variations are seasonal. SAOZ and satellite TOCs seem in good agreement except at Bauru towards the end of the period when the SAOZ time series (red line) appear to differ from satellites data. At first, the seasonality will be analysed and then the interannual variability.

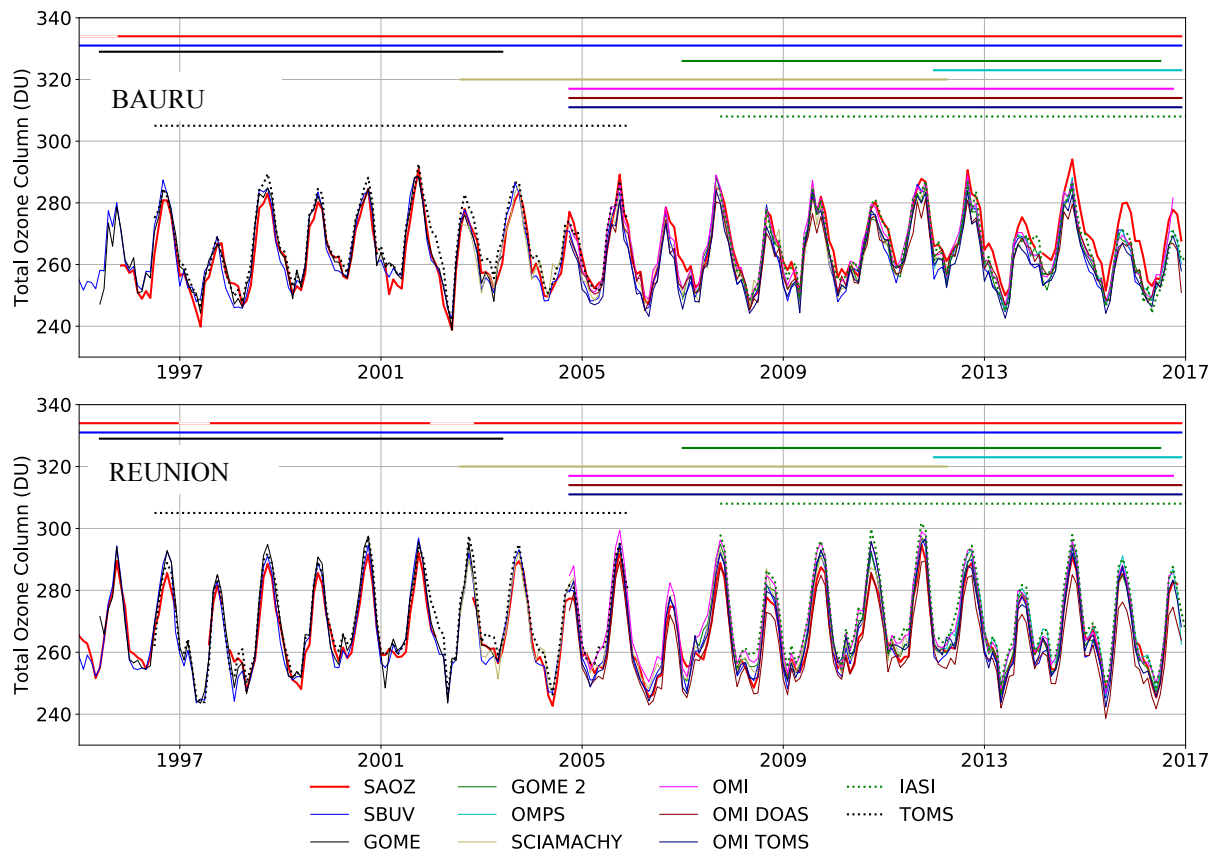


Figure 1. Time variation of monthly mean TOCs of the various instruments and their operating periods at Bauru (top panel) and Reunion (bottom panel).

4.2.3.1 Total Ozone Column seasonality

Shown in figure 2 are the satellites and SAOZ TOCs seasonality at Bauru on the left and Reunion on the right. The TOCs are showing a maximum in October and a minimum in May at both stations. At Bauru, SAOZ TOC is similar to all satellites. The seasonality is of 26 DU at Bauru. At Reunion, the satellites show a larger TOC than SAOZ. Seasonality is 35 DU at Reunion. A secondary maximum is observed in March-April. OMI DOAS shows a smaller TOC by about 7 DU during August-November in Bauru and on the entire year at Reunion.

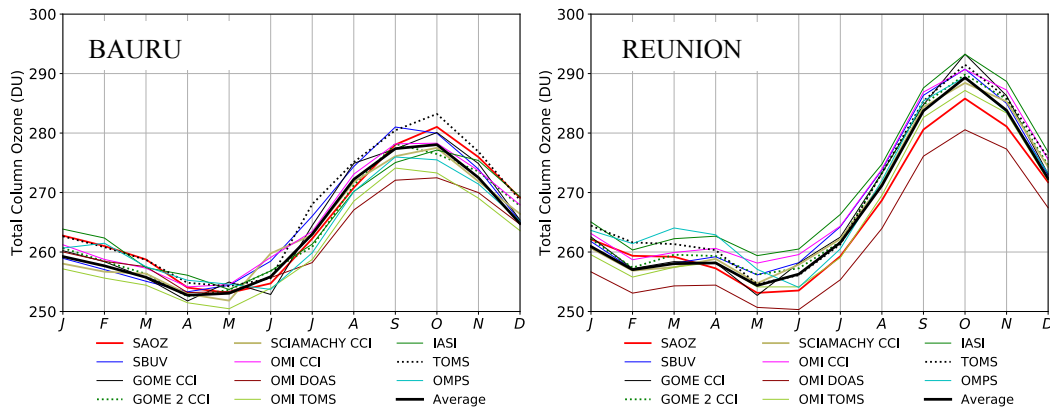


Figure 2. Monthly mean SAOZ and satellites TOC.at Bauru (left) and at Reunion (right). Each satellite is indicated by a different colour. The black line is the average between all satellites.

4.2.3.2 TOC interannual variability

Figure 3 shows the time evolution of the 12-month running-mean of satellites and SAOZ TOCs at Bauru (top) and Reunion (bottom). The similarity of TOC variability measurements at both stations indicates the contribution of various cycles at different time scales which exclude instrumental origins. The mean column is maximum in 2001 and 2012 in phase with the 11-year solar cycle on ozone. The 26-month quasi-biennial cycle of the QBO is also observed over the entire period with more visible peaks in 2006, 2008 and 2014.

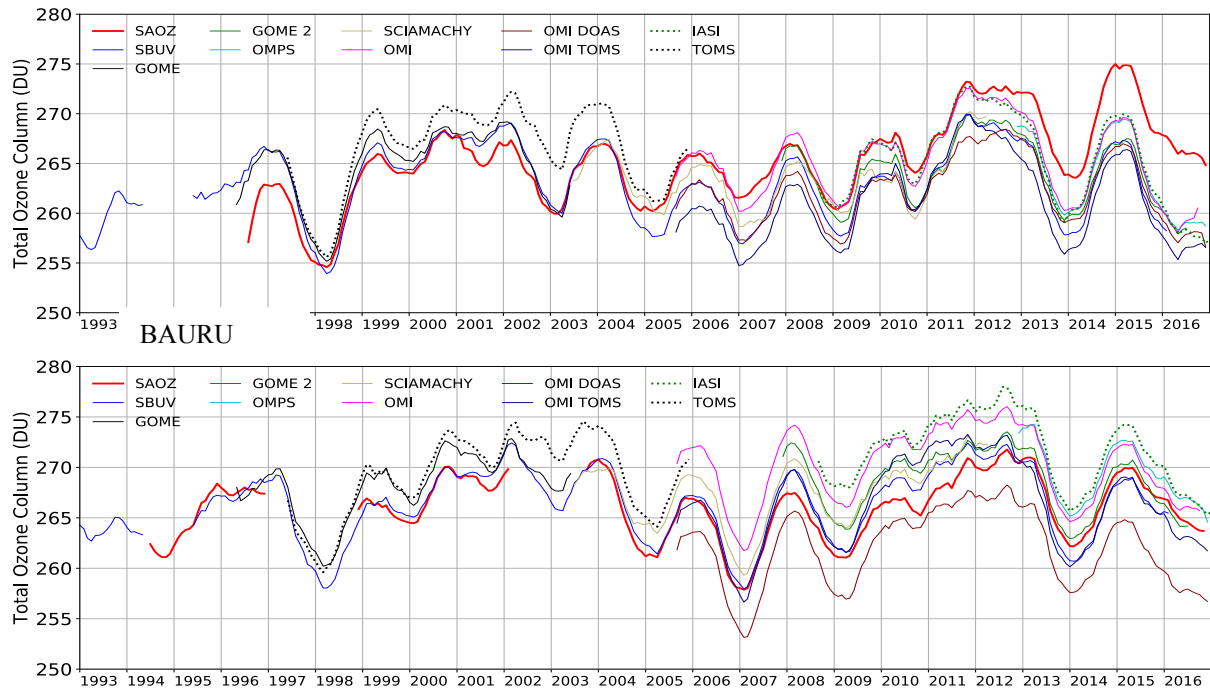


Figure REUNION tion of TOC 12-months running mean at Bauru (top) and Reunion (bottom).

At Bauru, SAOZ is lower than the SBUV, GOME and TOMS before 2004 (only satellites operating during this period). From 2004, the TOC SAOZ is increasing compared to satellites. The increase is more pronounced from 2011 with a difference between TOC SAOZ and Satellites of about 7 DU. OMI CCI, OMPS and IASI data are larger than other satellite data. OMI TOMS and OMI DOAS do show the lowest TOC.

At Reunion, the trend is smaller. In contrast to Bauru, the satellite data are larger than SAOZ except OMI DOAS which observes a difference with SAOZ of about 5 DU. IASI, OMI CCI and OMPS are the largest. Satellites TOCs are larger by 7 DU compared to satellite data at Bauru. Satellite TOCs are more scattered than at Bauru by ± 5 DU, depending on the satellite.

4.3 SAT-SAOZ biases

The TOC difference between satellite and SAOZ will be referred thereafter as SAT-SAOZ. The period covered here extends from 1993 to 2016.

4.3.1 SAT-SAOZ time series

Figure 4 shows the SAT-SAOZ time series (in %) at Reunion and Bauru. The different colours correspond to different satellites. Over the entire records, SAT-SAOZ varies between +4 and -6 % at Bauru and between +4 and -4 % at Reunion, with seasonal amplitude exceeding 4% on some years. Superimposed on seasonal variations, there are also year-to-year fluctuations at both stations, linked to the QBO (Quasi Biennial Oscillation). SAT-SAOZ results appear less spread at Bauru by 10 DU than at Reunion, indicating smaller differences between satellites at Bauru. Interestingly, in contrast to Reunion, there is a temporal drift (decline) in the SAT-SAOZ bias at Bauru for all satellites, which starts in the beginning of 2000. Regarding seasonal variations, there is a maximum during the austral summer and a minimum during the winter for all the satellites at both stations. In contrast at Bauru, a reduction of the seasonality is observed at Reunion from 2012 onward by 0.5% for all the satellites. There are deep minima at the end of 1997 and beginning of 2007 at both stations for all satellite instruments. Finally, a sharp increase in the seasonal amplitude is observed at Bauru at the end of 2015 but absent at Reunion.

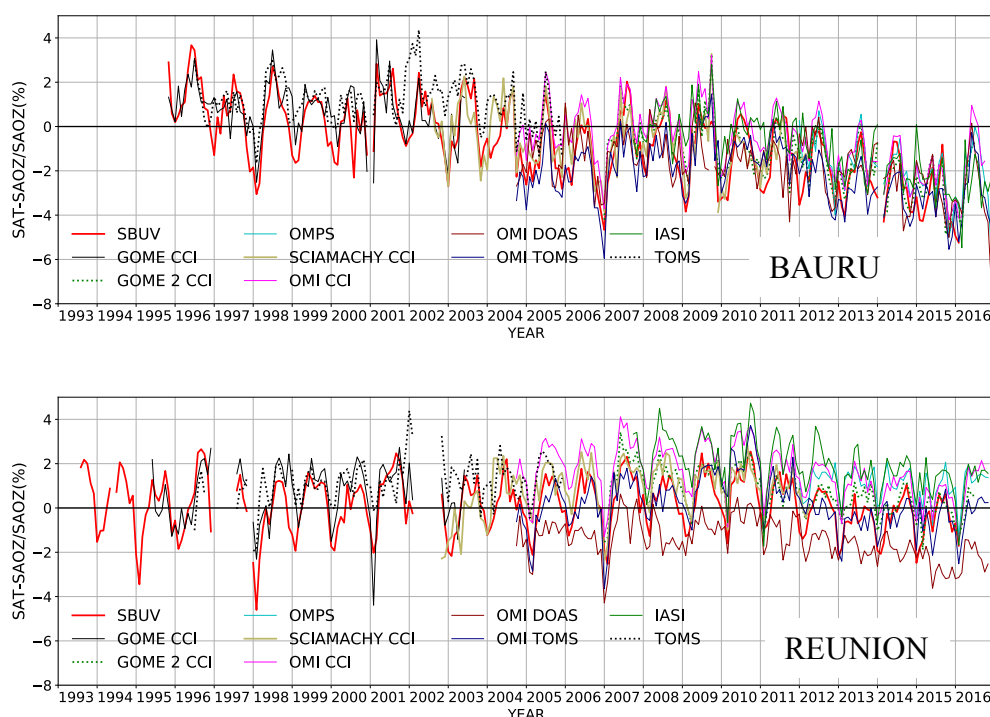


Figure 4. Time variation of monthly mean SAT-SAOZ at Bauru (top panel) and at Reunion (bottom panel). Each satellite is indicated by a different colour.

4.3.2 Mean Bias

Table 1 shows the bias and standard deviation (in %) of the SAT-SAOZ bias for each satellite at both stations. The biases absolute values are of the order of 1 % typically and never exceed 2 % for all the satellites, except OMI TOMS (2.15 %). The largest biases at Bauru are found for OMI TOMS, OMPS, and OMI DOAS whereas the largest biases at Reunion are for IASI, OMI CCI, and TOMS. The biases are negative (SAT<SAOZ) for all satellites at Bauru except for TOMS and GOME CCI. It is the opposite at Reunion with positive mean biases for all the satellites except OMI DOAS. Overall, there is a rather large 1.6 % difference between satellites mean biases at Bauru (-0.84 %) and Reunion (+0.75 %).

SATELLITES	BAURU		REUNION	
	Mean bias (%)	Standard deviation (%)	Mean bias (%)	Standard deviation (%)
SBUV	-0.75	1.79	+0.15	1.23
TOMS	+1.15	1.09	+1.17	1.00
GOME CCI	+0.70	1.21	+0.63	1.28
SCIAMACHY CCI	-0.66	1.36	+0.83	1.14
OMI CCI	-0.64	1.49	+1.59	1.15
OMI DOAS	-1.74	1.34	-1.45	0.90

OMI TOMS	-2.15	1.37	+0.17	1.19
GOME 2 CCI	-1.37	1.49	+0.71	1.03
IASI	-1.00	1.46	+1.93	1.19
OMPS	-1.88	1.27	+1.06	0.71
Average	-0.84	1.39	+0.75	1.06

Table 1. Mean bias and standard deviation of SAT-SAOZ (in %) for all satellites. The analysis goes from 1993/08 to 2016/12 at Reunion and 1995/11 to 2016/12 at Bauru. The operational period of each satellite is indicated in Table 4.

4.3.3 Temporal Drift

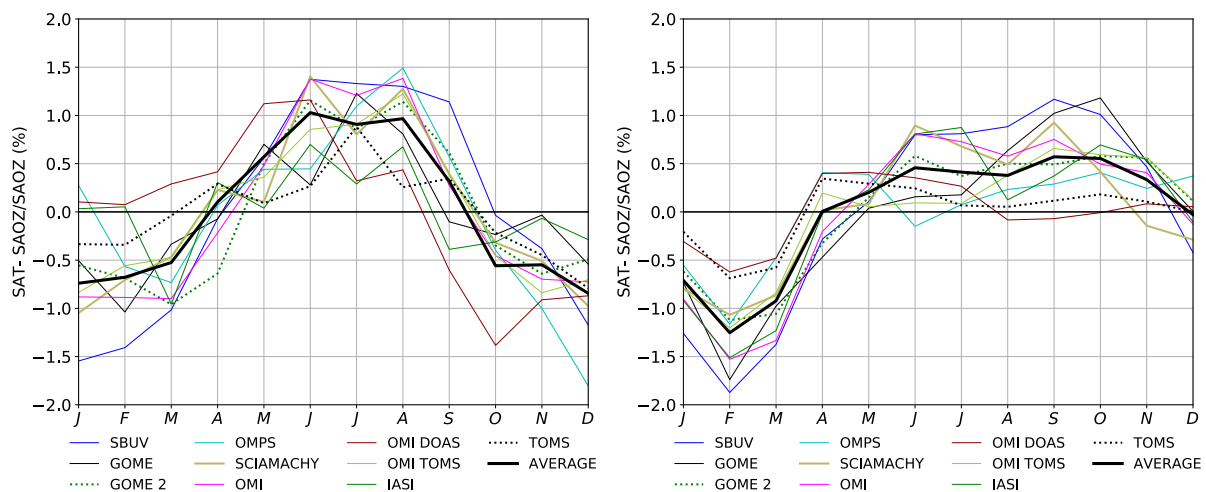
Figure 4 shows a first estimation of the SAT-SAOZ differences at both stations. A negative drift at Bauru is highlighted from about 2004-2005 onwards. Table 2 presents the mean SAT-SAOZ values for the 2004-2005 and 2015-2016 periods at both stations where only satellite instruments operating during both 2-years periods are considered. At Bauru, SBUV exhibits a small bias in 2004-2005 but a much larger in 2015-2016. The change between the two periods exceeds 2.5 %. SAT-SAOZ for OMI CCI and OMI DOAS exhibit similar, albeit smaller drifts. The smallest change (of about 1 %) is observed on OMI TOMS. The average of all SAT-SAOZ changes is about 1.80 % at Bauru and is statistically different from zero at two standard deviation. At Reunion, the changes from 2004-2005 to 2015-2016 are smaller. They do not exceed 1.2 % for the 4 satellite datasets whereas the changes exceed 1.5 % at Bauru for 3 out of the 4 satellites. The average change for all satellites is 0.8 % at Reunion but is not statistically significant.

SATELLITES	BAURU			REUNION		
	2004–2005 (%)	2015–2016 (%)	Change (%)	2004–2005 (%)	2015–2016 (%)	Change (%)
SBUV	-0.82±1.34	-3.49±1.24	-2.67	+0.10±1.13	-0.70±0.74	-0.60
OMI CCI	-0.17±1.14	-2.11±1.40	-1.94	+1.82±1.15	+0.62±0.96	-1.20
OMI DOAS	-1.41±1.05	-2.96±1.51	-1.55	-1.30±0.77	-2.46±0.63	-1.16
OMI TOMS	-2.28±1.06	-3.24±1.26	-0.96	-0.26±1.15	-0.50±0.91	-0.24
Average	-1.17±1.14	-2.95±1.35	-1.78±1.24	+0.22±1.05	-0.76±0.81	-0.80±0.93

Table 2. Mean SAT-SAOZ (in %) for the 2004-2005 and 2015-2016 periods and change between the two periods (in %) at Bauru and Reunion. OMI CCI, OMI DOAS, and OMI TOMS are the data processed by GODFITv4 where OMI DOAS and OMI TOMS data are processed with their respective algorithms.

4.3.4 Seasonality

Another salient feature in SAT-SAOZ time series seen on Figure 4 is the strong seasonality. Figure 5 shows the mean seasonal cycle of SAT-SAOZ of satellites at both stations. The mean bias with respect to SAOZ for each satellite has been removed before calculating the mean seasonal cycle. The dispersion (σ) among the seasonal cycles of the different satellites is larger at Bauru ($\sigma = 1.2\%$) than at Reunion ($\sigma = 0.7\%$). At Bauru, a minimum is observed in October-April and a maximum in July-August. The minimum season is far shorter at Reunion, where it is limited to January-March and there is a broad maximum from May to November. The seasonality amplitude is of the order of $\pm 1\%$ at both stations. Figure 4 shows that there are very large fluctuations in the seasonal cycle during some years. For instance, there is a sharp drop in SAT-SAOZ of about -4% at the end of 2006 followed by a rise to about 2% during the summer of 2007 at both stations. There is also a large seasonal cycle at Bauru in 2016 (minimum of -5% at the end of 2015 followed by a maximum of $+1\%$ during the summer of 2016) but not at Reunion.



A surprising feature is the apparent reduction of seasonality from 2012 onwards at Reunion, which is not seen at Bauru (Figure 4). In order to quantify this reduction, the seasonality of the bias is analysed for the periods 2007-2011 and 2012-2016. Table 3 shows the amplitude (min-max) of the mean seasonal cycle at both stations in 2007-2011 and 2012-2016. At Bauru, the changes in the amplitude of the mean seasonal cycle from 2007-2011 to 2012-2016 are generally small for all satellites. The average seasonality remains almost unchanged during the period. In contrast, at Reunion, the amplitude decreases by about 30-40% over the same period, for all the satellites.

SATELLITES	BAURU		REUNION	
	2007 – 2011 (%)	2012 – 2016 (%)	2007 – 2011 (%)	2012 – 2016 (%)
SBUV	1.47	1.31	1.15	0.88
OMI CCI	1.29	1.26	1.17	0.83
OMI DOAS	1.03	1.39	0.93	0.67
OMI TOMS	1.19	1.10	1.25	0.77
GOME 2 CCI	1.26	1.23	1.03	0.66
IASI	1.00	1.17	1.24	0.91
Average	1.21	1.25	1.11	0.76

Table 3. Amplitude of SAT-SAOZ mean seasonality (in %) for the 2007-2011 and 2012-2016 periods at Bauru and Reunion. GOME, TOMS, SCIAMACHY, and OMPS are ignored because of their absence in one or the other period.

4.4 Origins of SAT-SAOZ variations

After characterising the SAT-SAOZ biases and their temporal variations (e.g. seasonality and drift) at both stations, next step is to try to identify the possible origins of the biases and their variability.

4.4.1 Biases

The SAT-SAOZ biases for most satellites are relatively small, of the order of 1 % (see Table 1). There are several possible sources for differences between all of them: i) the wavelength range of the measurements; ii) the absorption cross-sections used; iii) the correction for the temperature dependence of the cross-sections; and iv) the ozone profiles used in the retrievals

4.4.1.1 Spectral parameter

Satellites operating periods, wavelength ranges and cross-sections used are summarized in Table 4. Satellites ozone measurements started in 1978 with NASA SBUV and are continuing until now with the still operational OMI, GOME 2, IASI and OMPS. Depending on the instrument, the wavelength ranges used for measuring ozone extend from short UV to the thermal IR. SBUV, TOMS, OMI TOMS and OMPS, using the TOMS algorithm are deriving ozone from measurements at two wavelengths, 317 nm paired with 331 nm (adding when needed longer wavelengths at large solar zenith angles). GOME CCI, GOME 2 CCI, SCIAMACHY CCI and OMI CCI all using GODFIT v4 retrieval process are using the 325-335 nm spectral band. Although in the same near UV range, OMI DOAS measurements are

Chapitre 4 : Validation des colonnes totales d'ozone satellitaires par comparaison aux mesures SAOZ issues du réseau NDACC

performed in the fit window at 331.6 – 336.6 nm. Finally, the SAOZ is using the visible 450-550 nm Chappuis bands and IASI, the thermal IR at 9.6 μm .

The cross-sections listed in Table 4, are those Bass and Paur (2004), called later BP, those of the group of Reims (France) (Brion et al., 1993; Malicet et al. 1995), called later BDM; and the most recent measurements of Serdyuchenko et al. (2014) and Gorshelev et al. (2014) called later SG.

Satellites	Operating Periods	Ozone Wavelength (nm)	Ozone Cross-sections
SAOZ	1995/11 – 2016/12 (Bauru) 1993/08 – 2016/12 (Reunion)	450 – 550	(Bogumil et al., 2003)
SBUV	1978/11 – 2016/12	312.5, 317.6, 331.2, 339.8	(Brion et al., 1993; Daumont et al., 1992; Malicet et al., 1995)
TOMS	1996/07 – 2005/12	317.5, 331.2	(Bass and Paur, 1984)
GOME CCI	1995/06 – 2003/06	325 – 335	(Serdyuchenko et al., 2014; Gorshelev et al., 2014)
SCIAMACHY CCI	2002/08 – 2012/04	325 – 335	(Serdyuchenko et al., 2014; Gorshelev et al., 2014)
OMI CCI	2004/10 – 2016/10	325 – 335	(Serdyuchenko et al., 2014; Gorshelev et al., 2014)
OMI DOAS	2004/10 – 2016/12	331.1 – 336.1	(Brion et al., 1993; Daumont et al., 1992; Malicet et al., 1995)
OMI TOMS	2004/10 – 2016/12	317.6, 331.3	(Bass and Paur, 1984)
GOME 2 CCI	2007/01 – 2016/07	325 – 335	(Serdyuchenko et al., 2014; Gorshelev et al., 2014)
IASI	2007/10 – 2016/12	9.6 μm	(Hurtmans et al., 2012)
OMPS	2012/01 – 2016/12	313, 318, 331, 340	(Brion et al., 1993; Daumont et al., 1992; Malicet et al., 1995)

Table 4. Operating periods, Ozone Wavelength and ozone cross-sections of the different instruments

TOMS and OMI TOMS are using BP, whereas SBUV, OMI DOAS and OMPS are using BDM, and all CCI (GOME, SCIAMACHY, GOME 2, OMI CCI) are working with SG; SAOZ makes use of Bogumil et al., (2003) and IASI of Hurtmans et al. (2012).

The cross-sections data sets have been carefully evaluated and compared at several occasions in the frame of the *Absorption Cross-Sections of Ozone* (ACSO) programme since 2008 at the initiative of the International Ozone Commission (IO3C), in the frame of the World Meteorological Organization (WMO) and the *Integrated Global Atmospheric Chemistry*

Observations (IGACO) project. A summary of ASCO recommendations can be found in Orphal et al.(2016).

According to these comparisons (Orphal et al., 2016), the TOMS and OMI TOMS ozone columns derived in the short UV band with the BP cross-sections would be 2.3 % smaller than that of SBUV and OMPS using BDM (the difference increases to 3 % at large SZA). According to ACSO the difference between BDM and SG at 317.5 nm and 331.2 nm in the short UV would be less than 0.5 %. However, in the mid-UV, the difference between BP and BDM would be smaller than 1 %, but larger between BDM and SG reaching 3-4 %.

In turn, also in the mid-UV, the GODFIT algorithm (GOME CCI, GOME 2 CCI, OMI CCI, SCIAMACHY CCI), shows a 2–3 % difference between BP and BDM and 1–2 % between BDM and SG.

Finally, in the visible (SAOZ), Bogumil and SG show a difference of about +0.7 %.

Following Weber et al. (2016), the precision of these measurements would be of ± 2.1 % for BP, and ± 1.5 % for BDM and SG, whereas the precision of Bogumil et al. (2003) in the visible is estimated to ± 3 % (Hendrick et al., 2011) and at 10 μm of ± 1.8 % (Picquet-Varrault et al., 2005). Finally, according to ACSO studies, Orphal et al. (2016) conclude that the BDM cross-sections are likely better than those of BP in the UV range.

Finally, the cross-sections do show a temperature dependence in the short UV range of 0.13 %/°C according to Bass and Paur (1984), and of 0.11 %/°C according to Van Roozendaal et al. (1998), confirmed later by Serdyuchenko et al. (2014) and Redondas et al.(2014). Such temperature dependence is found negligible in the near UV i.e. of 0.01 %/ K (Nijhuis, 2012) and negligible in the visible Chappuis bands (Van Roozendaal et al. 1998).

4.4.1.2 Ozone profile sensitivity (Averaging Kernels)

The retrieved TOC is sensitive to the assumed ozone vertical profile used in the radiative transfer model. The altitude distribution of sensitivity to ozone is provided by an Averaging Kernel (AK) profile highly dependent on the observation technique. The AK is explicitly defined as the relation between the retrieved quantity and the true atmospheric state (Eskes and Boersma, 2003). Figure 6 shows the Averaging Kernel profiles calculated for SAOZ and CCI satellites. The AK profiles are very different. Because of its twilight viewing SAOZ is most sensitive around the peak ozone concentration around 22 km and loose rapidly its sensitivity below 10 km that is little sensitive to the troposphere where stratosphere-mesosphere diurnal variation dominate. In contrast, GODFIT AK is showing that satellites are sensitive to all layers

above 3 km where the pollution and diurnal variation dominates. In summary, the main point is that SAOZ TOC is less sensitive to lower troposphere than satellites.

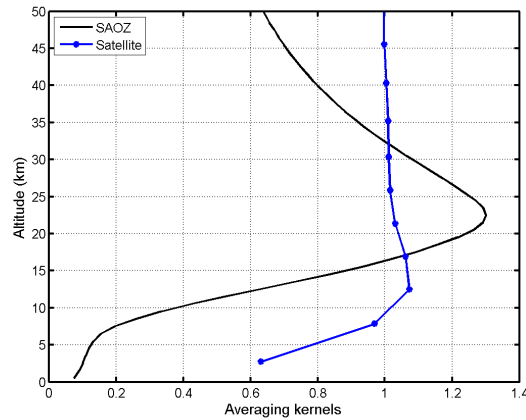


Figure 6. Averaging Kernel (AK) vertical profiles calculated for SAOZ (black) using TOMSV8 profiles climatology and for CCI GODFITv4 processed data in blue (GOME, GOME 2, SCIAMACHY, OMI) using a combination of TOMSV8 and OMI/MLS climatology for tropospheric ozone (Christophe Lerot personal communication).

4.4.1.3 Synthesis

Several parameters are contributing to the observed differences between satellites and SAOZ TOCs; the wavelength range and the absorption cross-sections used, e.g. using BP ozone cross-sections results in a larger bias than using BDM and SG cross-sections. Moreover, satellites operating in the short-UV are affected by the temperature dependence of the absorption cross-sections in contrast to other satellites operating in the mid-UV or SAOZ in the visible. Finally, although all satellites are sensitive to the whole atmosphere, the major difference of SAOZ is its absence of sensitivity to the lower layers (low to mid troposphere).

4.4.2 Origins of SAT-SAOZ seasonality

The seasonality of the SAT-SAOZ seen on Figure 5 is present at both stations but of different shape, extending from November to April at Bauru, and narrower in January-March at Reunion. Several parameters might contribute to this seasonality : First of all the sampling and diurnal variation as explain in 4.4.1.2, then i) the Air Mass Factor (AMF) used to convert SAOZ measured slant columns in vertical column; ii) the contribution of tropospheric ozone to which

SAOZ is less sensitive than satellites and iii) the masking of satellite and SAOZ ozone in the lower layers by clouds.

4.4.2.1 SAOZ Air Mass Factor

The SAT-SAOZ seasonality observed on all the satellite instruments points towards a possible SAOZ TOC bias that varies seasonally. It is worth noting that, unlike satellites, SAOZ does not measure directly the TOC. SAOZ measures the mean slant ozone column (SCD) at twilight at solar zenith angles between 86° and 91°. The SAOZ converted in vertical column by using the so-called Air Mass Factor (AMF) (Hendrick et al., 2011) according to the following relationship:

$$Nv = \frac{Ns + RDC}{AMF} \quad \text{Eq.(1)}$$

with: Nv : vertical column (SAOZ VCD)

Ns : slant column (SAOZ SCD)

RDC: residual quantity of the reference spectrum

AMF: Air Mass Factor

A unique RDC is used which corresponds to the residual quantity in the reference spectrum. The AMF is calculated using a Radiative Transfer Model (RTM), the UVSPEC/DISORT model that is based on the use of an a-priori climatological ozone profile (Shettle, 1989). The SAOZ a priori ozone profiles are those of TOMSV8 zonal mean climatology providing a monthly mean ozone profile at geographical latitude (Hendrick et al., 2011). The AMF is calculated for each SAOZ measurements using a “look-up” table pre-computed for each month, each latitude band and different slant column values to take into account the ozone profile variability. Since the TOMSV8 climatology does not take into account the longitudinal variation of the ozone profiles this may introduce a bias in the model-calculated AMF. As a result, the seasonality of the model-calculated AMF could be slightly biased leading to a bias in the seasonality of SAOZ TOC and hence of SAT-SAOZ. However, there is no identified explanation for the different shapes of seasonality at Bauru and Reunion.

4.4.2.2 Tropospheric ozone

Since SAOZ is less sensitive to tropospheric ozone than satellites the difference generates a seasonality in SAT-SAOZ difference generated. Shown in Fig. 7 is the mean seasonal cycle of the OMI/MLS tropospheric ozone column at Bauru and Reunion displaying an October maximum at both stations. At Bauru, the chemical composition of the lower troposphere is affected by biomass burning in South-West Brazil during the dry season (August to October). Biomass burning emissions change drastically the composition of the atmosphere, increasing the diurnal maximum in tropospheric ozone from 12 ppb during the wet season to 100 ppb during the dry season (Pacífico et al., 2015). In contrast at Reunion, there is an ozone increase in the mid-troposphere in the austral spring between 4 and 12 km due to the advection of ozone enriched air from Southern Africa during intense biomass burning season (Randriambelo et al., 2000; Ziemke et al., 2009; Clain et al., 2016).

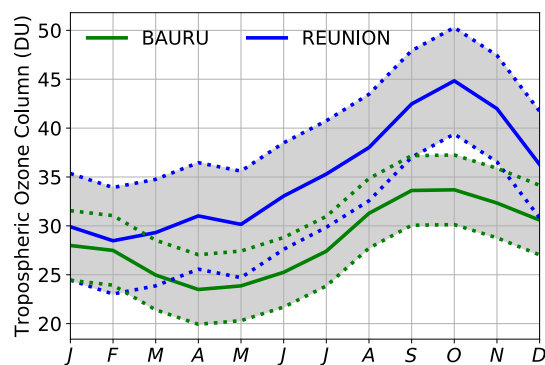


Figure 7. Monthly mean seasonal cycle of OMI/MLS tropospheric ozone column (Ziemke et al. 2006) at Bauru (green) and Reunion (blue). The data cover the period between 2004/10 and 2016/12. The grey area represents the respective standard deviations of the data.

Figure 8 shows tropospheric ozone profiles seasonality at both stations (Bauru in green and Reunion in blue). The tropospheric ozone maximum is at a lower altitude at Bauru than at Reunion (2 km at Bauru and 6-8 km at Reunion). The tropospheric ozone increase is more pronounced at Reunion than at Bauru, with a larger seasonality (15 DU at Reunion instead of 10 DU at Bauru). At Reunion, during the austral summer, the tropospheric column is larger by about 5 DU than at Bauru and 12 DU in winter. This difference partly explains the underestimation of the SAOZ TOC by about 7 DU observed between Reunion and Bauru in summer. Since SAOZ is less sensitive to tropospheric ozone, satellites TOCs are larger at

Reunion. The 7 DU tropospheric column difference between the two stations is consistent with the satellite TOCs differences seen on Figure 2.

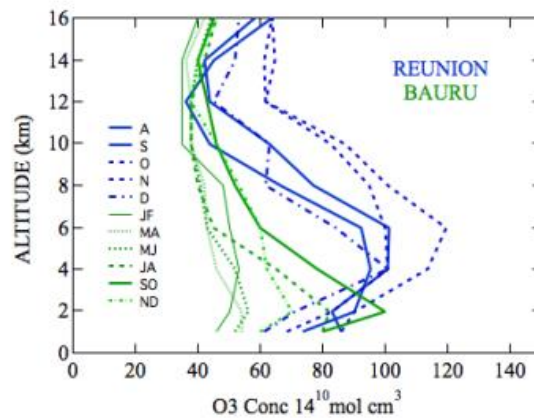


Figure 8. Tropospheric ozone profile seasonality at Bauru (green) and at Reunion (blue) from SHADOZ and MOZAIC-IAGOS program.

4.4.2.3 Satellites clouds masking

When present, clouds are masking satellite observations. However, their frequency is very different at Bauru and Reunion, which largely explains the difference of seasonality between the two stations.

Cloudiness is an important atmospheric factor influencing satellites TOC measurements. The process involved in ozone underestimation, the so-called “shielding effect”, is due to the masking of the ozone column below the clouds hidden by them (Antón and Loyola, 2011). The way clouds are identified in the nadir viewing satellites measurements is the provision of a Cloud Fraction (CF) parameter. CFs derived from all satellites are consistent but that of OMI-DOAS larger than others particularly at Reunion. Best agreements are between those using the same GODFT v4 cloud retrieval code (GOME, GOME 2, SCIAMACHY, and OMI-CCI) of Lerot et al. (2014).

Figure 9 shows the seasonal cycle of monthly mean CF available for different satellites at Bauru on left and at Reunion on the right. They both show larger cloudiness in the austral summer but during a broader period from October to April at Bauru but for a narrower period in January-March only at Reunion.

Chapitre 4 : Validation des colonnes totales d’ozone satellitaires par comparaison aux mesures SAOZ issues du réseau NDACC

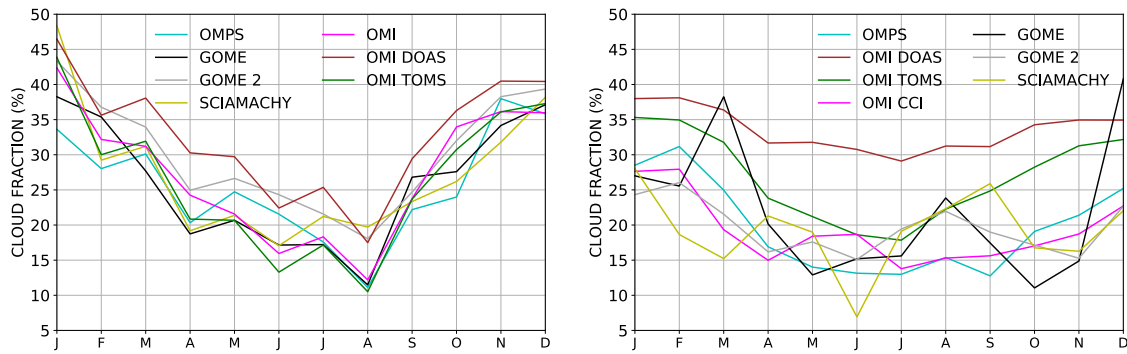


Figure 9. Seasonal cycle of cloud fraction (CF) (in %) at Bauru (left panel) and Reunion (right panel) for all satellites except SBUV, IASI and TOMS.

The difference between them is coming from their meteorological situation. In the austral summer, the South Atlantic Convergence Zone (SACZ) is close to Bauru, a situation favourable for the development of strong convection and thunderstorm formation (Lima and Wilson, 2002).

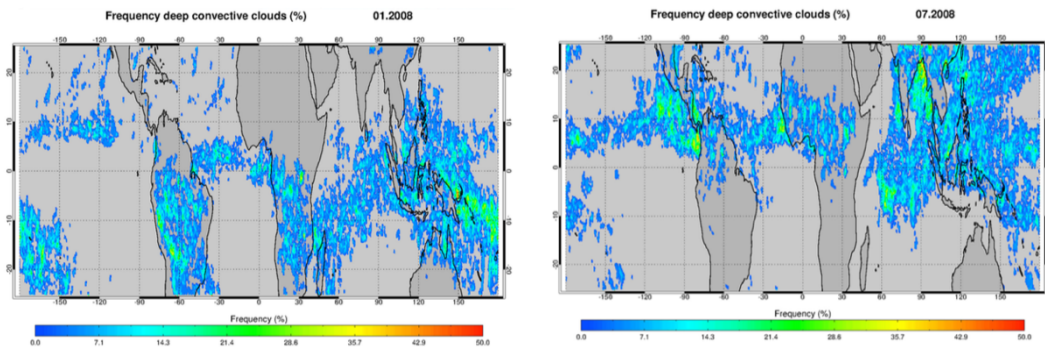


Figure 10. Occurrence frequency of deep-convective clouds derived from GOME-2 oxygen A band measurements using the OCRA/ROCINN algorithm. Top: January 2008. Bottom : July 2008. (Valks et al. 2014).

Figure 10 shows the frequency of deep-convective clouds in Southern Hemisphere in January and July 2008 derived from GOME 2 observations. In January, tropical Brazil is the area where convective anvils up to 16-19 km are frequent over the continent accompanied by the lofting of ozone-poor air followed by enhanced ozone production in the UTLS from nitrogen oxide generated by lightning (LNOX) (Murray et al., 2013; Finney et al., 2016).

In the presence of anvils given by high CF (Antón and Loyola, 2011), the TOC is replaced by a climatological ozone column. In the case of SAOZ, the presence of clouds is detected by the increase of O_4 and H_2O columns, and the TOC measurement is removed.

The situation is totally different at Reunion in the Indian Ocean where there are no land convective systems but hurricanes or cyclones instead in the Austral summer. Tropical cyclones are relatively frequent in January-March with anvils reaching an altitude of 16 to 18 km. Depending on the year between 1 and 3 cyclones are passing next to Reunion. Cyclones are resulting in a fast the entry of water-vapour-rich and ozone-poor air in the lower stratosphere (LS). When detected by the CF, the satellites TOCs are replaced by their climatological values whereas SAOZ TOC is removed.

But most important regarding the cloud impact on satellites and SAOZ TOCs is the remarkable anti-correlation by 1.5 % between SAT-SAOZ seasonality of Fig. 5 and CF seasonality of Fig. 9. Since, SAOZ TOC, is less sensitive to clouds, this is consistent with an underestimation of satellites TOC in the presence of clouds, as already concluded by Antón and Loyola, (2011) from the SCIAMACHY TOCs/CF relationship. Particularly significant is the coincidence between the hurricane period and the Jan-Mar deep SAT-SAOZ minimum at Reunion, and the longer SAT-SAOZ minimum period between Sept and May at Bauru consistent with the extended duration of convection in SE Brazil. The SAT-SAOZ seasonality of 1.5 % amplitude is thus largely due to the cloud masking of satellites.

4.4.2.4 Synthesis

Although an uncertainty in the SAOZ Air Mass Factor and a small seasonal variation of tropospheric ozone might contribute to the SAT-SAOZ seasonality, their contribution is negligible compared to the 1.5 % seasonality amplitude due the presence of high clouds masking, the satellite ozone column measurements are not properly corrected by the ozone climatology below clouds.

4.4.3 Origin of the temporal drift

A surprising feature in SAT-SAOZ time series is the apparent decline observed at Bauru whereas little change only is observed at Reunion (Table 2). At Bauru, the difference between SAT-SAOZ before the 2000s and the end of the record in 2016 exceeds 3 % when at Reunion it does not exceed 1% since 2010. Since this drift is observed on all the satellites, it must be attributed to SAOZ.

4.4.3.1 Ozone profile change in latitude

The SAT-SAOZ trend may reflect a long-term change in the shape of the ozone vertical profile. Indeed, satellite nadir viewing instruments measure directly the vertical column whereas SAOZ measures a slant column (SCD); which is then converted into a vertical column using a model-calculated AMF (see section 4.2.1).

To identify possible variation in the ozone profile associated to meridional displacements, the concept of Equivalent Latitude (EqLat) is used as an indicator of some of these changes. The EqLat concept has often been used for estimating ozone interannual variations (Randel and Wu, 1995; Godin et al., 2001; Pazmiño et al., 2005; Brunner et al., 2006). The EqLat is derived from the Potential Vorticity (PV) field (McIntyre and Palmer, 1984; Butchart and Remsberg, 1986). The peak concentration of the ozone layer is in the lower stratosphere where ozone has a long lifetime. The contours of the stratospheric ozone field are then highly correlated with the PV contours. This property makes EqLat a much better indicator of stratospheric ozone profiles over a station than geographical latitude, which, unlike EqLat, does not take into account longitudinal deviations from the zonal mean. Figure 11 shows the time evolution of EqLat from 1993 to 2016 at Bauru and Reunion, where PV are derived from the European Center for Medium Range Forecasts (ECMWF) re-analyses at the 500 K isentropic level (22 km), the altitude of the ozone peak concentration.

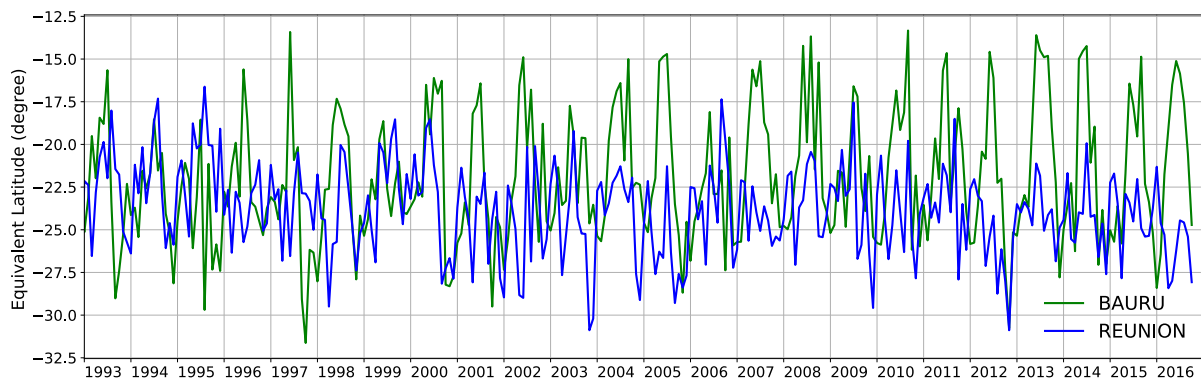


Figure 11. Time evolution of Equivalent Latitude at Bauru (green) and Reunion (blue). The time period covers 1993-2016.

Although the two stations are close in geographic latitude, Bauru EqLat is closer to the equator particularly in the austral winter reaching 15 °S whereas Reunion remains at 20-25 °. The more

equatorial EqLat of Bauru means a higher ozone peak and thus a larger AMF and a smaller TOC (Hendrick et al., 2011). In order to investigate whether these long-term variations in EqLat could contribute to the trend in SAT-SAOZ, we calculate the correlation between smoothed EqLat and SAT-SAOZ. The correlation coefficient is very high at Bauru ($r=-0.73 \pm 0.03$). It is much smaller but still significant at Reunion (-0.2 ± 0.1). In order to estimate how much of the variance in SAT-SAOZ might be due to slow variations in EqLat, the use of a quadratic function to account for some non-linearity in the relationship is realised. The coefficient of determination is 0.56 for Bauru and 0.19 for Reunion. The results suggest that the variations in EqLat (our indicator of ozone profile changes) have influenced the SAT-SAOZ bias, probably because of the fixed ozone profile used in the calculation of the AMF in the present version of the SAOZ retrieval. Figure 12 shows the AMF evolution with respect to the ozone column at 15 °S, 20 °S and 25 °S in January (left) and in July (right).

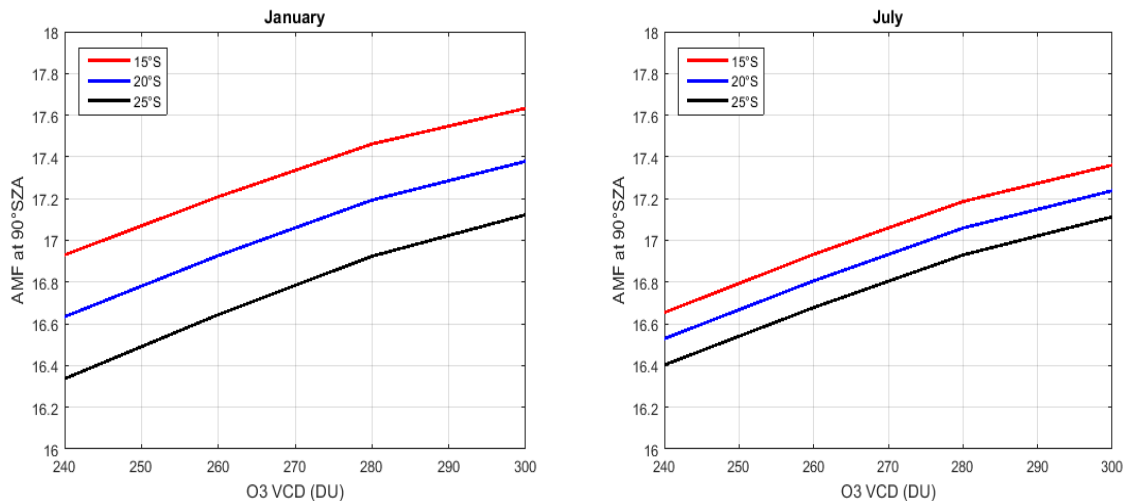


Figure 12. SAOZ Air Mass Factor latitudinal variation versus Total Column Ozone in January (left) and July (right) for 15°S, 20°S and 25°S.

In the austral summer in January, where the mean ozone column is of about 275 DU, the AMF varies by 3 % between 15 ° and 25 ° EqLat whereas in July it varies by 0.5 % only. Figure 13 shows the monthly mean EqLat seasonality at both stations. The EqLat seasonality and thus the AMF is far larger at Bauru.

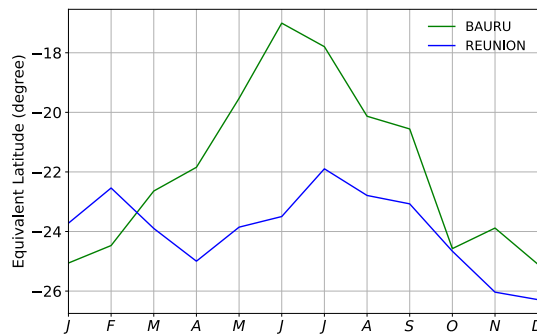


Figure 13. Seasonality of Equivalent Latitude at Bauru (green) and Reunion (blue).

EqLat variations can imply long-term TOC changes. For example, Figure 14 shows the 12-month running mean evolution of monthly mean EqLat at Bauru in green and Reunion in blue. The plot shows a mean EqLat, reduction after 2004 while there is little change or a small increase at Reunion.

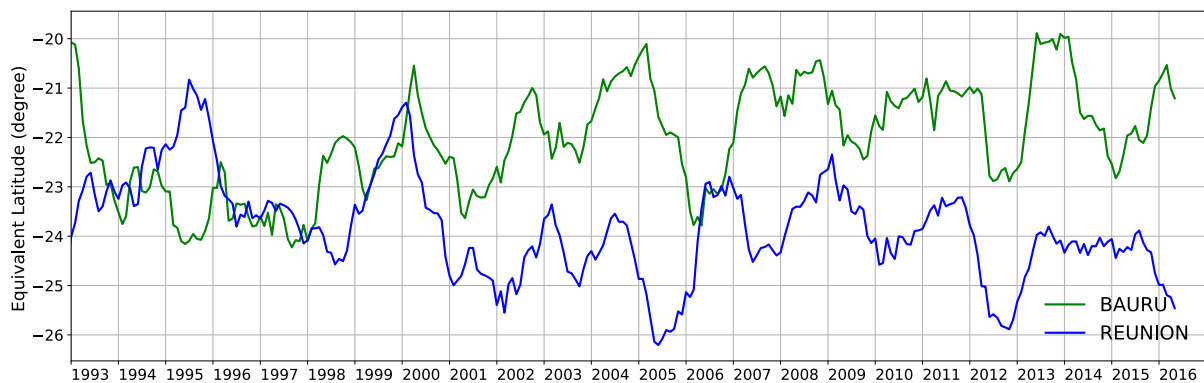


Figure 14. Equivalent Latitude (EqLat) 12-months running mean at 500K isentropic level at Bauru (in green) and Reunion (in blue).

4.4.3.2 Synthesis

The 3-4 % TOC decrease observed at Bauru since 2004 is fully consistent with an ozone profile lofting indicated by the equatorial shift of the Equivalent Latitude of the station.

4.5 General conclusions

The SAOZ UV-Vis spectrometer 25 years data at Bauru and Reunion are unique datasets in the southern tropics for studying the long-term evolution of the Total Ozone Column compared to the limited time series of satellite datasets. Since SAOZ is also used for satellite data evaluation, it is important to check regularly the differences between satellites and SAOZ data. The data used in the present comparisons are those of Bauru in continental Brazil between 1995/11 to 2016/12 and between 1993/08 to 2016/12 at Reunion Island in the South West Indian Ocean.

Although there are several sources of well-known systematic errors in the ozone TOC measurements, the mean biases between satellites during their operating periods, are limited, of the order of 1 % only. However, there is a systematic difference with SAOZ displaying a 2-3 % (6-9 DU) seasonality dominated by the masking of satellite observations by clouds, deep convection over land or hurricanes over oceans, during the austral summer not adequately replaced by a low altitude ozone column climatology.

Most intriguing feature is the increase of SAT-SAOZ difference after 2004 at Bauru, in contrast to the insignificant change at Reunion shown to be coming from a lofting of the ozone profile at Bauru due to a displacement of the ozone distribution towards the equator shown by the use of an Equivalent Latitude derived from the Potential Vorticity at the station location. The suggestion is to improve the calculation of the model-induced SAOZ AMF by using an ozone profile seasonal climatology at the Equivalent Latitude of the station instead of its geographic location and thus to reduce the SAT-SAOZ difference.

5. Étude comparative de la variabilité de la colonne d’ozone entre les données SAOZ/satellites et les modèles CCMI

5.1	Introduction.....	- 115 -
5.2	Séries temporelles des données mensuelles de la colonne totale d’ozone.....	- 118 -
5.2.1	Cycle saisonnier et biais	- 121 -
5.2.1.1	Cycle saisonnier	- 121 -
5.2.1.2	Biais moyen par rapport aux observations SAOZ.....	- 122 -
5.2.2	Diagramme de Taylor.....	- 125 -
5.2.2.1	Construction du diagramme.....	- 126 -
5.2.2.2	Diagramme avec SAOZ comme référence	- 127 -
5.2.2.3	Diagramme avec observations satellitaires comme référence	- 130 -
5.3	Variabilité interannuelle : contribution de différents forçages -	132 -
5.3.1	Analyse en ondelettes.....	- 132 -
5.3.1.1	Bauru	- 133 -
5.3.1.2	Réunion.....	- 137 -
5.3.2	Contribution de différents forçages à la variabilité de la colonne d’ozone-	139 -
5.4	Conclusion	- 144 -

5.1 Introduction

L'augmentation des gaz à effet de serre (GHG), en particulier du dioxyde de carbone (CO₂), a des conséquences importantes sur l'évolution future de l'ozone, car elle devrait entraîner une baisse de la température dans la stratosphère, provoquée par de fortes émissions de CO₂ dans l'espace (Stolarski et al., 2012). Ce refroidissement stratosphérique augmente indirectement l'ozone car il réduit le taux de perte d'ozone dans la haute stratosphère, en raison de la forte dépendance en température des réactions de Chapman et du cycle des NO_x sur le taux de perte d'ozone (WMO, 2014). De plus, les futurs changements dans la couche d'ozone devraient être affectés par une augmentation de la circulation de Brewer – Dobson (Butchart et al. 2006). Diallo et al. (2012) ont indiqué que les branches peu profondes et profondes de la circulation de Brewer – Dobson sont modulées par la variabilité aux tropiques. L'évolution future de l'ozone total de la colonne sous les tropiques est donc particulièrement sensible à la variabilité aux tropiques (WMO, 2014).

Le changement climatique a un impact important sur la circulation tropicale et l'ozone dans la stratosphère équatoriale. Il est donc primordial de quantifier la variabilité des différents facteurs qui dominent la circulation aux tropiques. L'autre source d'information sur l'ozone tropicale est la modélisation numérique. En raison de la complexité du système, les prévisions des variations futures de l'ozone reposent sur les modèles numériques, notamment les modèles de chimie-climat (*Chemistry Climate Models* en anglais, CCM). L'étude de l'interaction entre le climat et l'ozone avec de tels modèles nécessite le développement d'algorithmes rapides et précis décrivant l'ensemble des processus photochimiques, dynamiques et radiatifs régissant la structure et la composition de l'atmosphère. Évidemment, ces modèles doivent être validés. La meilleure façon d'évaluer un modèle et ainsi caractériser à quel point il reproduit les variations réelles de composition chimique atmosphérique consiste à comparer les distributions des espèces simulées à un ensemble de données d'observations.

Notre étude est centrée sur les deux stations tropicales qui sont Bauru (22.18°S, 49.03°O) et La Réunion (20.52°S, 55.27°E). Poulain et al. (2016) ont étudié la capacité des CCMs (modèles de chimie-climat ; utilisés ici en mode chimie-transport) à reproduire les effets des forçages externes sur la variabilité de l'ozone. Ils ont ainsi pu montrer que la variabilité de l'ozone aux tropiques était dominée par le cycle d'environ 26 mois de la QBO et le cycle solaire de 11 ans. Cependant, les CCMs avaient tendance à sous-estimer l'impact de la QBO et du cycle

solaire sur la variabilité de l’ozone tropicale. En effet, la QBO expliquait environ 20% de la variabilité de l’ozone dans les simulations et 30% dans les observations ; tandis que l’impact du cycle solaire était de 15% dans les simulations et 30% dans les observations.

Nous considérons ici les nouvelles simulations CCMI tandis que Poulain et al. (2016) ont analysé les simulations de CCMVal (REFB1). Le REF-B1 est également un scénario forcé par des observations météorologiques. Les simulations chimie-transport CCMI ont été réalisées avec des modèles améliorés par rapport à CCMVal, notamment en termes de résolutions spatiale et de paramétrisations des processus ce qui nous permettra de comparer nos résultats avec ceux obtenus par Poulain et al. (2016).

Dans notre étude, les colonnes totales d’ozone des CCMs sont comparées à celles mesurées par le spectromètre UV-Visible SAOZ (Pommereau et Goutail, 1988) et la combinaison de plusieurs séries satellitaires (SBUV, TOMS, GOME, GOME 2, OMI, OMI DOAS, OMI TOMS et SCIAMACHY). Les différences de la colonne totale d’ozone entre CCMs et SAOZ, et entre CCMs et la moyenne des satellites sont analysées. Une analyse de la saisonnalité est également effectuée. L’objectif est d’évaluer à quel point les nouveaux modèles utilisés dans le programme CCMI sont capables de reproduire la variation interannuelle d’ozone tropical. Les contributions de différents forçages externes sur la variabilité de l’ozone sont estimées par l’utilisation d’une régression linéaire multiple. Les mêmes méthodes statistiques sont appliquées aux données des CCMs et d’observations.

Le chapitre est présenté de la façon suivante. Tout d’abord, une analyse de la colonne d’ozone totale des simulations, des mesures SAOZ et satellitaires est étudiée. Ensuite, une étude des biais entre les CCMs et SAOZ, et entre les CCMs et la moyenne des satellites (MSM : *Multi-Satellites Mean*) est présenté. Nous nous intéressons par la suite à la variabilité interannuelle de l’ozone et des différents facteurs contribuant à sa variabilité notamment par les outils statistiques que sont la méthode des ondelettes et la régression linéaire multiple et nous finirons par conclure en énonçant les différents résultats obtenus.

5.2 Séries temporelles des données mensuelles de la colonne totale d’ozone

Cette partie traite l’analyse de l’évolution de la colonne totale d’ozone (TOC) des différentes simulations, de la différence de TOC entre MMM (*Multi-Models Mean : MMM*) et SAOZ (Modèles-SAOZ), et entre MSM (*Multi-Satellites Mean : MSM*) et MMM. Les différents modèles considérés sont décrits dans le chapitre 2 et sont listés dans le tableau ci-dessous.

Modèle de Chimie-Climat	Variables forcées	Source des données forcées	Références
LMDz – REPROBUS	u, v, T	ERA-Interim	(Dufresne et al., 2013)
CMAM	u, v, T	ERA-Interim	(Beagley et al., 2000)
UMUKCA – UCAM	u, v, T	ERA-Interim	(Bednarz et al., 2016)
MRI	u, v, T	JRA-55	(Deushi and Shibata, 2011)
CNRM	u, v, T, q	ERA-Interim	(Voldoire et al., 2012)
EMAC (L47 et L90)	u, v, T, ps	ERA-Interim	(Jöckel et al., 2016)
MOCAGE	u, v, T, q	ERA-Interim	(Lacressonnière et al., 2012)
CHASER (MIROC – ESM)	u, v, T	ERA-Interim	(Douville, 2009)

Liste des différents CTMs et CCMs utilisés avec les différentes variables forcées, les données sources de réanalyses et leurs références. Les variables référencées sont les champs de vents u et v (champs zonal et meridional), la température T, l’humidité spécifique q, et la pression de surface ps. Les données de réanalyses sont issues de ERA-Interim (ERA-Interim) (<http://www.ecmwf.int/en/research/climate-reanalysis/era-interim>) et Japanes 55-year ReAnalysis (JRA-55) (http://jra.kishou.go.jp/JRA-55/index_en.html).

Les évolutions temporelles de la TOC dans les différentes simulations sont présentées sur la figure 5.1 pour Bauru (panneau du haut) et pour la Réunion (panneau du bas) pour la période 1993-2013. A partir de 2010, seules les simulations EMAC 47, EMAC 90 et UCAM sont disponibles. Les évolutions temporelles de la moyenne des mesures satellitaires (*Multi-Satellites Mean : MSM*, ligne noire) et des données SAOZ (ligne rouge) sont également indiquées sur la figure. La moyenne satellitaire MSM est réalisée à partir des données mensuelles de SBUV, TOMS, GOME CCI, GOME 2 CCI, SCIAMACHY CCI, OMI CCI, OMI DOAS, OMI TOMS, OMPS et IASI (voir chapitre 2 pour une description des mesures).

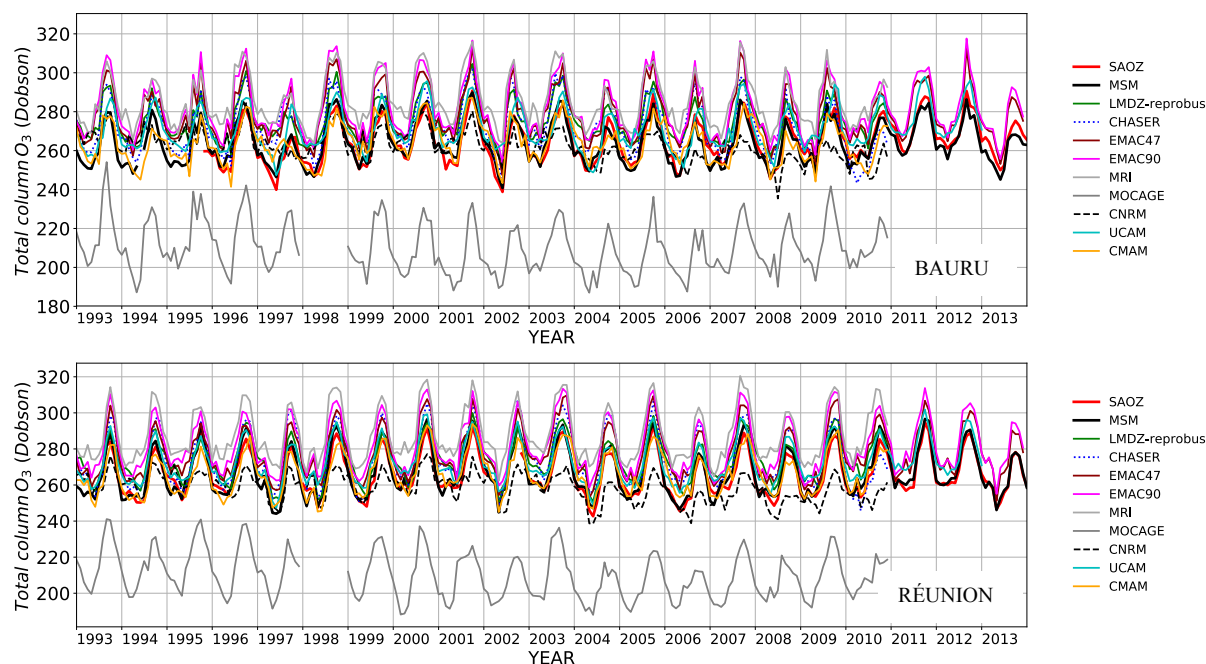


Figure 5.1. Évolution temporelle de la colonne totale d’ozone (TOC) des mesures SAOZ, de la moyenne des satellites (MSM) et des simulations de modèles à Bauru (panneau du haut) et la Réunion (panneau du bas).

A Bauru, le cycle saisonnier présente un maximum au printemps austral et un minimum en automne, aussi bien dans les modèles que dans les observations. L’amplitude saisonnière est d’environ 40 DU dans les observations et sur l’ensemble des simulations excepté pour CNRM avec une amplitude de seulement ~20 DU. Les valeurs moyennes de TOCs dans les simulations sont assez proches (environ 285 ± 10 DU selon la simulation) excepté pour CNRM et MOCAGE dont les moyennes de TOC sont respectivement d’environ 15 DU et 60 DU plus faibles respectivement. EMAC90 et MRI présentent les TOCs moyennes les plus élevées, environ 295 DU. Les modèles surestiment d’environ 15 DU la TOC moyenne par rapport aux observations (SAOZ, MSM), excepté CNRM et MOCAGE qui sous-estiment respectivement de 6% et 20%.

À la Réunion, les résultats sont similaires à ceux obtenus à Bauru. Le cycle saisonnier de la TOC est très proche de celui de Bauru avec un maximum au printemps et un minimum en automne. L’amplitude du cycle saisonnier est d’environ 40 DU dans les simulations et les observations. Comme pour Bauru, la seule exception est la simulation CNRM avec une amplitude du cycle de seulement ~20 DU. Les valeurs moyennes de TOC sont d’environ 285 ± 10 DU dans les simulations exceptées pour CNRM (260 DU) et MOCAGE (210 DU). La TOC moyenne maximale est observée pour MRI (environ 290 DU) et la minimale pour

MOCAGE (210 DU). Comparés aux observations, tous les modèles surestiment la TOC d’environ 10 DU, excepté CNRM et MOCAGE qui sous-estiment respectivement de ~20 DU et 60 DU.

En raison de la forte sous-estimation de la TOC par MOCAGE, ce dernier ne sera pas pris en compte dans le calcul de la moyenne des simulations (MMM). Les évolutions temporelles de la TOC mensuelle pour SAOZ, MSM et MMM ainsi que leurs écart-types respectifs sont présentées sur la figure 5.2 à Bauru (panneau du haut) et à la Réunion (panneau du bas). Les écarts-types sur MMM et ceux sur SAOZ et MSM ne sont pas comparables. Les écarts-types sur MMM correspondent à la dispersion des simulations (données mensuelles) alors que les écarts-types sur SAOZ et MSM correspondent à la variabilité des mesures sur 1 mois et sont calculés à partir des données journalières.

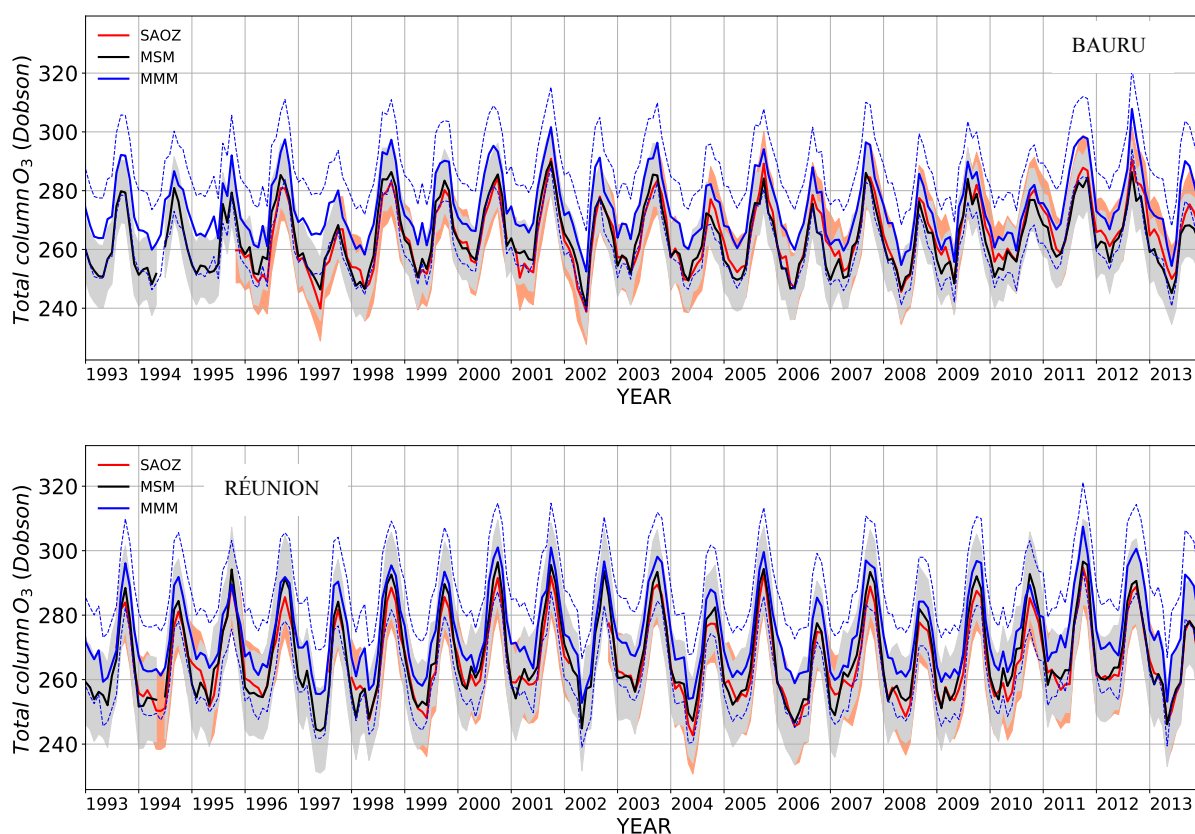


Figure 5.2. Évolution temporelle de la TOC SAOZ (rouge), de la moyenne des données satellitaires (MSM, noir) et de la moyenne des simulations (MMM, bleu) sur la période 1993-2013 à Bauru (panneau du haut) et à la Réunion (panneau du bas). La partie grisée et celle rougeâtre sont respectivement les écarts-types de MSM et SAOZ ; les traits pointillés bleus représentent l’écart-type de MMM.

A Bauru, la variabilité haute fréquence des simulations de MMM est très similaire à celle des observations. Cependant, le MMM surestime la TOC d’environ 10-15 DU par rapport aux mesures SAOZ et MSM, en grande partie durant le minimum durant l’automne.

A la Réunion, MMM montre un meilleur accord avec les mesures SAOZ et MSM qu’à Bauru, particulièrement durant le maximum de printemps jusqu’en 2010 où la différence de TOC entre MMM et observations augmente. Ceci peut être expliqué par le fait que les simulations EMAC (47 et 90) et UCAM sont les seules données disponibles à partir de 2010 pour le calcul de MMM.

5.2.1 Cycle saisonnier et biais

Dans cette partie, nous nous intéressons à l’étude de la variation saisonnière de colonne totale d’ozone de MMM, SAOZ et MSM et une étude comparative du biais entre les modèles et SAOZ et entre satellites et SAOZ est réalisée.

5.2.1.1 Cycle saisonnier

Les variations saisonnières de l’ozone sont pilotées par les variations saisonnières de la dynamique et de la photochimie. Pour cette raison, des biais dans la saisonnalité de la dynamique ou de la photochimie dans les modèles peuvent se traduire par des biais dans la saisonnalité de la TOC. Il est donc utile de s’intéresser à la saisonnalité de la TOC. La figure 5.3 montre le cycle saisonnier de la TOC de MMM, de MSM et du SAOZ à Bauru (panneau de gauche) et à la Réunion (panneau de droite) ainsi que leurs écart-types respectifs. Le cycle saisonnier est calculé à partir des séries mensuelles entre Janvier 1993 et Décembre 2013. Les écarts-types sur MMM, MSM et SAOZ correspondent à la variabilité interannuelle sur chaque mois.

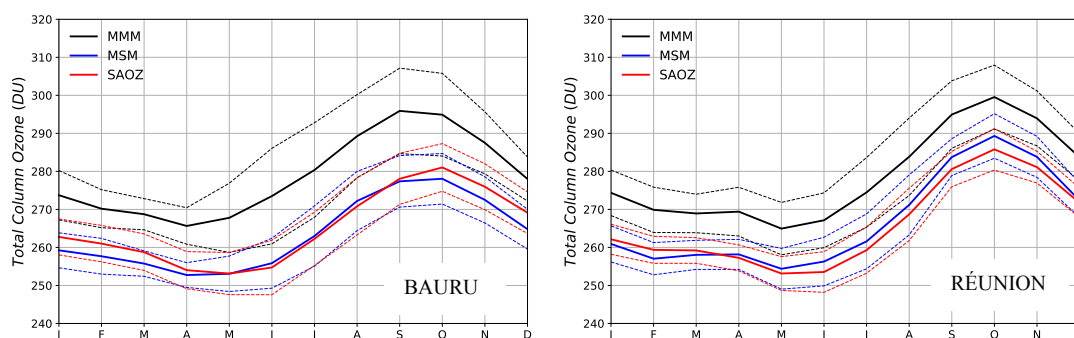


Figure 5.3 Cycle saisonnier de TOC pour MMM (courbe noire), MSM (courbe bleue) et SAOZ (courbe rouge) à Bauru (panneau de gauche) et à la Réunion (panneau de droite). Les traits pointillés en couleurs représentent les écarts-types respectifs.

Les formes du cycle saisonnier pour MMM, MSM et SAOZ sont très proches. On retrouve aussi dans le cycle MMM la surestimation d’environ 10-15 DU de la TOC moyenne par les modèles par rapport aux observations. Le maximum de TOC est en Septembre-Octobre à Bauru et clairement en Octobre à Réunion. La TOC est au minimum en Avril-Mai à Bauru et en Mai à Réunion. L’une des différences les plus significatives entre les 2 stations est que la TOC diminue entre Février et Avril à Bauru alors qu’elle est plutôt stable à Réunion durant cette période. Bien que les deux stations soient à la même latitude (~22°S), il est intéressant d’observer que les simulations montrent une TOC un peu plus élevée à la Réunion qu’à Bauru, notamment durant l’automne, en accord avec les mesures satellitaires et SAOZ. Ce résultat traduit la capacité des modèles à reproduire les déviations à la zonalité du champ de TOC tropicale bien qu’ils tendent à surestimer la TOC d’environ 5% (~15 DU) à Bauru et de 3% (~10 DU) à la Réunion par rapport aux observations. De plus, on constate des écarts-types plus grands sur MMM que sur les observations, indiquant une variabilité interannuelle de la TOC mensuelle plus importante dans les simulations.

5.2.1.2 Biais moyen par rapport aux observations SAOZ

Dans cette partie, les différences de TOC entre MSM et SAOZ (=MSM-SAOZ), et entre MMM et SAOZ (=MMM-SAOZ) sont analysées. La différence de TOC en pourcentage est calculée suivant la formule :

$$MSM \text{ (ou MMM)} - SAOZ = \frac{MSM \text{ (ou MMM)} - SAOZ}{SAOZ} \times 100 \quad (5.2.2)$$

La figure 5.4 présente l’évolution temporelle de MSM-SAOZ (courbe rouge) et MMM-SAOZ (courbe noire) et leurs écarts-types respectifs à Bauru (panneau du haut) et à la Réunion (panneau du bas).

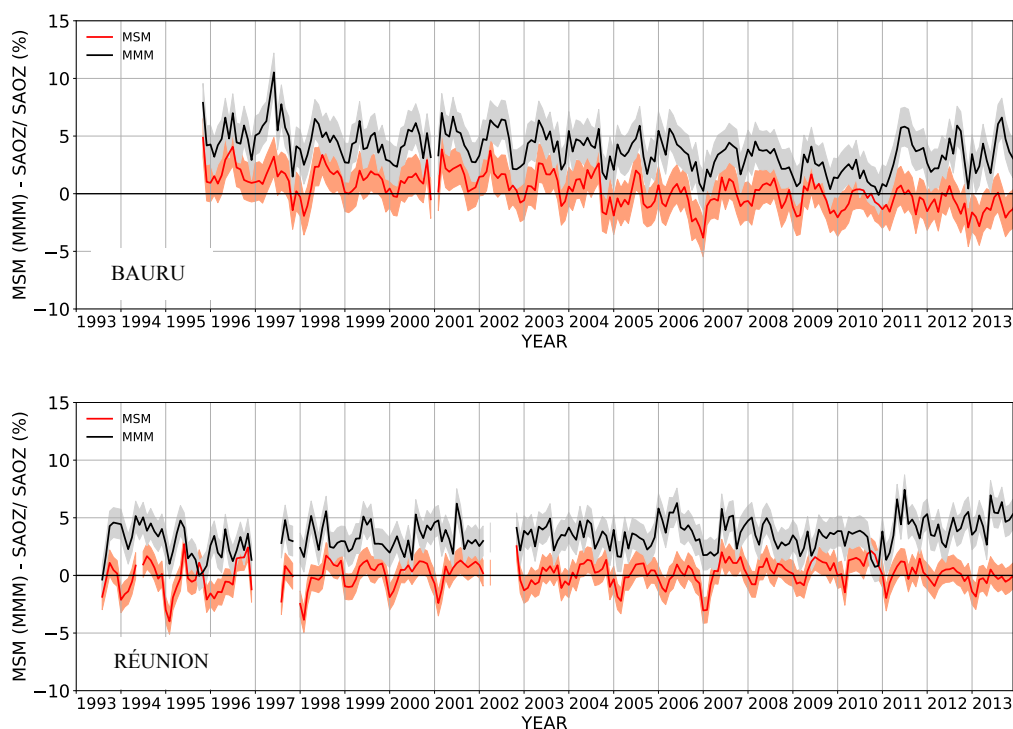


Figure 5.4. Évolution temporelle de la différence de TOC entre MSM et SAOZ (MSM-SAOZ : en rouge), et entre MMM et SAOZ (MMM-SAOZ : en noir) à Bauru (figure du haut) et à la Réunion (figure du bas). Les zones de couleurs représentent leurs écarts-types respectifs qui proviennent de la dispersion des modèles.

A Bauru, la différence MMM-SAOZ varie principalement entre +8% and +2%. La variabilité haute fréquence de MMM-SAOZ est en très bonne correspondance avec celle de MSM-SAOZ mais MMM-SAOZ est légèrement décalé, il est environ 3% plus élevé que MSM-SAOZ. D’autre part, MMM-SAOZ présente une tendance nettement négative de 2003-2004 à 2010 de 1.6%. Elle est similaire à celle observée sur MSM-SAOZ pour la même période. Cette tendance a déjà été discutée au chapitre précédent. Elle est attribuable à SAOZ avec, comme explication la plus plausible, la possible variation de la forme du profil d’ozone qui n’est pas prise compte dans la climatologie zonale d’ozone utilisée pour le calcul de l’AMF dans le traitement SAOZ (voir chapitre 4). Un saut est observé en 2010 sur MMM-SAOZ, mais pas sur MSM-SAOZ, avec un retour à des valeurs antérieures à 2003. Ceci dû au fait que seules les simulations EMAC (47 et 90) et UCAM sont disponibles pour le calcul de MMM et qu’elles sont légèrement biaisées par rapport aux simulations des autres modèles. En effet, la surestimation de la TOC par les modèles est légèrement plus importante pour ces trois modèles ce qui implique une TOC plus élevée dans ces simulations comparées aux autres simulations et donc une différence MMM-SAOZ plus grande.

A la Réunion, l'amplitude des variations MMM-SAOZ est plus faible qu'à Bauru. En plus, à l'inverse de ce qui est observé à Bauru, MMM-SAOZ et MSM-SAOZ à Réunion ne présentent pas de tendance entre 2003 et 2010 (0.2%). Néanmoins, on retrouve le saut de MMM-SAOZ et MSM-SAOZ en 2010. Une autre différence importante avec Bauru est qu'à Réunion la variabilité haute fréquence de MMM-SAOZ n'est pas du tout en correspondance avec celle de MSM-SAOZ. Par exemple, MSM-SAOZ a un cycle saisonnier à la Réunion, mais pas MMM-SAOZ, alors que MMM-SAOZ et MSM-SAOZ ont tous deux un cycle saisonnier marqué à Bauru (avec un minimum en hiver et un maximum en été). Le cycle saisonnier de MSM-SAOZ sur les 2 sites a déjà été discuté au chapitre précédent et est en partie dû aux biais des données satellitaires en hiver lorsque la couverture nuageuse est importante. En revanche, il est plus difficile d'expliquer le cycle saisonnier de MMM-SAOZ à Bauru.

La figure 5.5 présente les boîtes à moustache (*boxplot* en anglais) de MSM-SAOZ et de MMM-SAOZ à Bauru (panneau de gauche) et à la Réunion (panneau de droite). La boîte à moustache est très utile pour l'analyse statistique de séries temporelles. Elle est construite en considérant cinq indices qui caractérisent en partie la statistique d'une série de données : le minimum, le premier quartile, le second quartile (la médiane), le troisième quartile et le maximum. Les quartiles sont définis comme les points au-dessous desquels se situent 25%, 50% et 75% des données. Une estimation de la variabilité des données est donnée par l'écart interquartile (distance entre le premier et le troisième quartile, qui contient 50% des données) qui est représentée par la hauteur de la boîte rouge sur la figure 5.5. Le maximum et minimum correspond aux valeurs maximale et minimale de la série, sous réserve que ces valeurs ne se trouvent pas au-delà d'une certaine distance des bords de la boîte, cette distance étant fixé à 1.5 fois l'écart interquartile ($1.5 \times$ la hauteur de la boîte). Les valeurs dépassant cette valeur sont représentées par des cercles vides.

Une certaine symétrie des boîtes à moustaches des données est observée aux deux stations, aussi bien sur les modèles que les observations satellitaires. Donc on peut considérer la médiane comme un estimateur satisfaisant du biais moyen des séries temporelles par rapport à SAOZ. A Bauru, la valeur médiane de MMM-SAOZ moyen est de 3.81% alors qu'elle est beaucoup plus faible (0.34%) pour MSM-SAOZ ; les valeurs d'écart interquartiles de MMM-SAOZ et MSM-SAOZ sont similaires. A la Réunion, la valeur médiane de MMM-SAOZ est de 3.44% alors qu'elle est proche de zéro (0.08%) pour MSM-SAOZ. Contrairement à Bauru, l'écart interquartile de MMM-SAOZ est clairement plus petit que celui de MSM-SAOZ à Réunion.

C’est cohérent avec le fait que MSM-SAOZ à Réunion et MMM-SAOZ et MSM-SAOZ à Bauru ont un cycle saisonnier marqué alors que ce n’est pas le cas de MMM-SAOZ à Réunion. Un autre point important est que les valeurs médianes de MSM-SAOZ aux deux stations sont assez proches de 0 ce qui confirme que la moyenne des observations satellitaires a un biais très faible par rapport à SAOZ. En revanche, les valeurs médianes de MMM-SAOZ aux deux stations sont de l’ordre de 3.5%. Ce biais de la moyenne des modèles par rapport à SAOZ est déjà bien visible sur la figure 5.4.

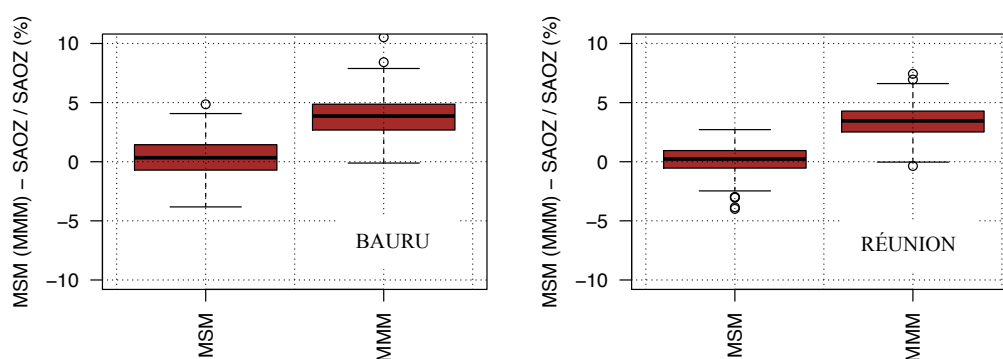


Figure 5.5. Boîtes à moustache de la différence de TOC entre la moyenne des observations satellitaires et SAOZ et entre la moyenne des simulations et SAOZ à Bauru (panneau de gauche) et à la Réunion (panneau de droite).

5.2.2 Diagramme de Taylor

Les modèles sont utilisés pour comprendre les tendances de la TOC dans le passé et prédire son évolution future. Un élément clé du degré de confiance dans le modèle est leur capacité à reproduire la variabilité interannuelle des observations historiques. Dans cette partie, la capacité des différents modèles à reproduire cette variabilité interannuelle aux 2 stations tropicales est évaluée à partir du diagramme de Taylor. Ensuite, une analyse des périodicités est réalisée pour étudier le rôle de différents forçages externes sur cette variabilité interannuelle de la TOC. Les résultats d’analyse des différentes simulations sont comparés aux résultats des observations (SAOZ et moyenne des mesures satellitaires). La période considérée dure 18 ans, de janvier 1993 à décembre 2010 car la plupart des simulations s’arrêtent en décembre 2010 et il est souhaitable de les comparer sur la même période.

5.2.2.1 Construction du diagramme

Les différences entre les évolutions simulés et observés de TOC peuvent être bien visualisées sur des diagrammes de Taylor (Taylor, 2001). Le diagramme de Taylor permet de rassembler différentes informations statistiques sur un même graphique, et résume le degré de correspondance entre deux jeux de données, typiquement entre des simulations et des observations. On peut ainsi représenter de manière compacte des statistiques de différences entre un nombre élevé de champs (les simulations d’une série TOC à une station dans notre cas) et un champ de référence (SAOZ ou la moyenne des observations satellitaires à cette station dans notre cas). Pour chaque simulation, trois statistiques sont représentées sur le diagramme : le coefficient de corrélation de Pearson (R) entre la TOC simulé et celle observée, l’erreur quadratique moyenne (RMS) entre TOC simulé et celle observée, et les écarts-types σ de la TOC simulé et de celle observée. On rappelle que la RMS est calculée après avoir enlevé le biais moyen de la TOC simulée par rapport aux observations, ce qui conduit à :

$$RMS^2 = \sigma_{simi}^2 + \sigma_{obs}^2 - 2R\sigma_{simu}\sigma_{obs} \quad \text{Equ. 5.2.2.1}$$

Dans le diagramme de Taylor, chaque point est placé de manière à ce que la distance par rapport à l’origine du diagramme (point 0,0) soit égale à l’écart-type de la série considérée. Sa position azimutale donne la valeur du coefficient de corrélation entre la simulation et les observations, et donc l’axe des abscisses correspond à une corrélation de 1. Le point se trouvant sur cette axe (petit cercle sur la figure 5.6) correspond au point de référence (c’est à dire la série de TOC observée avec évidemment $R=1$, corrélation des observations avec elles-mêmes) et donne la valeur de son écart-type. Les demi-cercles verts qui ont pour origine ce point de référence correspondent aux iso-contours des valeurs de RMS selon la relation 5.2.2.1. Ainsi la distance d’un point d’une simulation à ce point de référence mesure la RMS (Manzini et al., 2010). Les diagrammes de Taylor facilitent grandement l’évaluation comparative de multiples simulations avec un jeu de données d’observations.

5.2.2.2 Diagramme avec SAOZ comme référence

Les diagrammes de Taylor des simulations en prenant comme référence SAOZ sont représentés sur la figure 5.6 pour Bauru sur le panneau de gauche et pour Réunion sur le panneau de droite. Chacune des 9 simulations est représentée par un point de couleur sur le diagramme. La distance minimum entre chaque point de simulation et l’arc noir en gras de l’écart-type des observations SAOZ est la différence entre l’écart-type de la simulation et celui des données SAOZ. La RMS est probablement le meilleur scalaire pour estimer le degré de correspondance entre une simulation et SAOZ car la RMS dépend à la fois des écarts-types et de la corrélation (voir équation 5.2.2.1). Il faut bien garder à l’esprit que le degré de correspondance considéré ici est indépendant des biais moyens des simulations par rapport aux observations (voir section 5.2.2.1). En effet, la RMS est calculée après avoir enlevé ce biais moyen, et de plus corrélation et écart-type sont indépendants de ce biais.

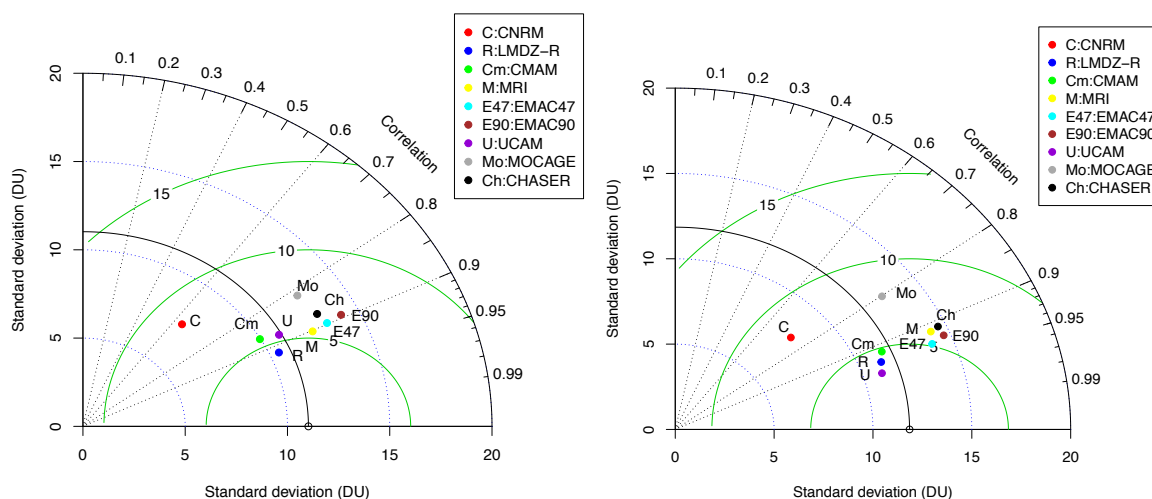


Figure 5.6. Diagramme de Taylor montrant l’écart-type de chaque simulation et celui des données SAOZ, le coefficient de corrélation R_{SAOZ} entre chaque simulation et SAOZ, l’erreur quadratique moyenne RMS_{SAOZ} entre chaque simulation et SAOZ (lignes vertes) à Bauru (diagramme à gauche) et à la Réunion (diagramme à droite).

Les coefficients de corrélations (R_{SAOZ}) et l’erreur quadratique moyenne (RMS_{SAOZ}) sont aussi listés dans la table 5.2.2

Modèles	BAURU		REUNION	
	R_{SAOZ}	RMS_{SAOZ} (DU)	R_{SAOZ}	RMS_{SAOZ} (DU)
LMDZ Reprobus	0.91	4.56	0.93	4.30
CHASER	0.87	6.21	0.91	6.05
CNRM	0.63	8.68	0.73	7.91
EMAC47	0.90	5.61	0.93	5.11
EMAC90	0.90	6.25	0.92	5.87
MOCAGE	0.81	7.34	0.80	7.76
MRI	0.90	5.32	0.91	5.90
UCAM	0.87	5.32	0.95	3.82
CMAM	0.86	5.41	0.91	4.86
Moyenne	0.85	6.07	0.89	5.73

Table 5.2.2 Coefficient de corrélation R_{SAOZ} et l’erreur quadratique moyenne RMS_{SAOZ} entre les simulations et le SAOZ pour Bauru et Réunion.

A Bauru, toutes les simulations présentent un coefficient de corrélation supérieur à 0.8 excepté CNRM (0.63) et les écart-types des simulations sont assez proches de celui des données SAOZ pour la plupart des simulations. Comme les écarts-types sont dominés par les variations saisonnières, une simulation qui reproduit bien le cycle saisonnier des observations SAOZ reproduit généralement bien l’écart-type SAOZ. On remarque que les simulations présentent aussi des valeurs de RMS_{SAOZ} assez comparables (5-6 DU), excepté MOCAGE et CNRM ($RMS_{SAOZ} > 7$ DU). Les coefficients de corrélation tournent autour de 0.9 pour la plupart des modèles, démontrant que les variations simulées de la TOC sont très bien en phase avec celles des données SAOZ. LMDZ-R est le plus proche spatialement du point de référence SAOZ (cercle noir sur l’axe des abscisses) sur le diagramme ce qui signifie qu’il a le RMS_{SAOZ} le plus faible (4.56 DU soit $\sim 1.5\%$). Cela provient du fait que la simulation LMDZ-R a le coefficient de corrélation le plus élevé (0.93) et l’écart-type le plus proche de celui de SAOZ après UCAM. Ce résultat indique que LMDZ-R est la simulation la plus performante pour Bauru. Néanmoins, la plupart des points des simulations sont très proches l’un de l’autre sur le diagramme. Ce regroupement indique que les performances des modèles sont très comparables excepté pour les 2 points excentrés et éloignés du point de référence, CNRM et MOCAGE. MOCAGE et CNRM présentent les coefficients de corrélation les plus faibles ($R_{SAOZ} = 0.63$ pour CNRM et $R_{SAOZ} = 0.81$ pour MOCAGE), les RMS_{SAOZ} les plus élevées et les écart-types les plus éloignés de celui de SAOZ. Elles sont de loin les simulations les moins performantes. C’est cohérent avec les résultats montrant que CNRM sous-estime le plus (d’un facteur 2 environ) l’amplitude

du cycle saisonnier de TOC alors que la plupart des modèles reproduisent plus ou moins cette amplitude (Fig. 5.2.1). MOCAGE est le modèle qui surestime le plus cette amplitude, même si cette surestimation est légère. Notons que MRI, EMAC47, et EMAC90 présentent des coefficients de corrélations identiques ($R_{SAOZ} = 0.90$). Cependant la valeur de l'écart-type de MRI est plus proche de celle de SAOZ que celles de EMAC47 et EMAC90, ce qui se traduit par une RMS_{SAOZ} de MRI plus faible que celle de EMAC47 et EMAC90. On peut donc conclure que, si on ignore les biais moyens des modèles (les biais par rapport aux observations sont initialement enlevés dans les données), MRI simule mieux la variabilité de la TOC à Bauru que EMAC47 et EMAC90 qui surestiment cette variabilité, comme indiqué par leurs écarts-types plus élevés que celui de SAOZ. Le même raisonnement s'applique à UCAM et CHASER qui présentent également des R_{SAOZ} identiques (0.87). Cependant, comme la valeur de l'écart-type d'UCAM est plus proche de celle de SAOZ, la RMS_{SAOZ} d'UCAM est plus faible que celle de CHASER. Ce résultat indique que UCAM simule mieux la variabilité de la TOC à Bauru que CHASER. Sur la base du RMS, LMDZ-R, CMAM, MRI et UCAM apparaissent comme les modèles les plus performants à Bauru.

A la Réunion, toutes les simulations montrent une forte corrélation avec SAOZ ($R_{SAOZ} > 0.9$) excepté MOCAGE et CNRM (respectivement 0.8 et 0.73). On note que les R_{SAOZ} à la Réunion sont plus élevées qu'à Bauru pour toutes les simulations excepté MOCAGE. C'est la raison principale pour laquelle les RMS_{SAOZ} à Réunion sont en moyenne légèrement plus faible qu'à Bauru. De plus, si on met de côté MOCAGE et CNRM, les points des simulations sur le diagramme de la Réunion sont moins dispersés spatialement que sur celui de Bauru, suggérant que les performances des modèles sur la Réunion sont plus proches les unes des autres que sur Bauru. Concernant l'étude comparative entre simulations, LMDZ-R, CMAM et UCAM sont les plus proches spatialement du point de référence SAOZ sur le diagramme, avec des erreurs RMS_{SAOZ} inférieures à 5 DU. Ce n'est pas surprenant. Ces simulations sont aussi celles qui montrent des écarts-types les plus proches de celui de SAOZ. La plupart des autres simulations ont aussi des R_{SAOZ} élevés, mais les valeurs de leurs écarts-types ne sont pas proches de la valeur de SAOZ, d'où des valeurs de RMS_{SAOZ} supérieures à 5 DU. Ces statistiques positionnent REPROBUS, CMAM et UCAM comme les modèles les plus performants à la Réunion. De nouveau, comme pour Bauru, MOCAGE et CNRM se détachent des performances d'ensemble des modèles. Comme indiqué par des valeurs de RMS_{SAOZ} approchant les 8 DU, ils apparaissent comme les modèles les moins performantes dans la simulation de la variabilité de la TOC à Réunion.

Un excellent accord entre les simulations et les mesures SAOZ est observé aux deux stations avec un coefficient de corrélation moyen supérieur à 0.8 (0.85 à Bauru et 0.89 à la Réunion) et ce en prenant en compte les simulations MOCAGE et CNRM. Cependant les R_{SAOZ} sont, en moyenne, légèrement plus faible et les RMS_{SAOZ} légèrement plus élevées à Bauru qu’à la Réunion.

5.2.2.3 Diagramme avec observations satellitaires comme référence

La même étude de corrélation et variabilité à l’aide de diagramme de Taylor est réalisée entre les données TOC des simulations et la moyenne des mesures satellitaires (MSM). En effet, comme toutes les observations, les données SAOZ sont sujettes à des incertitudes. Par exemple, il y a des biais entre les données SAOZ et les données satellitaires (voir chapitre 4) et la variabilité de la série MSM semble différente de celle de la série SAOZ aux 2 stations (Figure 5.4). Il est donc préférable de vérifier que l’utilisation d’un autre jeu d’observations, ici satellitaires, comme référence ne modifie pas significativement les résultats du diagramme de Taylor. Les diagrammes de Taylor prenant comme référence MSM au lieu des données SAOZ sont présentés en figure 5.7 et les valeurs de R_{SAT} et RMS_{SAT} sont données dans la table 5.4.4.

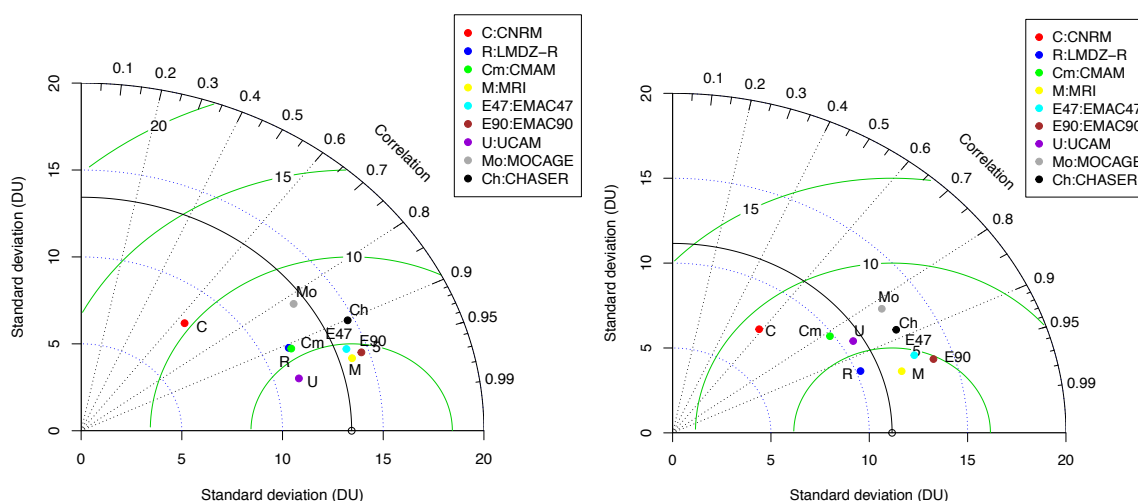


Figure 5.7. Diagramme de Taylor montrant l’écart-type de chaque simulation et celui de MSM (moyenne des observations satellitaires), le coefficient de corrélation R_{SAT} entre chaque simulation et MSM, l’erreur quadratique moyenne RMS_{SAT} entre chaque simulation et MSM (lignes vertes) à Bauru (diagramme à gauche) et à la Réunion (diagramme à droite). Notons que l’axe des écarts-types ne couvre pas le même domaine que sur le diagramme de Taylor basé sur SAOZ (figure 5.6). Il couvre 20 DU alors que ce n’est que 15 DU sur la figure 5.2.3.

Modèles	BAURU		REUNION	
	R_{SAT}	RMS_{SAT} (DU)	R_{SAT}	RMS_{SAT} (DU)
LMDZ Reprobus	0.92	4.17	0.90	5.72
CHASER	0.87	6.02	0.90	6.42
CNRM	0.59	9.18	0.61	10.23
EMAC47	0.92	4.96	0.93	4.96
EMAC90	0.95	4.98	0.95	4.63
MOCAGE	0.82	7.39	0.81	8.19
MRI	0.95	3.91	0.96	4.21
UCAM	0.86	5.91	0.96	4.17
CMAM	0.81	7.01	0.91	5.70
Moyenne	0.86	5.94	0.88	6.02

Table 5.2.3. Coefficient de corrélation R_{SAT} et erreur quadratique moyenne RMS_{SAT} entre les différents simulations et MSM pour Bauru et la Réunion.

Les écarts-types de MSM et de SAOZ sont très proches à Bauru, mais l’écart-type de MSM est plus élevé que l’écart-type de SAOZ à la Réunion (voir petit cercle sur l’axe des abscisses sur figure 5.6 et figure 5.7). Cependant, cela a peu d’impact globalement sur les résultats si la référence est MSM au lieu de SAOZ. Le coefficient de corrélation moyen passe de 0.85 (SAOZ) à 0.86 (MSM) pour Bauru et de 0.89 (SAOZ) à 0.88 (MSM) pour la Réunion. L’erreur RMS moyenne passe de 6.07 DU (SAOZ) à 5.94 DU (MSM) pour Bauru et de 5.73 DU (SAOZ) à 6.02 DU (MSM) pour Réunion. En prenant la MSM comme référence, la RMS moyenne devient légèrement plus élevées à la Réunion qu’à Bauru. C’était l’inverse avec SAOZ comme référence. Globalement, les statistiques changent peu. En revanche, les statistiques de quelques simulations changent nettement plus. On note, par exemple, que les indicateurs se dégradent à la Réunion pour CNRM avec une RMS qui passe de 7.91 DU (SAOZ) à 10.23 DU (MSM) et un R qui diminue de 0.73 à 0.61. Les statistiques sont meilleures pour certains modèles lorsque MSM est pris comme référence. Par exemple, MRI obtient de meilleurs scores puisque son R passe de 0.9 à 0.95 à Bauru et de 0.91 à 0.96 à la Réunion et sa RMS passe de 5.32 à 3.91 DU à Bauru et de 5.90 à 4.21 à la Réunion. MRI devient le meilleur modèle à la Réunion, juste devant LMDZ-R.

En conclusion des comparaisons effectuées entre les simulations et les observations (SAOZ et observations satellitaires) avec les diagrammes de Taylor, REPROBUS, MRI et UCAM semblent être les modèles les plus performants pour simuler la variabilité de la TOC aux deux

stations. MOCAGE et CNRM apparaissent comme les moins performants.

5.3 Variabilité interannuelle : contribution de différents forçages

5.3.1 Analyse en ondelettes

La variabilité de l’ozone dans la stratosphère tropicale est principalement dominée par la QBO et l’ENSO (Randel et Thompson, 2011). En utilisant la méthode des ondelettes, Vaz Peres et al. (2017) ont mis en évidence l’impact de différents forçages sur la variabilité de la TOC au sud du Brésil à São Martinho da Serra, une station subtropicale (29.26°S), en analysant des données d’un spectrophotomètre Brewer et des satellites TOMS et OMI. Dans son étude, Vaz Peres et al. (2017) ont observé une variabilité interannuelle de la TOC dominée par des variations de la TOC liées à la QBO (périodicité s’étalant entre 22 à 34 mois) et des variations dans la bande de 24 à 96 mois attribuées à l’ENSO. L’objectif principal ici est d’évaluer la capacité des CCMS à reproduire l’influence de différents forçages sur la variabilité interannuelle de la TOC observée à Bauru et à la Réunion. Notre étude est comparable à celle de Vaz Peres et al. (2017), mais centrée sur les stations tropicales de Bauru et de la Réunion. Pour vérifier les modes dominants de variabilité interannuelle de TOC et comment ces modes varient au cours du temps, les données de TOC de la moyenne des simulations CCMI excepté MOCAGE (MMM), du SAOZ et de la moyenne des séries satellitaires (MSM) ont été analysées à l’aide de transformées en ondelettes.

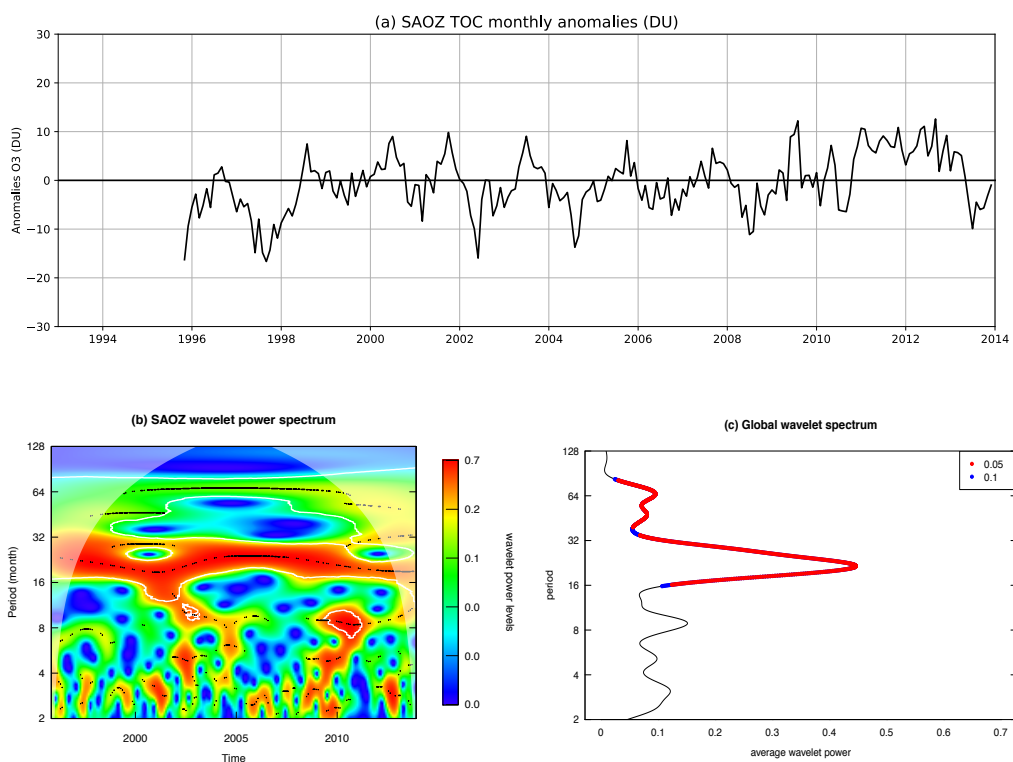
L’analyse en ondelettes est devenue un outil puissant pour l’analyse de la variabilité d’une série temporelle. Le principe est basé sur la décomposition d’une série temporelle en un espace temps-fréquence, permettant de déterminer à la fois les modes dominants de variabilité (de TOC ici) et de suivre leurs variations temporelles (Torrence et Compo, 1998). La transformée en ondelettes a été utilisée pour de nombreuses études en géophysique, y compris la convection tropicale (Yano et al., 2001), l’oscillation australe El Niño (Setoh et al., 1999), la variabilité de la TOC au Brésil (Vaz Peres et al., 2017), et la réponse de l’ozone stratosphérique tropicale aux cycles solaires (Thiéblemont et al., 2017).

Comme la variabilité de la TOC est largement dominée par le cycle saisonnier, l’utilisation de données brutes de TOC pour la transformée en ondelettes présente l’inconvénient d’avoir des spectres largement dominés par le cycle saisonnier ce qui a pour

conséquence de rendre moins visibles les modes de plus faible signature, notamment ceux de la variabilité interannuelle. Pour minimiser l’influence du cycle saisonnier, les séries de TOC mensuelles sont désaisonnalisées en soustrayant le cycle saisonnier moyen aux données brutes de la série. Cette nouvelle série est appelée données mensuelles des « anomalies ». Cela réduit très fortement la contribution de variabilité intra-annuelle dans la variance totale et donc mécaniquement augmente fortement la contribution de la variabilité interannuelle.

5.3.1.1 Bauru

La figure 5.8 présente les résultats portant sur la transformée en ondelettes de ces séries d’anomalies de TOC. Elle est composée de : a) de la série d’anomalies mensuelles d’une simulation, de SAOZ ou de la MSM, b) du spectre en ondelettes de la série et c) du spectre global qui montre les signatures les plus significatives (> 90% en bleue et > 95% en rouge) en $DU^2/2^7$.



Chapitre 5 : Étude comparative de la variabilité de la colonne d’ozone entre les données SAOZ/satellites et les modèles CCM1

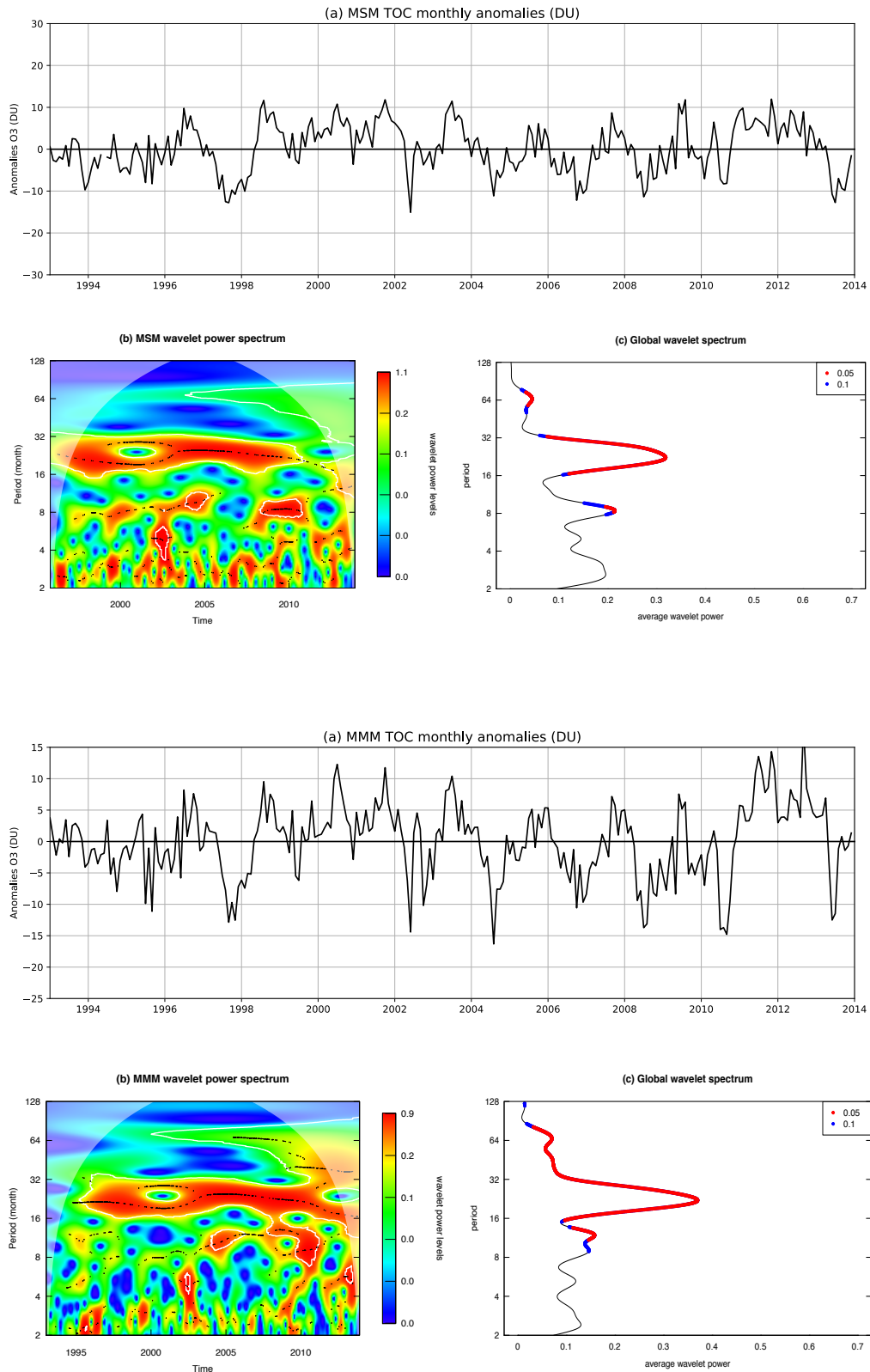


Figure 5.8. a) Série des anomalies mensuelles de TOC, b) le spectre en ondelettes et c) le spectre global, en partant du haut, SAOZ, MSM et MMM à Bauru de janvier 1993 à décembre 2013. L’ondelette mère dans la transformation est l’ondelette de Morlet. L’échelle

de puissance du spectre (b) est donnée par la barre de couleur à droite et le cône d’influence délimite le domaine hors-duquel les effets de bord deviennent importants. Dans le spectre global (c), la partie rouge représente les 95% de significativité du spectre et la partie bleue 90% de significativité. Les figures correspondant à chaque modèle se trouvent en annexe.

A Bauru, les séries d’anomalies de TOC dans SAOZ, MSM, et MMM (figures 5.8.a) montrent des fluctuations qui n’ont pas de périodicité annuelle (lignes fines verticales tous les 2 ans sur les figures). Les séries d’anomalies SAOZ et MSM sont en excellent accord en termes de variabilité haute fréquence. La série MMM reproduit aussi assez bien les fluctuations des anomalies SAOZ et MSM avec des pics et creux qui sont en phase avec ceux des observations. L’anomalie de TOC fluctue typiquement entre +/- 10 DU, aussi bien pour les observations que pour la moyenne des modèles (MMM). Vu leur nombre, les figures correspondant à chaque modèle ne sont pas présentées ici, elles se trouvent en annexe. EMAC (47 et 90) montrent les amplitudes de fluctuations les plus fortes, variant de +/- 15 DU, là où elles sont de l’ordre de +/- 10 DU pour les autres simulations et les observations. Sur cet intervalle de 20 ans, aucune série de simulation ou d’observations n’indique de tendance à long terme de la TOC excepté MOCAGE et CNRM qui montrent une tendance négative (voir Annexe).

Les spectres globaux (figure 5.8.c) mettent en évidence des signatures significatives de périodicités pour chaque série avec des seuils de significativités fixés à 90% (bleu) et 95% (rouge). Un pic assez large et intense est présent sur tous les spectres (tous les modèles et observations) ; il domine largement tous les autres pics. Le maximum du spectre se situe vers 26 mois pour MMM et les observations à Bauru. Ce pic correspond à la période de l’oscillation quasi-biennale (QBO) et confirme l’influence de la QBO sur la TOC. L’évolution temporelle du signal QBO est présentée sur les spectres en ondelettes qui sont remarquablement similaires dans l’ensemble (figure 5.8.b). L’influence de la QBO est plus ou moins visible sur tout l’intervalle de temps avec des légères et lentes variations de la période du signal QBO. Il y a quelques différences mineures entre les spectres d’ondelette SAOZ, MSM et MMM. Avant 1996, le signal QBO est quasi inexistant dans le spectre en ondelettes MMM, contrairement aux spectres des observations (SAOZ, MSM). Néanmoins, certaines simulations telles que LMDZ-R et MRI contiennent ce signal QBO avant 1996 (voir Annexe). Après 2010, l’impact de la QBO est nettement plus faible dans le spectre MSM, alors que le signal reste intense sur

SAOZ et MMM, même si la période du signal QBO semble se dédoubler. Cette influence de la QBO et plus spécifiquement de l'alternance de phase de la QBO sur la TOC a déjà été bien étudiée. Durant la phase d'Est de la QBO, la propagation verticale des ondes de Rossby est favorisée, accélérant la circulation de Brewer-Dobson (BD) et donc diminuant la TOC aux tropiques (la partie d'ascendance de la circulation BD) et augmentant la TOC aux sub-tropiques (dans la partie descendante de la circulation BD) (Barsby et Diab, 1995). Durant la phase Ouest, on observe le phénomène inverse. Cette corrélation entre la phase de la QBO et les anomalies est bien visible sur les figures des séries des anomalies. Les modèles reproduisent assez bien ce lien entre la TOC et la QBO. En revanche, le signal QBO peut être assez intermittent dans certaines simulations. Par exemple, il n'y a pratiquement pas de signal QBO avant 2000 dans le spectre en ondelettes de MOCAGE. L'intensité moyenne de la signature QBO sur toute la période est donnée par le spectre global (figure 5.8.c). Toutes les simulations et observations montrent un pic vers 27 mois mais d'intensité assez variable selon la série.

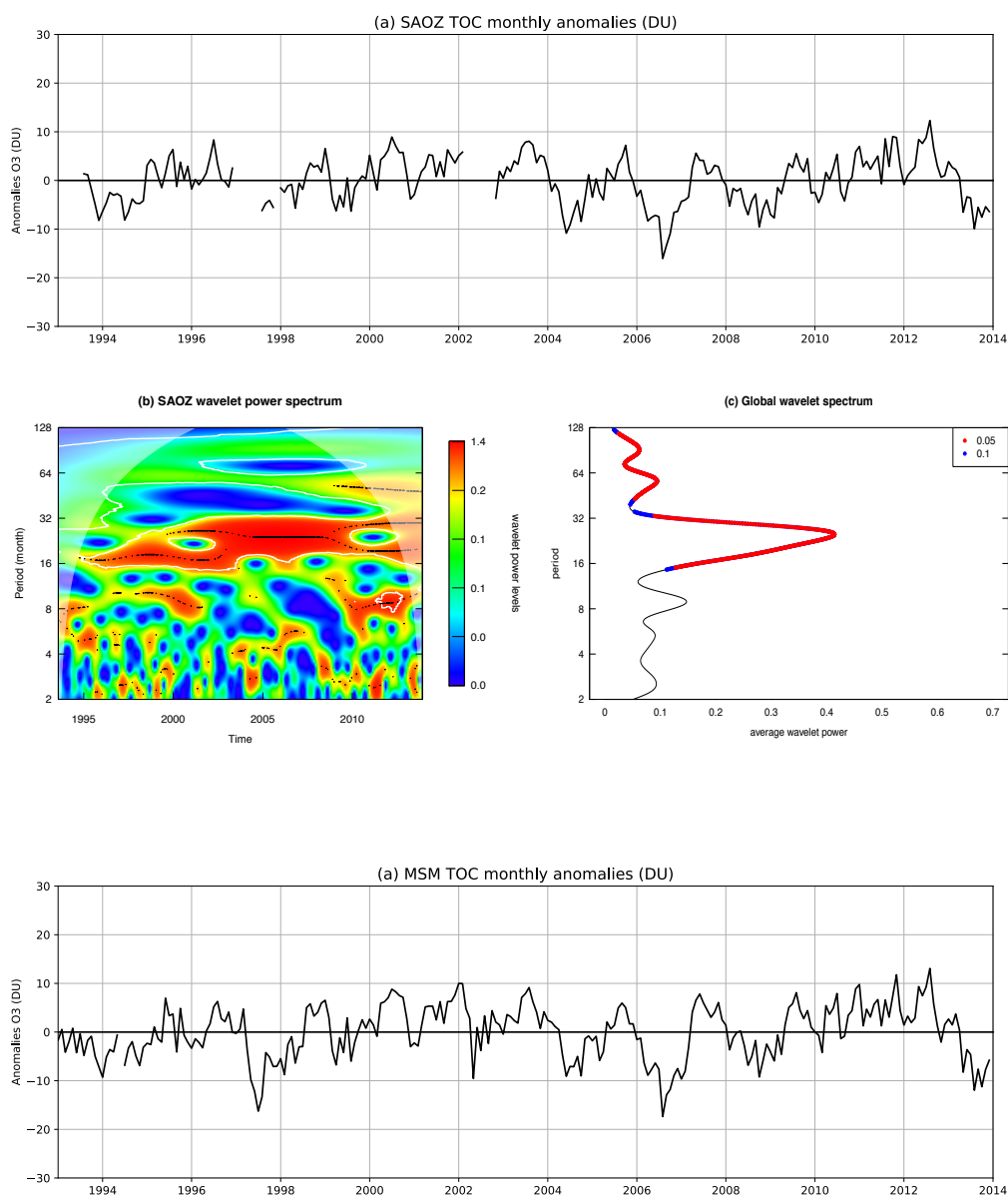
On observe un autre pic significatif commun aux 3 spectres globaux (SAOZ, MSM, MMM). Il est beaucoup plus faible que le pic QBO et est centré sur 50-70 mois (environ 5 ans). Ce pic est absent dans le spectre global de plusieurs simulations. Ziemke et al. (2015) ont montré que l'ENSO possédait une échelle de temps variant de 2 à 7 ans. ENSO pourrait être à l'origine de ce faible pic. Shiotani (1992) et Kayano (1997) ont trouvé que le champ d'anomalie de TOC dans les tropiques est dominé par une onde zonale, avec une augmentation (diminution) de la concentration d'ozone dans le Pacifique occidental (Est) où la convection est anormalement inactive (active) durant la phase positive (négative) de l'ENSO (Lee et al., 2010). L'influence de l'ENSO sur la TOC tropicale a été attribuée à l'ondulation de la tropopause tropicale sous l'effet des anomalies de convection associées à l'ENSO (Hasebe 1993). Cependant, selon le spectre d'ondelette, la contribution de l'ENSO à la variabilité de la TOC est très faible dans toutes les observations et simulations (voir absente pour certaines) à Bauru.

Un 3ème pic est observé sur les spectres. Il est situé à 8 mois dans le spectre de MSM. Ce pic n'est pas observé sur le spectre SAOZ. Le même pic est présent dans le spectre MMM mais, contrairement à MSM, il est situé vers 10 mois. Dans le spectre MMM, le pic se trouve sur « l'épaule » d'un pic plus intense situé à 13 mois. Il est fort possible que ce pic centré vers 12 mois ait pour origine une dessaisonalisation incomplète de la série MMM, probablement lié à un cycle saisonnier irrégulier. L'origine du pic à 8 mois dans le spectre de MSM n'est pas claire

car, à ma connaissance, il n’existe pas de forçage ou mode de variabilité atmosphérique ayant une période de 8 mois.

5.3.1.2 Réunion

La même analyse en ondelettes est réalisée pour la Réunion. Les résultats obtenus pour les observations et MMM sont présentés sur la figure 5.9. Les Figures pour chaque simulation se trouvent dans l’annexe.



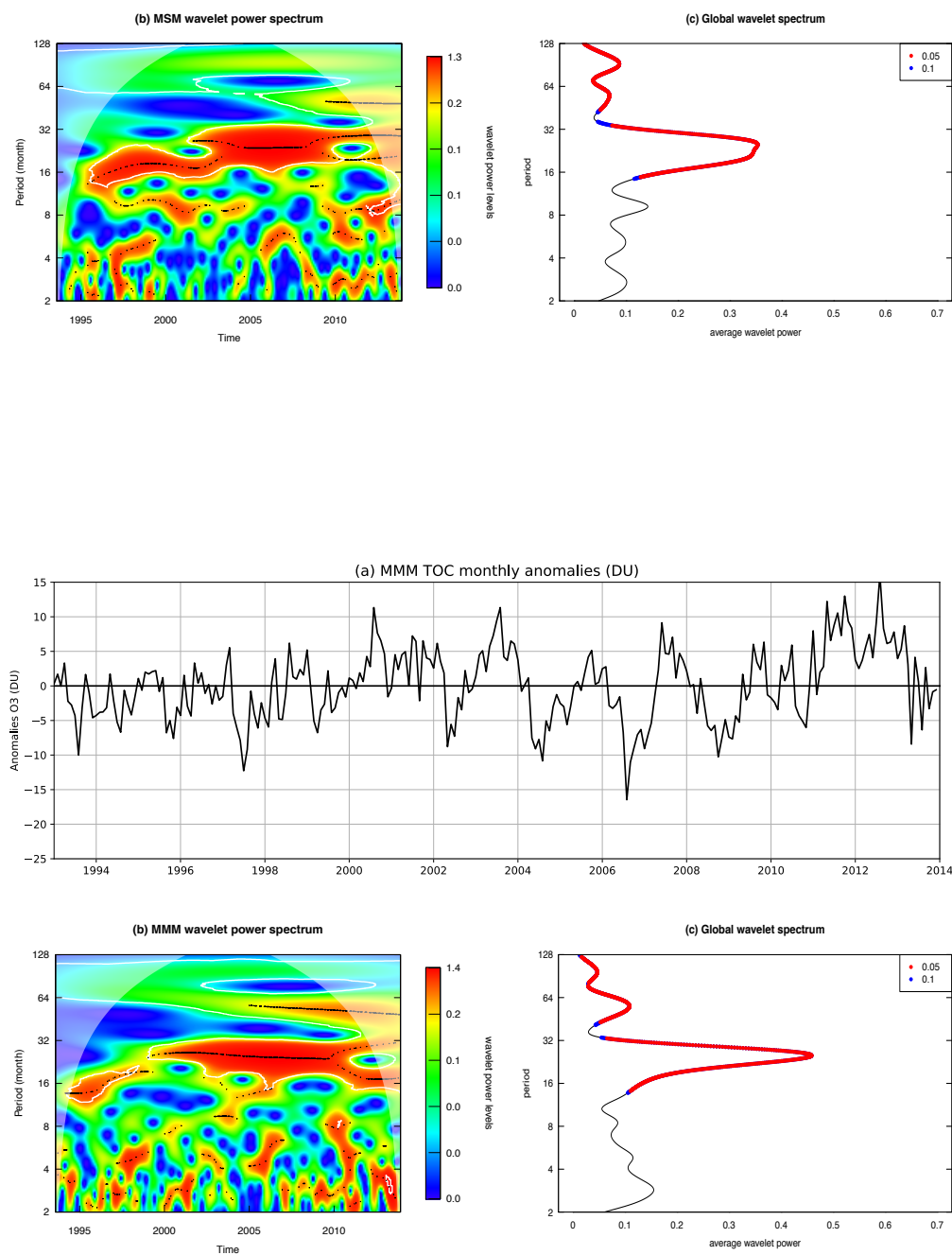


Figure 5.9. Même légende que figure 5.8, excepté Réunion au lieu de Bauru.

A la Réunion, comme à Bauru, les séries d’anomalies SAOZ et MSM sont extrêmement proches l’une de l’autre (figures 5.9.a) et la série MMM reproduit assez bien les fluctuations des anomalies SAOZ et MSM. L’anomalie de TOC fluctue entre +/- 10 DU dans les 3 séries. Comme à Bauru, aucune série de simulation ou d’observations n’indique de tendance à long terme de la TOC excepté MOCAGE et CNRM (voir Annexe).

On retrouve le pic largement dominant de la QBO dans les 3 spectres globaux (figure 5.9.c). Le maximum du pic se situe plutôt vers 27 mois pour les observations à la Réunion au lieu de 26 mois à Bauru. Il reste à 27 mois dans le spectre global MMM. Les spectres en ondelettes (SAOZ, MSM, MMM) sont très similaires (figure 5.9.b) et montrent tous les 3 une période nettement plus faible du signal QBO avant 2000, ce qui n’était pas le cas à Bauru.

Sur 3 spectres globaux (SAOZ, MSM, MMM) à Réunion, on remarque le même double pic très significatif qui s’étale entre 40 et 130 mois (environ 3-10 ans). Sur les spectres à Bauru, il n’y avait qu’un seul petit pic dans ce domaine de fréquence. Cette différence est intéressante car elle suggère que l’ENSO a plus d’influence à la Réunion qu’à Bauru. L’ENSO est un phénomène tropical du Pacifique couplant atmosphère et océan qui module l’ozone de la basse stratosphère (Manatsa et Mukwada, 2017). Bauru est situé dans une zone continentale alors que la Réunion se trouve dans une zone océanique. Pour cette raison, on s’attend à ce que la Réunion soit plus sensible que Bauru aux fluctuations de SST (*Sea Surface Temperature* en anglais), notamment celles liées à l’ENSO.

Contrairement à Bauru, il n’y a pas de 3ème pic significatif vers 8 mois sur les spectres SAOZ, MSM et MMM à la Réunion. Le même pic est présent dans les spectres des observations vers 12 mois, mais contrairement à Bauru, il n’est pas significatif. Le pic centré vers 12 mois sur les spectres des observations confirme une origine de dessaisonalisation incomplète à Bauru, probablement lié à un cycle saisonnier irrégulier. Concernant l’origine du pic observé à 8 mois à Bauru, son origine reste inconnue.

Si on regarde les résultats des simulations individuellement (Annexe), on retrouve plus ou moins la même hiérarchie des modèles avec MOCAGE ayant le plus de mal à reproduire les signatures spectrales de la variabilité de la TOC aux 2 stations.

5.3.2 Contribution de différents forçages à la variabilité de la colonne d’ozone

La variabilité interannuelle de l’ozone dans la stratosphère tropicale est principalement dominée par la QBO et l’ENSO (Randel et Thompson, 2011), comme indiqué par les résultats de la section précédente. Poulain et al. (2016) ont analysé des données d’observation et des simulations sur une période de 10 ans (1994-2004) et ont trouvé qu’environ 20% de la

variabilité interannuelle de la TOC (en termes de variance) est expliqué par la QBO et de 5 à 20% par l’ENSO aux tropiques. Cependant d’autres effets sont à prendre en compte dans la variabilité de l’ozone stratosphérique notamment l’influence des variations solaires (Bojkov et Fioletov, 1995; Zerefos et al., 1997; Fioletov, 2009) et des aérosols volcaniques dans la stratosphère issus des violentes éruptions (Muthers et al., 2015).

L’objectif de cette section est d’évaluer la capacité des modèles à simuler l’influence des forçages externes individuels sur la variabilité de la TOC à Bauru et Réunion. Afin d’estimer les différentes contributions des forçages externes sur la TOC, la méthode de la régression linéaire multiple (MLR) avec la transformation de Cochrane-Orcutt décrite en détail dans la section 3.3 est appliquée aux données SAOZ, la moyenne des satellites (MSM) et la moyenne des simulations (MMM). Cinq variables endogènes (i.e. forçages : QBO, ENSO, latitude équivalente, charge d’aérosol stratosphérique, activité solaire) sont considérées dans la MLR et les variables exogènes (i.e. dépendantes) sont les séries temporelles des anomalies (données désaisonnalisées) SAOZ, MSM et MMM aux deux stations.

La figure 5.10 montre les forçages externes qui ont été utilisés dans la MLR sur la période 1993-2017. Concernant la QBO, la figure montre l’alternance entre phase d’Est (en rouge) et d’Ouest (en bleue). Il est intéressant de noter deux phases d’Est consécutives à partir de 2015 ce qui n’avait jamais été observée. La figure de l’ENSO présente l’alternance de phase entre El Niño (en rouge) et La Niña (en bleue) avec des maxima forts de la phase El Niño en 1997 et 2015. Quant à la latitude équivalente, on observe des variations saisonnières à Bauru de l’ordre de 10-15° d’amplitude avec une dérive vers l’équateur en termes de latitude équivalente à partir de 2003-2004. Les variations saisonnières de la latitude équivalente à Réunion sont beaucoup moins prononcées qu’à Bauru. Quant à la charge d’aérosols stratosphériques, on remarque deux maxima, l’un durant l’année 2006-2007 à la suite de l’éruption du volcan la Soufrière Hills (Flower et Carn, 2015) situé dans les Antilles et le suivant en 2015 qui est la conséquence de l’éruption du volcan Calbuco au Chili. La dernière figure présente le flux solaire mesurée à la longueur d’onde à 10.7 cm qui est utilisé comme proxy de l’activité solaire. Deux cycles solaires de 11 ans sont observés, l’un durant la période 1997-2008 et l’autre de 2009 à aujourd’hui. On remarque que l’amplitude du premier cycle est environ deux fois plus élevée que le second avec un maximum en 2001-2002. Le second cycle montre des maxima en 2012 et 2014.

Chapitre 5 : Étude comparative de la variabilité de la colonne d’ozone entre les données SAOZ/satellites et les modèles CCM1

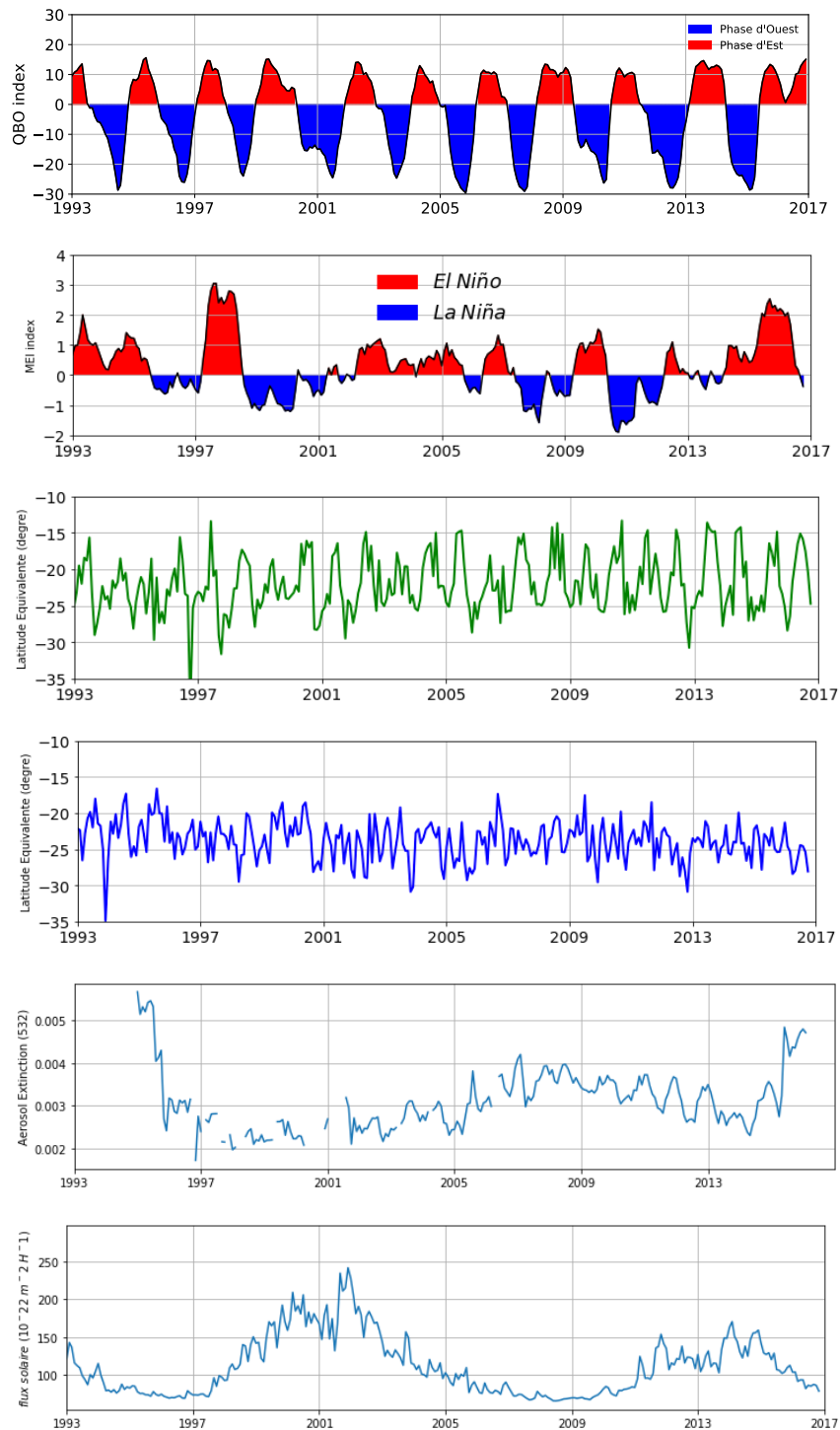


Figure 5.10. Forcages utilisés dans la MLR. De haut en bas, la QBO, l’ENSO, la latitude équivalente (Bauru : courbe verte, la Réunion : courbe bleue), le coefficient d’extinction des aérosols et le flux solaire à 10.7cm.

Les tables 5.3.2.1 et 5.3.2.2 présentent les contributions des différents forcages à la variabilité expliquée (la partie de la variance qui est expliquée par le modèle de régression

linéaire) de la TOC pour SAOZ, la moyenne des satellites (MSM) et la moyenne des simulations (MMM) à Bauru et à la Réunion respectivement. Les contributions des forçages à la variabilité de MSM (ou de MMM) ont été calculées en moyennant les contributions calculées par MLR pour chaque instrument satellitaire (ou chaque simulation).

Modèles et instruments	QBO	ENSO	Eq. Lat	Aérosols	Solaire
SAOZ	41.3±5.9	18.1±5.6	13.1±6.2	5.2±6.1	18.3±6.2
MSM	41.5±4.7	17.8±4.8	10.7±4.7	6.0±5.5	21.1±5.4
MMM	43.6±5.2	14.9±5.3	11.2±5.2	6.0±6.1	21.4±6.0

Table 5.3.2.1. Contribution des différents forçages (en %) à la variabilité expliquée (la partie de la variance qui est expliquée par le modèle de régression linéaire) de la TOC à Bauru

Les résultats pour MMM, SAOZ et MSM confirment que la QBO est le forçage le plus important pour la variabilité de la TOC à Bauru. Ce maximum est cohérent avec les amplitudes spectrales obtenues par la méthode des ondelettes (figure 5.8). La contribution de la QBO pour MSM est quasi-identique à celle de SAOZ. Les modèles surestiment légèrement cette contribution. La contribution moyenne de la QBO (moyenne des contributions MMM, SAOZ et MSM) est d’environ 42% soit 12 DU pour une TOC moyenne de 275 DU. La QBO est l’événement périodique le plus influant de la stratosphère tropicale, se traduisant par une contribution prépondérante à la variabilité interannuelle de la TOC. Après la QBO, les 2 autres forçages dominants sont la variabilité solaire et l’ENSO. Les contributions de ces 2 forçages sont du même ordre et varient entre 15 et 21% selon la série considérée. On peut remarquer que la périodicité du cycle solaire (11 ans) n’apparaît pas dans les spectres d’ondelettes (figure 5.8) car la plus longue période considérée est environ 10 ans. Néanmoins, il est fort possible que le pic vers 50-70 mois dans les spectres d’ondelette à Bauru soit, non pas un signal ENSO comme suggéré dans la section précédente mais plutôt une subharmonique du signal solaire à 11 ans. Le flux solaire joue un rôle important dans la variabilité de la TOC, notamment aux tropiques, où le rayonnement est le plus important tout au long de l’année influençant la photolyse de l’oxygène moléculaire et donc la production d’ozone (Haigh, 1994). ENSO est un phénomène se produisant dans le Pacifique. Il combine un changement de température des eaux de surface tropicales (SST) et un déplacement vers l’Est de la circulation de Walker renforçant ainsi la convection en Amérique du Sud qui se traduit par une modulation de la colonne totale d’ozone (Chandra et al., 2007; Inness et al., 2015). Les satellites et le SAOZ montrent une contribution

assez similaire de l’ENSO, alors que la contribution est généralement plus faible dans les modèles.

Le quatrième forçage par ordre d’importance dans la variabilité de la TOC est la latitude équivalente à hauteur d’environ 11% en moyenne, avec SAOZ à 13% et MSM et MMM à 10%. Le dernier forçage considéré dans la MLR est la charge en aérosols stratosphériques. Cette charge en aérosols a une faible influence (<10%), qui n’est pas significative de toutes manières.

Modèles et instruments	QBO	ENSO	Eq. Lat	Aérosols	Solaire
SAOZ	42.3 ± 5.7	22 ± 5.6	4.0 ± 6.0	9.3 ± 6.0	20.3 ± 6.4
MSM	44.1 ± 5.2	20 ± 5.0	5.2 ± 5.2	7.0 ± 5.8	20.9 ± 5.8
MMM	43.0 ± 5.4	23 ± 5.6	9.1 ± 5.8	3.5 ± 5.4	22.0 ± 5.4

Table 5.3.2.2. Contribution des différents forçages (en %) à la variabilité expliquée (la partie de la variance qui est expliquée par le modèle de régression linéaire) de la TOC à la Réunion.

A la Réunion, comme Bauru, les résultats pour SAOZ, MSM et MM sont assez similaires. La QBO reste le principal facteur de modulation de la TOC. Le caractère quasi-biennal de la QBO traduit un impact sur la modulation de l’ozone plus régulier et important que les autres phénomènes dont la fréquence/périodicité est plus variable. La contribution moyenne de la QBO est de 44% (~13 DU). Ces résultats sont cohérents avec les signatures spectrales obtenues avec l’analyse en ondelette (figure 5.9).

Ensuite, on retrouve l’ENSO et la variabilité solaire qui ont des contributions comparables à la variabilité de la TOC. La contribution moyenne de l’ENSO est d’environ 22% alors que celle de la variabilité solaire est d’environ 21%. Pour finir, la charge d’aérosols et la latitude équivalente ont des contributions inférieures à 10%, qui ne sont pas significatives à la Réunion. Tous ces résultats sur les contributions des différents forçages à Réunion sont cohérents avec ceux obtenus pour Bauru.

5.4 Conclusion

Ce chapitre a permis d’évaluer la capacité des modèles à reproduire les variations interannuelles de la TOC et sa modulation par différents forçages aux stations tropicales, que sont Bauru et la Réunion. Pour ce faire, on a comparé les résultats de différentes analyses statistiques (e.g. diagramme de Taylor, MLR) réalisées sur des séries de TOC mesurées par le spectromètre UV-Visible SAOZ et par différents instruments satellitaires et simulées par différents modèles de chimie-climat guidés par des réanalyses météorologiques (mode chimie-transport). Toutes les données (observations, simulations) sont traitées avec les mêmes méthodes d’analyses afin d’obtenir des résultats comparables.

Tout d’abord une étude des biais et de la saisonnalité est présentée. Cette étude montre une surestimation par les modèles de la TOC aux 2 stations, d’environ ~3% (9 DU) par rapport aux mesures satellitaires et SAOZ.

On a estimé les contributions de différents forçages à la variabilité forcée de la TOC (estimée par MLR). Les modèles ont montré une bonne capacité à reproduire les variations interannuelles de TOC. Cependant, les performances varient nettement d’un modèle à l’autre. Les modèles semblent sous-estimer légèrement la variabilité interannuelle de la TOC.

Le forçage le plus important pour la variabilité de la TOC tropicale est la QBO, suivi de la variabilité solaire. Ces résultats semblent cohérents avec ceux obtenus par Poulain et al. (2016). On constate cependant, une contribution de l’ENSO plus importante à la Réunion qu’à Bauru.

A Bauru, la contribution des variations en latitude équivalente à la variabilité de la TOC est significative (>10%), notamment selon les données SAOZ. Ce n’est pas le cas à la Réunion avec une contribution de la latitude équivalente inférieure à 10%. La charge d’aérosols n’est pas un forçage significatif aux les deux stations. Dans l’ensemble, les résultats traduisent un très bon accord entre les simulations et les observations.

6. Conclusion générale et perspectives

Dans l'atmosphère, l'ozone est un constituant minoritaire possédant des propriétés remarquables dues à sa capacité d'absorption du rayonnement solaire UV dans la stratosphère ce qui lui confère un rôle primordial dans la protection des êtres vivants. Des variations importantes d'ozone peuvent ainsi avoir des répercussions néfastes sur les espèces vivantes sur Terre. L'ozone joue aussi un rôle important dans l'équilibre radiatif de l'atmosphère.

Depuis plusieurs décennies, l'ozone représente un intérêt majeur pour la communauté scientifique. En effet, des diminutions importantes de l'épaisseur de la couche d'ozone stratosphérique ont été détectées en 1985 à Halley Bay en Antarctique par des mesures au sol. Ce phénomène est appelé le « trou d'ozone ». La cause principale a été les émissions de différents composés chimiques d'origine industrielle qui contiennent des halogènes (chlore, brome) destructeurs d'ozone. On les nomme ODS (*Ozone Depleting Substances* en anglais), tels que les chlorofluorocarbones (CFCs) et les halons. Afin de minimiser l'abondance des ODS, le protocole de Montréal adopté en 1987 a permis une réglementation stricte et même une interdiction de la production des ODS. L'application de ce protocole a permis de réduire très fortement les émissions d'ODS. La charge stratosphérique en chlore et brome diminue depuis la fin des années 90, ce qui devrait permettre un retour à des teneurs d'ozone approchant les niveaux de référence de 1980 à partir des années 2060.

L'étude de la variabilité et des tendances de l'ozone stratosphérique est un enjeu scientifique et politique. Sur le plan politique, il est important de savoir si un protocole international, tel que le protocole de Montréal, a les effets escomptés sur la couche d'ozone. Les études de tendances faites à partir de données historiques permettent de quantifier les changements passés et de mieux comprendre et valider les modèles dans le but de prédire l'évolution future de l'ozone stratosphérique. Les régions tropicales représentent un intérêt particulier car aucune tendance significative à long terme n'y a été détectée alors que les modèles prédisent une légère diminution de l'épaisseur de la couche qui serait liée à une accélération de la circulation de Brewer-Dobson, qui là encore n'a pas été détectée dans les observations. A part le cas particulier de l'Antarctique au printemps, l'épaisseur de la couche d'ozone est à son minimum aux tropiques. Une diminution de la colonne d'ozone tropicale représenterait un risque de santé non négligeable dans les régions tropicales peuplées.

La thèse est centrée sur l'étude des variations de la colonne d'ozone (TOC) mesurée à 2 stations tropicales, celle de Bauru au Brésil et celle de La Réunion dans l'Océan Indien. Dans une première partie de la thèse, les mesures de TOC du spectromètre UV-Visible SAOZ et celles satellitaires sont comparées et évaluées. Les données satellitaires considérées sont celles issues de SBUV/2, EP-TOMS, GOME CCI, OMI CCI, OMI DOAS, OMI TOMS, SCIAMACHY CCI, GOME 2 CCI, OMPS NPP et IASI. Après avoir quantifié les biais entre données satellitaires et SAOZ, les différentes causes possibles de ces biais sont analysées. Cette étude est nécessaire car les données SAOZ sont souvent utilisées comme données de référence dans la validation des données satellitaires et la création de jeux de données satellitaires composites. Dans la 2^{ème} partie, la capacité de modèles de chimie-climat (guidés par des analyses météorologiques) à reproduire la variabilité de la TOC aux 2 stations est évaluée par des comparaisons aux séries de données d'observations (SAOZ, satellitaires). Ce travail est important car ces modèles sont utilisés pour comprendre la variabilité passée de la TOC, réaliser des études d'attribution et enfin pour faire des projections de l'évolution future de la couche d'ozone.

La première partie de cette thèse a essentiellement permis d'évaluer la qualité des mesures de colonne d'ozone (TOC) obtenues à partir de différents instruments (SAOZ au sol et instruments satellitaires) aux 2 stations tropicales. Une analyse des séries de TOC des satellites et SAOZ a permis de mettre en évidence l'impact du cycle de la QBO et du cycle solaire de 11 ans sur la variabilité interannuelle de l'ozone. Les comparaisons entre les différents jeux de mesures ont montré l'existence de biais entre les données satellitaires et entre les données satellitaires et SAOZ. Il faut souligner qu'en général, les biais sont faibles, de l'ordre de 1-2%. L'un des résultats les plus déroutants est une dérive du biais entre SAOZ et toutes les données satellitaires entre 2003-2004 et 2016 à Bauru, contrairement à la Réunion où aucun changement significatif du biais n'est observé. Enfin, cette analyse a mis en évidence l'existence d'une saisonnalité du biais entre SAOZ et données satellitaires aux deux stations.

Différents facteurs ont été étudiés pour expliquer ces biais entre les différents jeux de mesures. Concernant les biais systématiques moyens, les causes les plus probables sont les différences de caractéristiques instrumentales : bandes de longueur d'onde de la mesure (qui va de l'UV à l'infrarouge), sections efficaces y compris à la dépendance en température, et le traitement d'inversion des données brutes. S'ajoutant à cela, on peut aussi souligner que, du fait de la géométrie de mesure (lever et coucher du soleil), SAOZ est moins sensible aux variations d'ozone troposphérique que les instruments spatiaux (géométrie nadir des mesures).

La saisonnalité du biais entre SAOZ et données satellitaires est attribuée à la variabilité des propriétés optiques atmosphériques impliquant plusieurs phénomènes saisonniers tels que la saison des cyclones à la Réunion, et les événements convectifs et orageux pendant la saison estivale à Bauru. Durant la saison estivale, la présence de nuages est récurrente ce qui a pour conséquence de masquer une partie de la TOC en dessous des nuages affectant ainsi les mesures des instruments spatiaux. Contrairement aux instruments spatiaux, le SAOZ est beaucoup moins sensible à la présence des nuages du au fait d'un parcours optique essentiellement dans la stratosphère. Il est aussi possible que la saisonnalité des climatologies de profils zonaux utilisée dans le calcul du facteur de masse d'air (AMF), qui permet d'estimer à la colonne verticale d'ozone, c'est-à-dire la TOC, à partir de la mesure SAOZ de la colonne oblique, ne soit pas correcte, ce qui contribuerait à un artefact de saisonnalité de la mesure SAOZ et donc du biais entre SAOZ et observations satellitaires.

La cause la plus probable de la dérive du biais observée entre SAOZ et toutes mesures satellitaires à Bauru est une dérive de la position de Bauru par rapport à distribution moyenne de l'ozone à grande échelle. Cette dérive est mise en évidence en suivant la position de la station en latitude équivalente (coordonnée dérivée de la vorticité potentielle). Ces variations à long terme de latitude équivalente sont certainement accompagnées de variations du profil d'ozone. Comme la climatologie des profils utilisée dans le calcul de l'AMF pour la restitution SAOZ est seulement basée sur la latitude géographique, la forme du profil d'ozone ne change pas d'une année sur l'autre ce qui pourrait introduire un biais dérivant de la TOC SAOZ. Il serait donc intéressant de tester le calcul de l'AMF en prenant en entrée des profils observés d'ozone pour voir si les TOC SAOZ restituées ainsi sont en accord avec les données satellitaires. A plus long terme, il serait certainement préférable d'utiliser dans le calcul de l'AMF une climatologie d'ozone basée, non pas sur la latitude géographique, mais sur la latitude équivalente.

La première partie de cette thèse a permis d'identifier et de caractériser les différences entre les jeux de données d'observations (SAOZ et satellites). La 2^{ème} partie est consacrée à évaluer la capacité des modèles en mode chimie-transport à simuler la TOC et sa variabilité aux 2 stations en comparant les simulations aux observations. Les modèles ont tendance à surestimer la colonne d'ozone, d'environ ~3% par rapport aux séries d'observations. Les diagnostics du diagramme de Taylor montrent que les modèles simulent de manière assez satisfaisante la variabilité de la TOC bien que les performances varient fortement d'un modèle à l'autre avec une surestimation d'environ 3% par rapport aux observations.

Comme les variations saisonnières dominent largement la variabilité de la TOC, elles

sont éliminées pour analyser la variabilité interannuelle et les forçages dominants qui la modulent. Une analyse spectrale par transformée en ondelettes et des régressions linéaires multivariées des données désaisonnalisées des modèles, de SAOZ et des observations ont permis ensuite d'identifier et de quantifier l'influence de forçages sur la variabilité interannuelle de la TOC. Les forçages externes les plus importants sont la QBO et le cycle solaire. Ils contribuent à hauteur de 20 à 40% à la variabilité interannuelle expliquée (la partie de la variance qui est simulée par le modèle de régression linéaire). Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus par Poulain et al. (2016) s'appuyant sur une étude en ondelette et l'ajout de la latitude équivalente non pris en compte par Poulain et al. (2016). On constate cependant une contribution de l'ENSO plus élevée à la Réunion qu'à Bauru. Ceci pourrait être expliquée par le fait que Bauru soit située dans une zone continentale, ce qui tend à minimiser les effets de l'ENSO, contrairement à la Réunion située dans une zone océanique. À Bauru, la variation de latitude équivalente a une contribution significative (>10%) à la variabilité interannuelle contrairement à la Réunion. Quant à la charge en aérosols stratosphériques (largement sous le contrôle des éruptions volcaniques), sa contribution est non significative aux deux stations tropicales entre 1995-2016. La plupart des modèles semblent capables de reproduire l'influence des forçages dominants sur la TOC tropicale. Néanmoins, certains modèles présentent des déficiences assez marquantes. Il serait intéressant de poursuivre ce travail d'évaluation des modèles en considérant aussi les colonnes de dioxyde d'azote (NO₂), un des radicaux clés dans la chimie de l'ozone, qui est mesuré par SAOZ et plusieurs instruments satellitaires. Il faudrait aussi combiner cette étude sur NO₂ avec celle de traceurs à longue durée de vie (CH₄, N₂O) pour pouvoir distinguer le rôle entre la chimie et le transport dans les modèles. On peut noter que les simulations considérées ont été réalisées en mode chimie-transport (guidées par les analyse météorologiques). Il est possible que les différences entre observations et modèles auraient été beaucoup plus grandes si des simulations chimie-climat (champs de vents et de température calculés par le modèle) avaient été analysées. Il serait donc utile de répéter l'étude en considérant des simulations des mêmes modèles mais en mode chimie-climat afin d'évaluer l'impact des différents forçages sur la variabilité de l'ozone et d'en quantifier les différences.

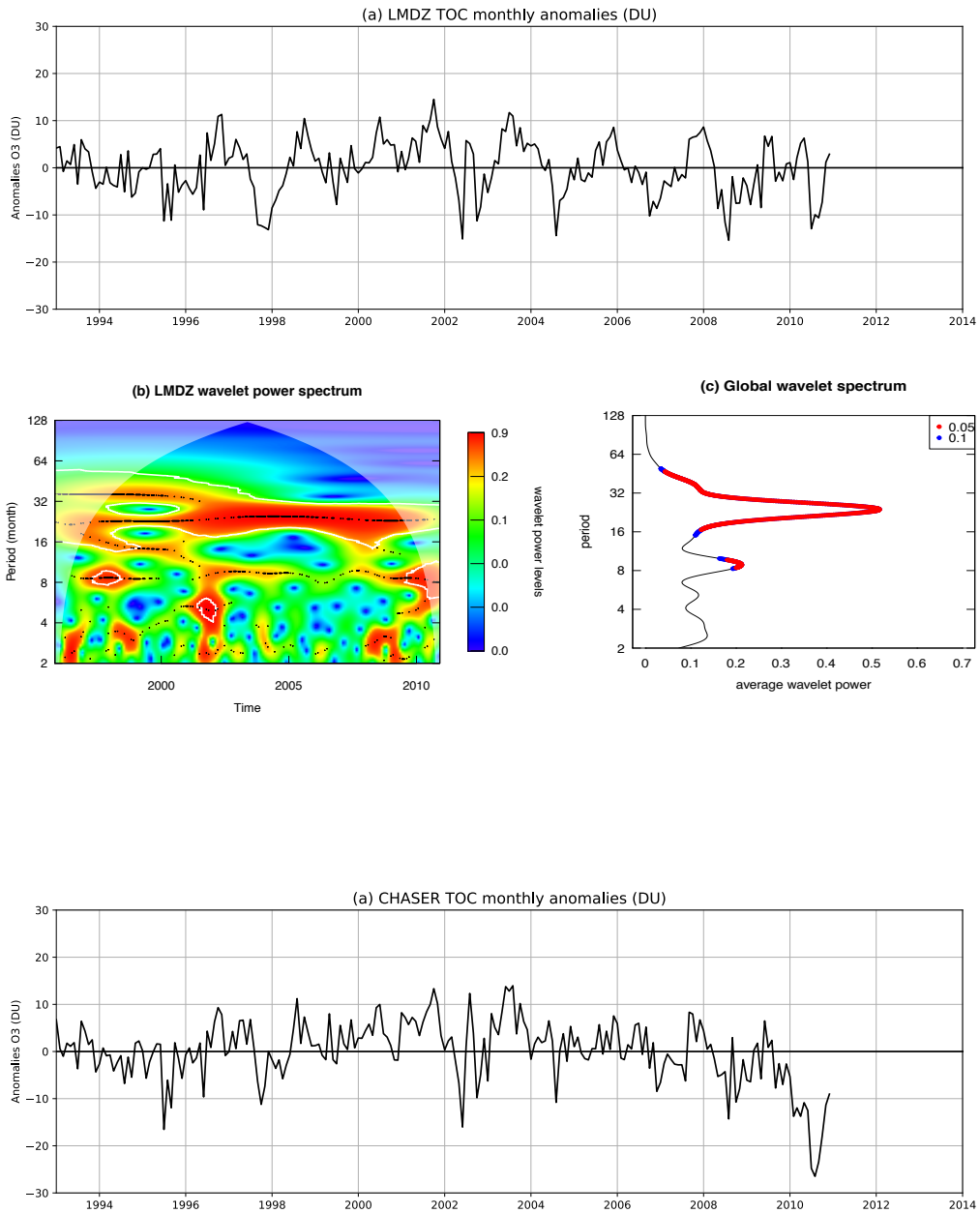
Les relations qui existent entre l'ozone et les changements climatiques sont très complexes et loin d'être élucidées, d'où la nécessité de développer et de renforcer la surveillance dans ce domaine. C'est dans cette optique que de nouveaux projets satellitaires ont vu le jour, notamment avec le satellite Sentinel-5 Precursor du programme européen Copernicus lancé en octobre 2017, mis au point pour assurer la continuité des observations de l'instrument

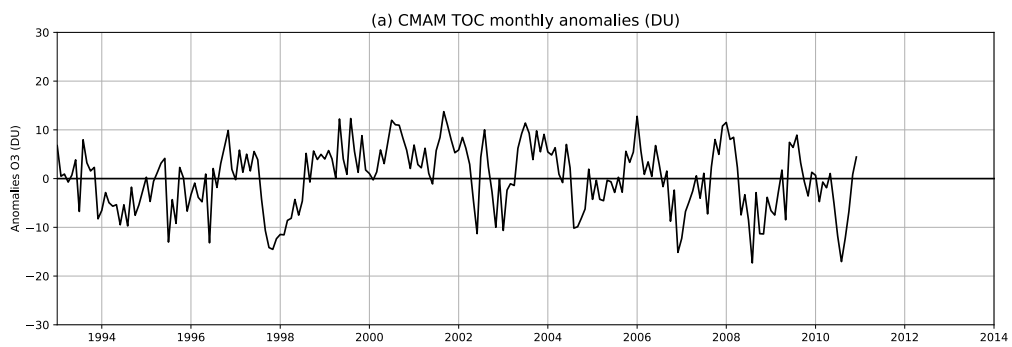
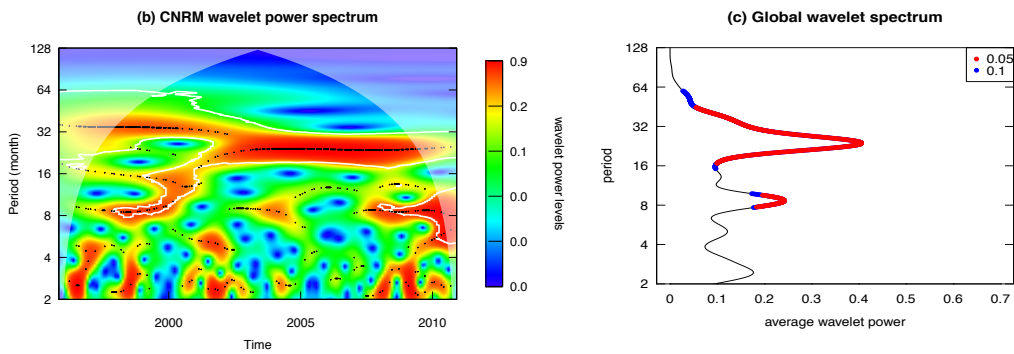
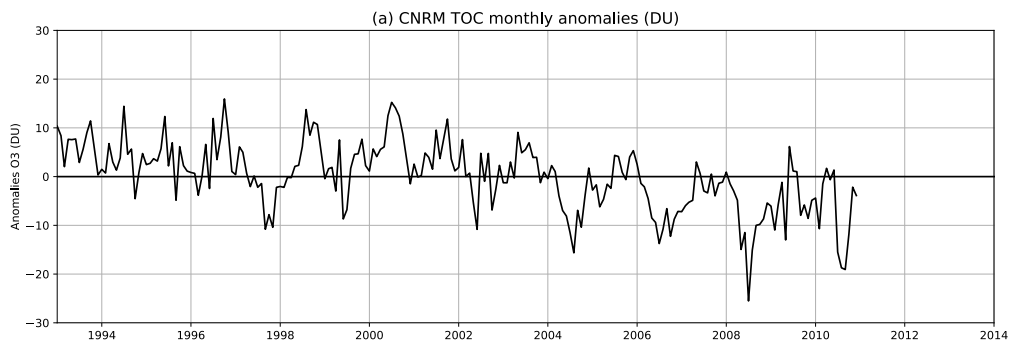
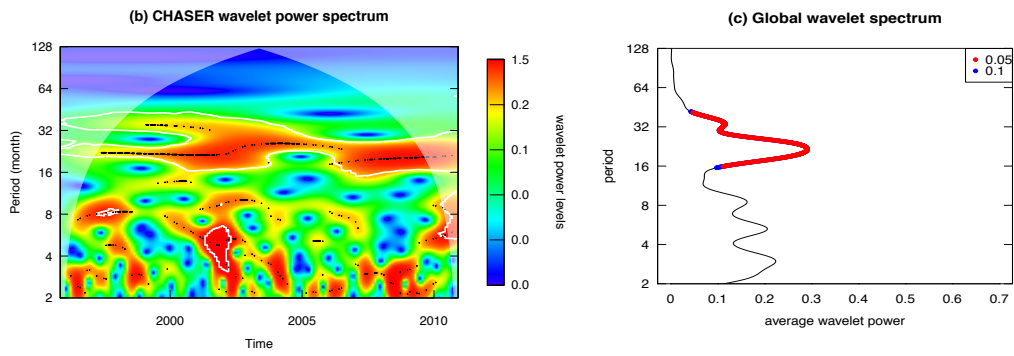
Chapitre 6 : Conclusion générale et perspectives

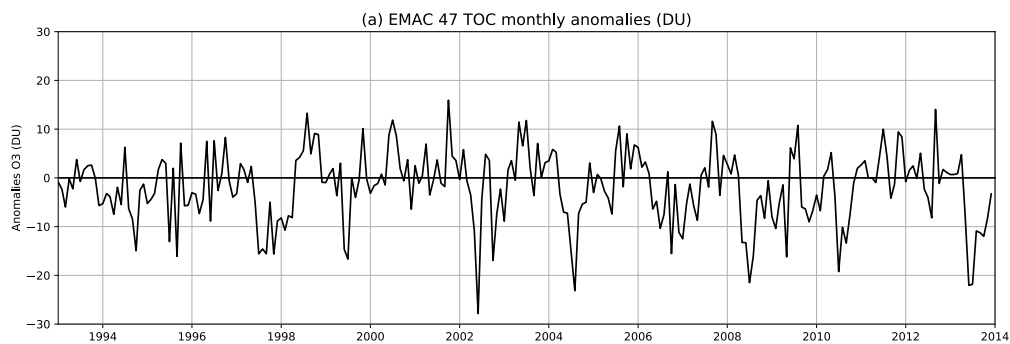
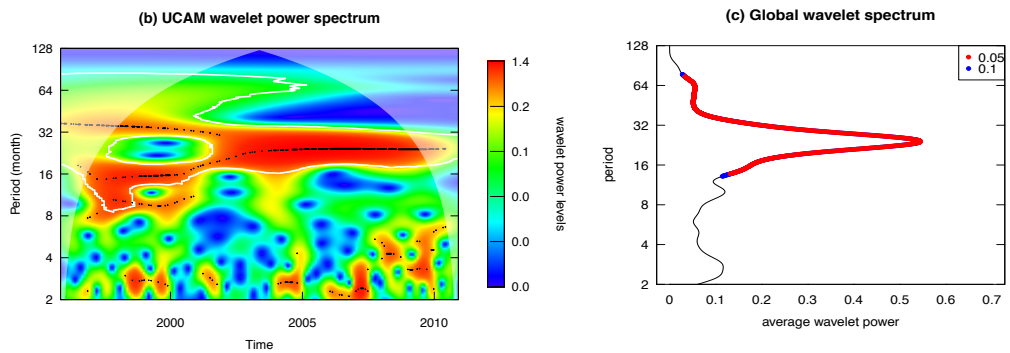
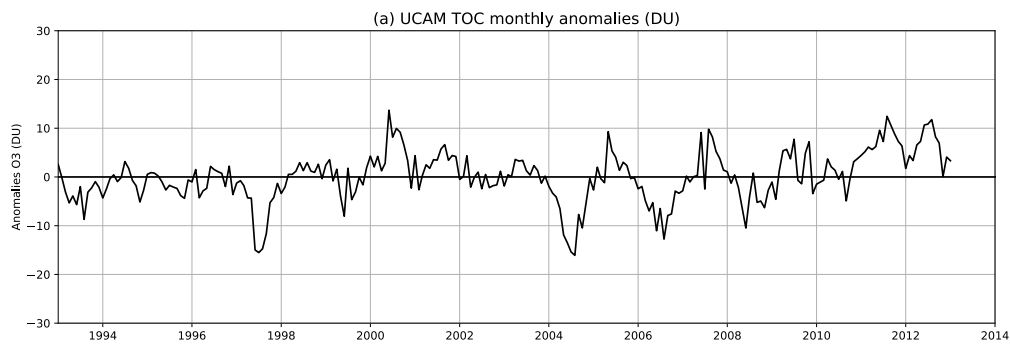
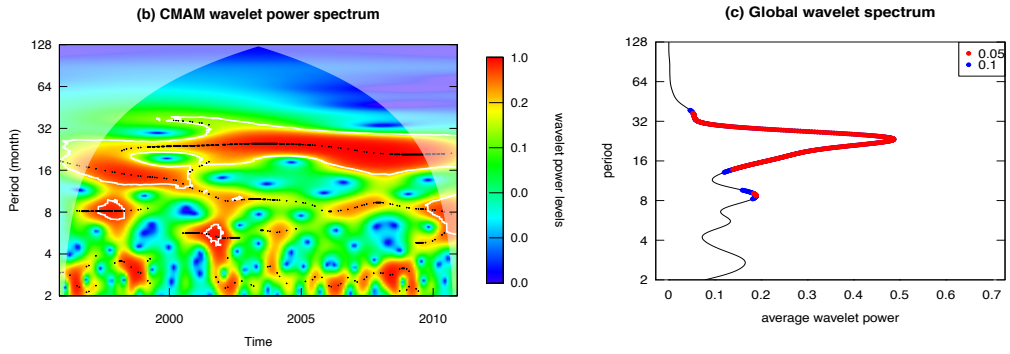
SCIAMACHY et renforcer les données fournies par l'instrument GOME 2, en attendant la mise en service de Sentinel 5.

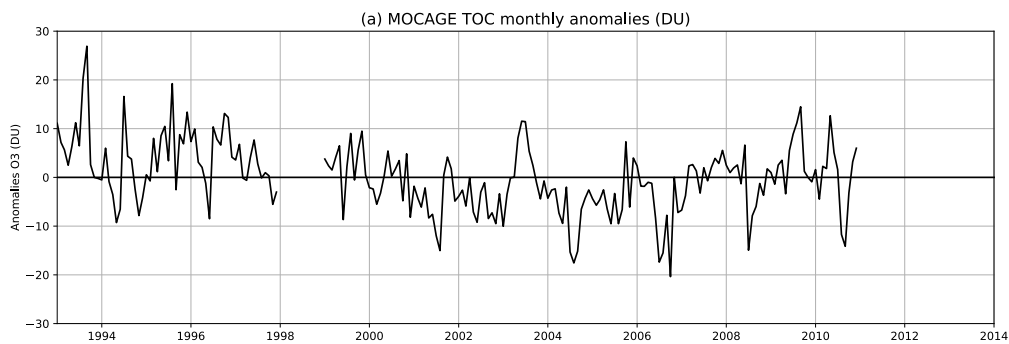
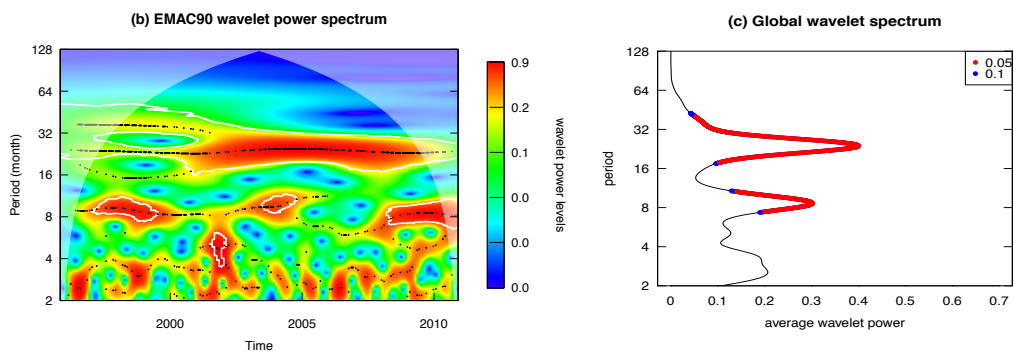
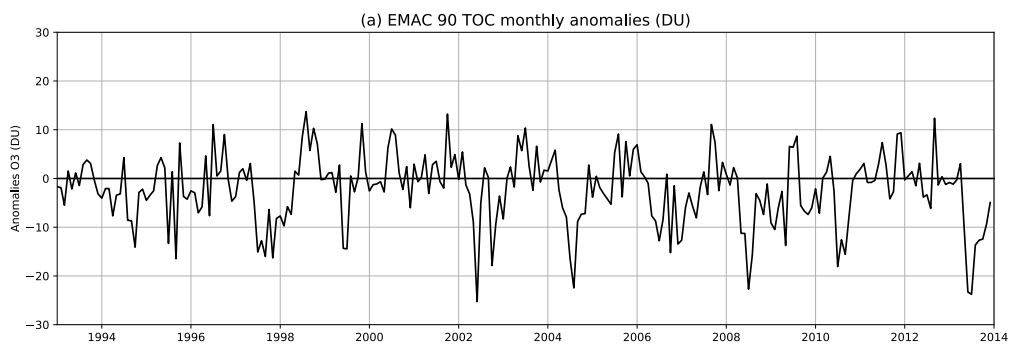
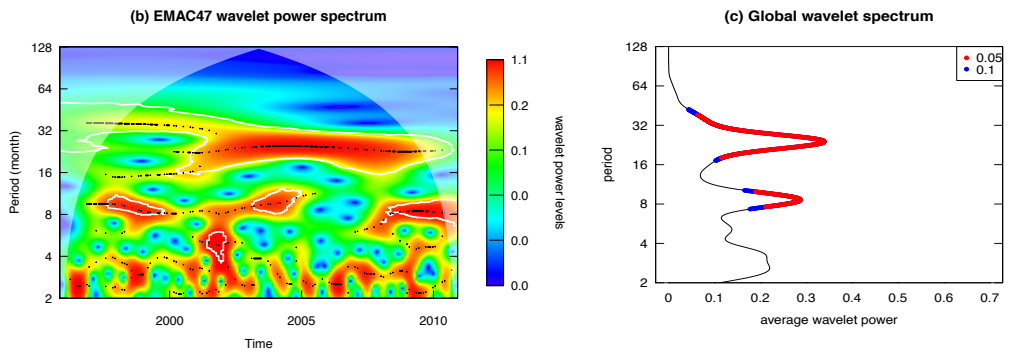
7. Annexes

Cette partie présente les figures de l'analyse en ondelettes des différents modèles mis en jeux dans le calcul de MMM aux deux stations. La figure A1 montre l'analyse effectuée à Bauru.









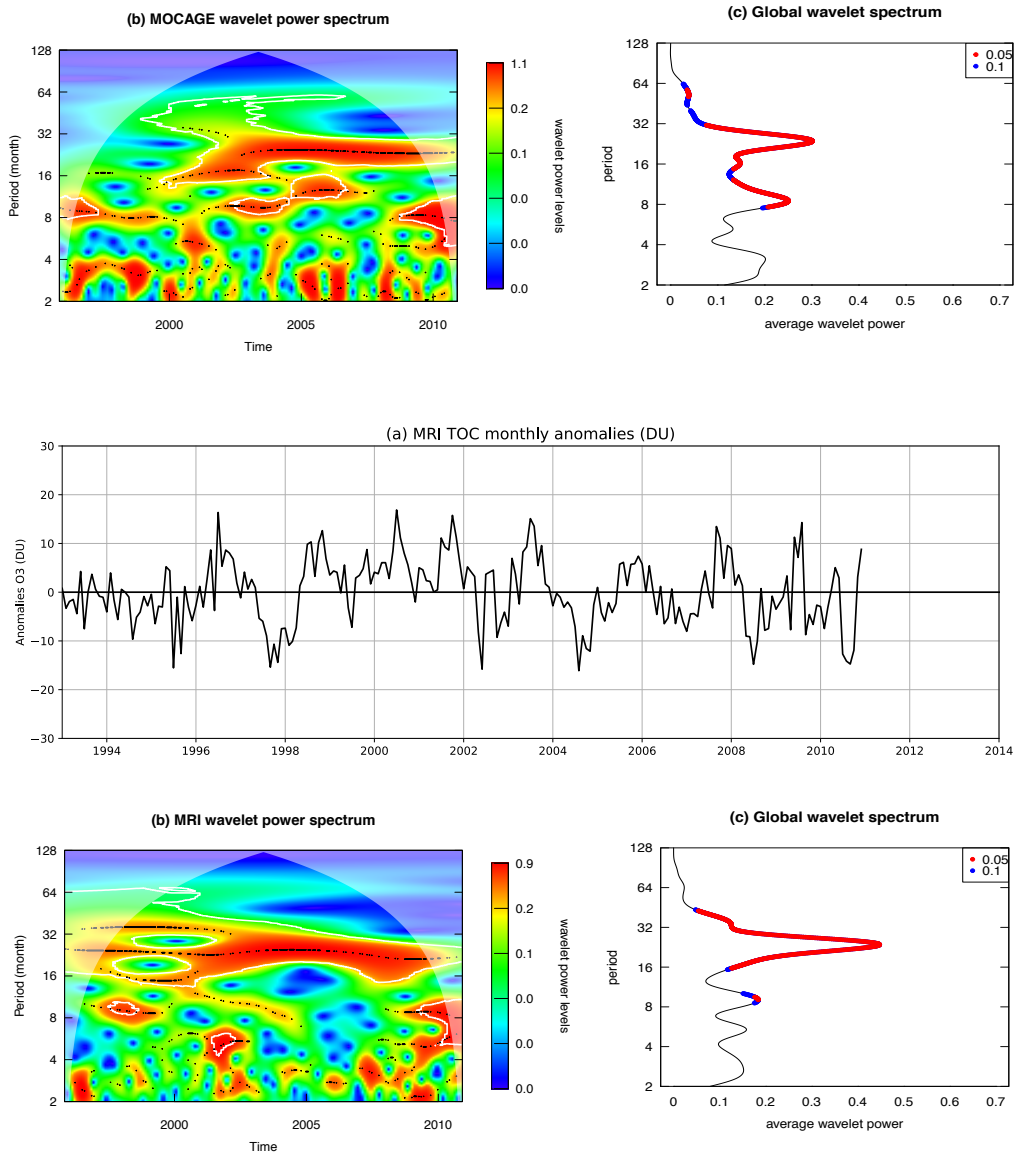
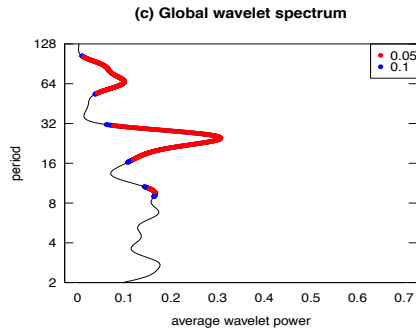
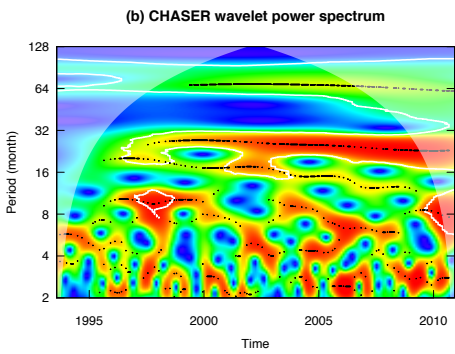
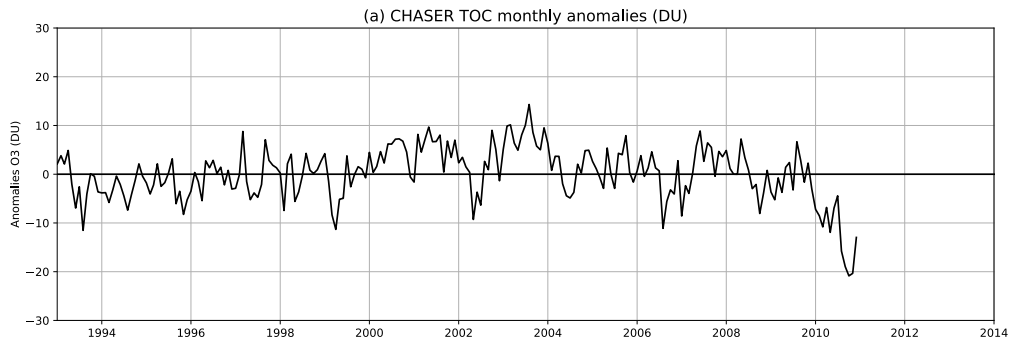
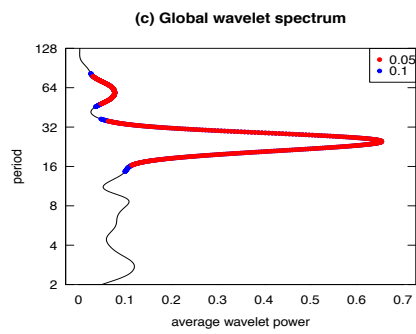
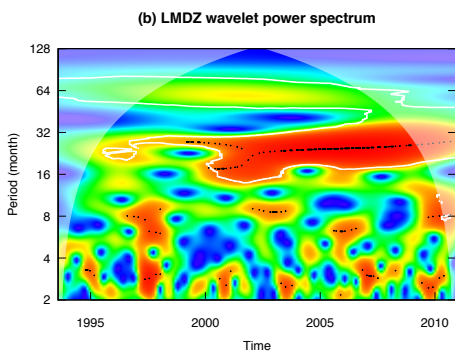
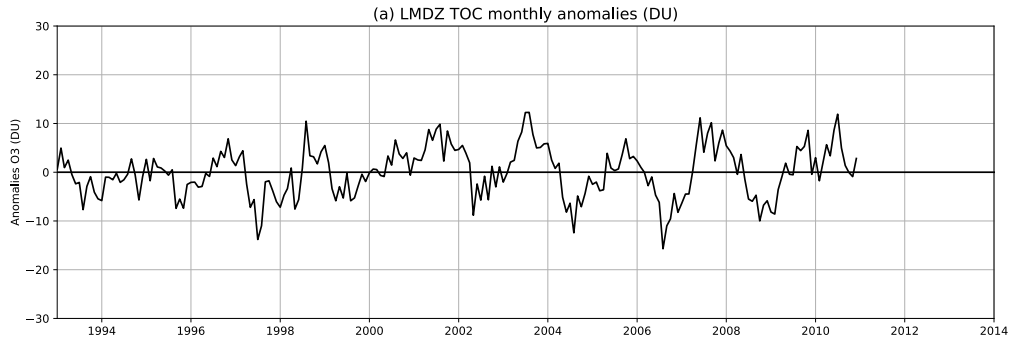
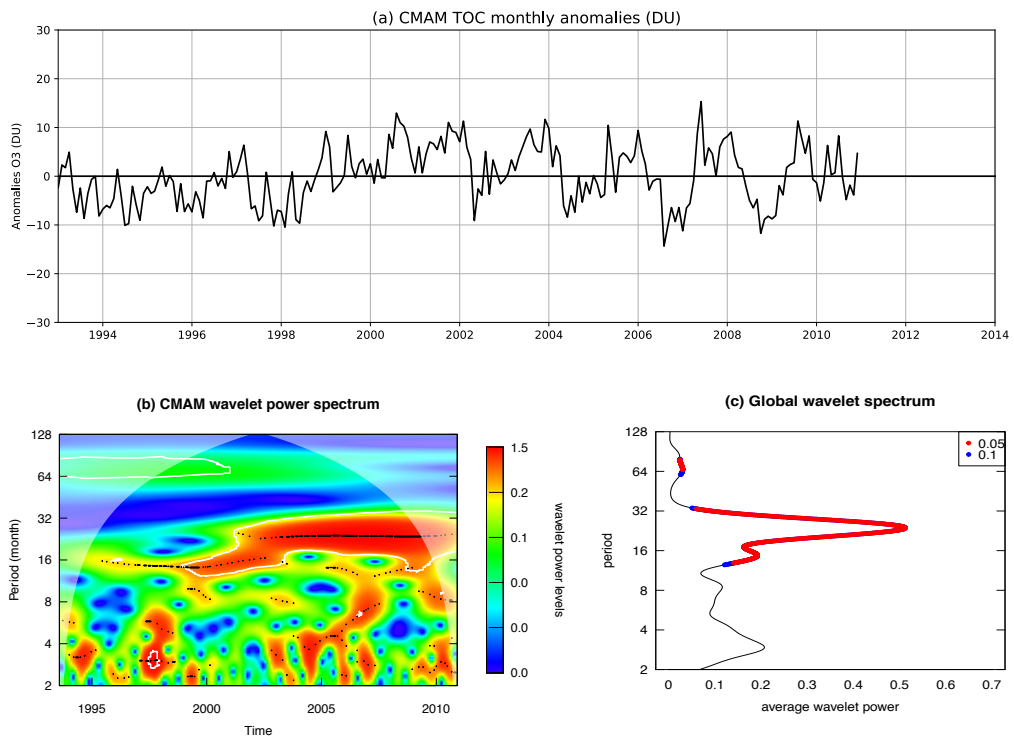
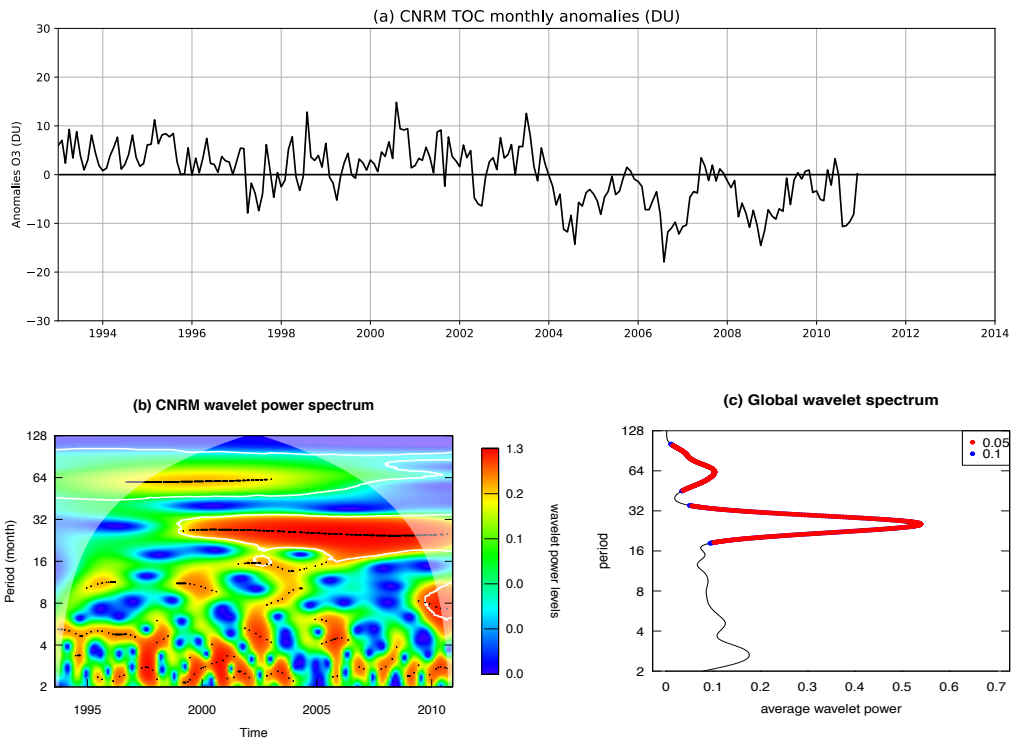
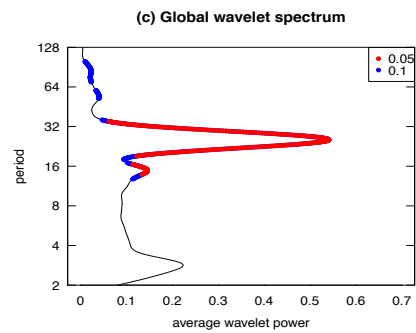
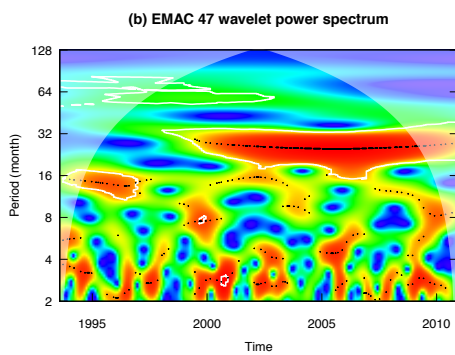
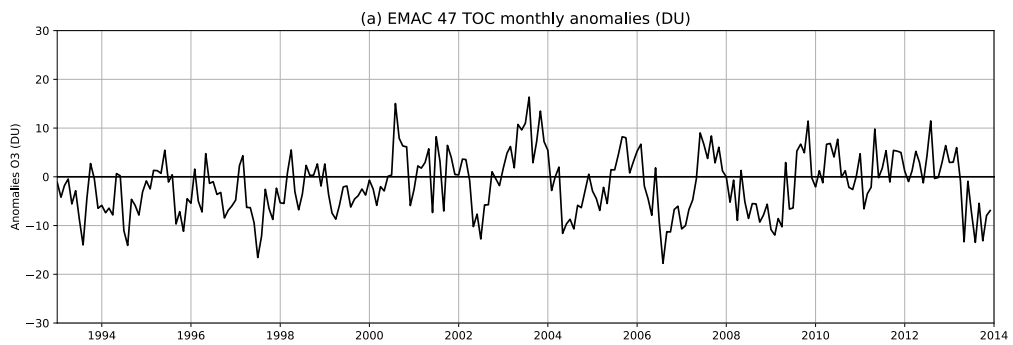
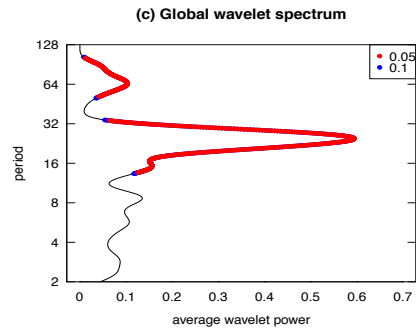
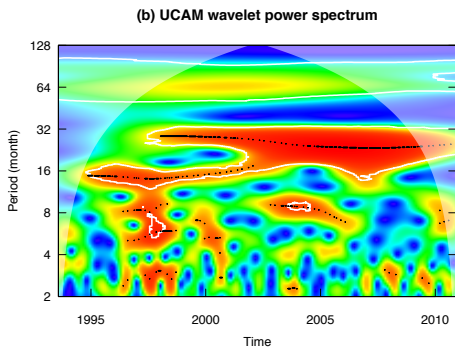
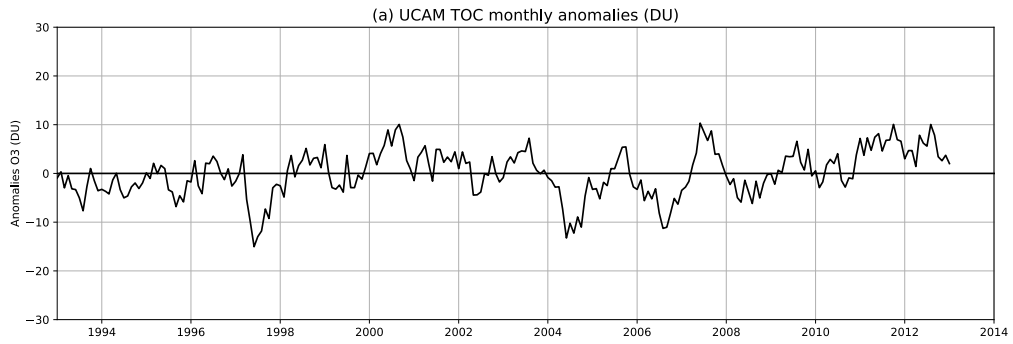


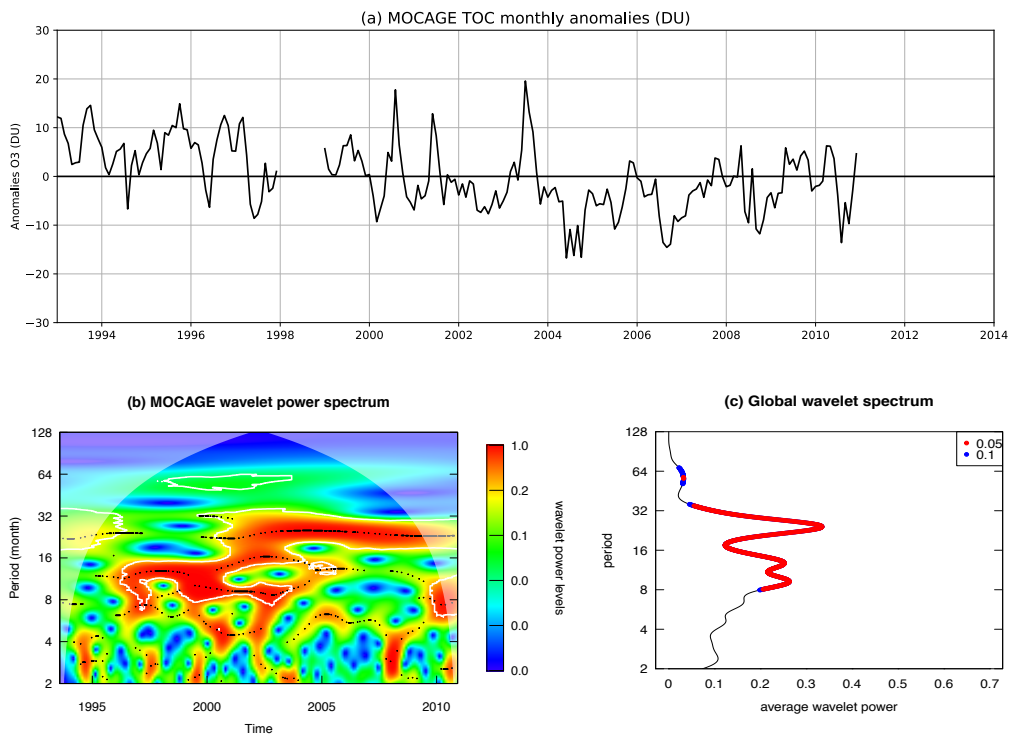
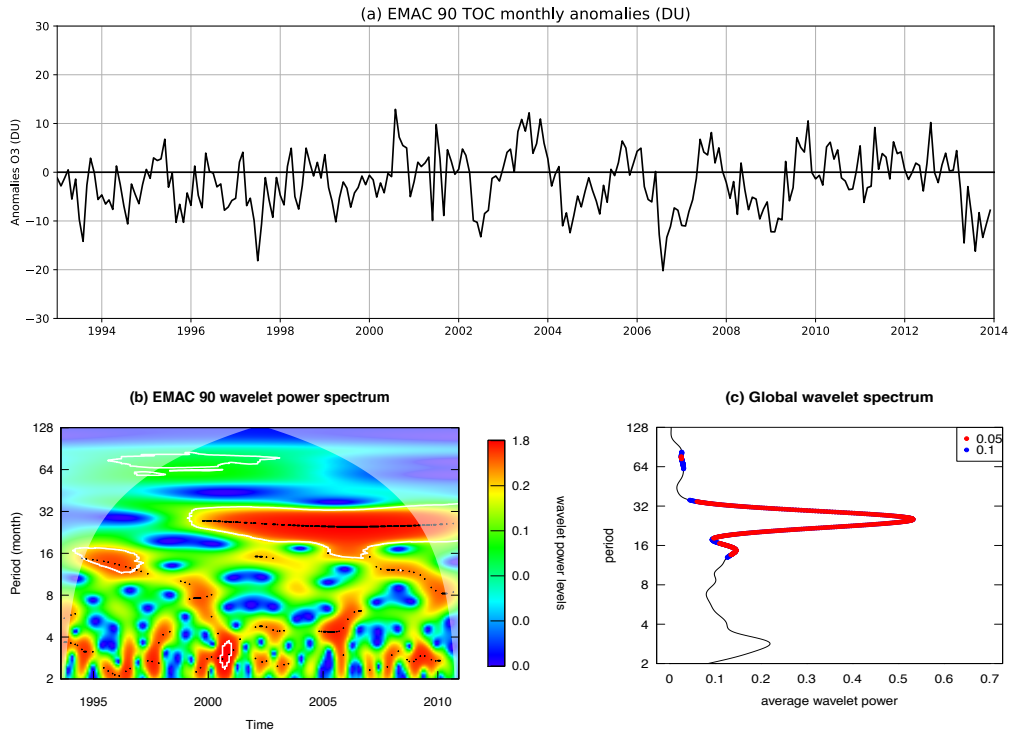
Figure A.1. a) Série des anomalies mensuelles de TOC, b) le spectre en ondelettes et c) le spectre global de, en partant du haut, SAOZ, MSM et MMM à Bauru de janvier 1993 à décembre 2013. L'ondelette mère dans la transformation est l'ondelette de Morlet. L'échelle de puissance du spectre (b) est donnée par la barre de couleur à droite et le cône d'influence délimite le domaine hors-duquel les effets de bord deviennent importants. Dans le spectre global (c), la partie rouge représente les 95% de significativité du spectre et la partie bleue 90% de significativité. Les figures correspondant à chaque modèle se trouvent en annexe.

La même analyse est réalisée à la Réunion, les figures des modèles obtenus sont présentées sur la figure A.2.









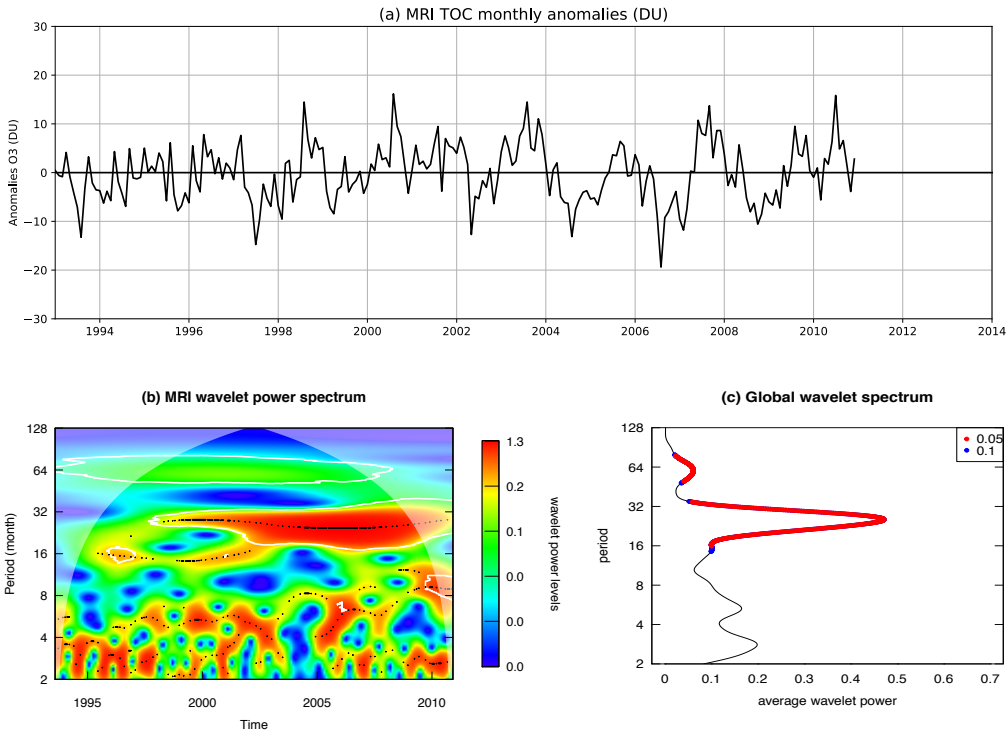


Figure A.2. Même légende que figure A.1, excepté Réunion au lieu de Bauru.

Références

- Allen, D, and N Nakamura. 2003. “Tracer Equivalent Latitude: A Diagnostic Tool for Isentropic Transport Studies.” *Journal of the Atmospheric Sciences* 60 (2): 287–304. doi:10.1175/1520-0469(2003)060<0287:TELADT>2.0.CO;2.
- Antón, M, and D Loyola. 2011. “Influence of Cloud Properties on Satellite Total Ozone Observations.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 116 (3): 1–11. doi:10.1029/2010JD014780.
- Arfeuille, F., B. P. Luo, P. Heckendorn, D. Weisenstein, J. X. Sheng, E. Rozanov, M. Schraner, S. Brönnimann, L. W. Thomason, and T. Peter. 2013. “Modeling the Stratospheric Warming Following the Mt. Pinatubo Eruption: Uncertainties in Aerosol Extinctions.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (22): 11221–34. doi:10.5194/acp-13-11221-2013.
- Austin, J, and N Butchart. 2003. “Coupled Chemistry-Climate Model Simulations for the Period 1980 to 2020: Ozone Depletion and the Start of Ozone Recovery.” *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 129: 3225–49. doi:10.1256/qj.02.203.
- Austin, J, J. Scinocca, D. Plummer, L. Oman, D. Waugh, H. Akiyoshi, S. Bekki, et al. 2010. “Decline and Recovery of Total Column Ozone Using a Multimodel Time Series Analysis.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 115 (21): 1–23. doi:10.1029/2010JD013857.
- Baldwin, M. P., L. J. Gray, T. J. Dunkerton, K. Hamilton, P. H. Haynes, W. J. Randel, J. R. Holton, et al. 2001. “The Quasi-Biennial Oscillation.” *Reviews of Geophysics* 39 (2): 179–229. doi:10.1029/1999RG000073.
- Balis, D., M. Kroon, M. E. Koukouli, E. J. Brinksma, G. Labow, J. P. Veefkind, and R. D. McPeters. 2007. “Validation of Ozone Monitoring Instrument Total Ozone Column Measurements Using Brewer and Dobson Spectrophotometer Ground-Based Observations.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 112 (24): 1–10. doi:10.1029/2007JD008796.
- Barsby, J., and R D Diab. 1995. “Total Ozone and Synoptic Weather Relationships over Southern Africa and Surrounding Oceans.” *Journal of Geophysical Research* 100 (D2): 3023. doi:10.1029/94JD01987.

- Bass, A., and R. Paur. 1984. "The Ultraviolet Cross-Sections of Ozone : I. The Measurements."
- Beagley R.S, McLandress C., Formichev V. I., Ward W. E. 2000. "The extended Canadian Middle Atmospheric Model".
- Bednarz, E M., A C. Maycock, N. L Abraham, P Braesicke, O Dessens, and J A. Pyle. 2016. "Future Arctic Ozone Recovery: The Importance of Chemistry and Dynamics." *Atmospheric Chemistry and Physics* 16 (18): 12159–76. doi:10.5194/acp-16-12159-2016.
- Bekki, S, R Toumi, and J A Pyle. 1993. "Role of Sulphur Photochemistry in Tropical Ozone Changes after the Eruption of Mount Pinatubo." *Nature* 362 (March). Nature Publishing Group: 331. <http://dx.doi.org/10.1038/362331a0>.
- Bhartia, P. K., R. D. McPeters, L. E. Flynn, S. Taylor, N. A. Kramarova, S. Frith, B. Fisher, and M. Deland. 2013. "Solar Backscatter UV (SBUV) Total Ozone and Profile Algorithm." *Atmospheric Measurement Techniques* 6 (10): 2533–48. doi:10.5194/amt-6-2533-2013.
- Bhartia, P. K., R. D. McPeters, C. L. Mateer, L. E. Flynn, and C. Wellemeyer. 1996. "Algorithm for the Estimation of Vertical Ozone Profiles from the Backscattered Ultraviolet Technique." *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 101 (D13): 18793–806. doi:10.1029/96JD01165.
- Bhartia, P. K., and C. Wellemeyer. 2002. "OMI Algorithm Theoretical Basis Document." *NASA-OMI, Washington, DC, ATBD-OMI-02, Version 2.0 II* (August): 1–91.
- Birner, T, Sean M. Davis, and D J. Seidel. 2014. "The Changing Width of Earth's Tropical Belt." *Physics Today* 67 (12): 38–44. doi:10.1063/PT.3.2620.
- Bogumil, K., J. Orphal, T. Homann, S. Voigt, P. Spietz, O. C. Fleischmann, A. Vogel, et al. 2003. "Measurements of Molecular Absorption Spectra with the SCIAMACHY Pre-Flight Model: Instrument Characterization and Reference Data for Atmospheric Remote-Sensing in the 230-2380 Nm Region." *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry* 157 (2–3): 167–84. doi:10.1016/S1010-6030(03)00062-5.
- Bojkov, R D., and V E. Fioletov. 1995. "Estimating the Global Ozone Characteristics during the Last 30 Years." *Journal of Geophysical Research* 100 (D8): 16537. doi:10.1029/95JD00692.

- Bönisch, H., A. Engel, T Birner, P. Hoor, D. W. Tarasick, and E. A. Ray. 2011. “On the Structural Changes in the Brewer-Dobson Circulation after 2000.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (8): 3937–48. doi:10.5194/acp-11-3937-2011.
- Bovensmann, H., J. P. Burrows, M. Buchwitz, J. Frerick, S. Noël, V. V. Rozanov, K. V. Chance, and A. P. H. Goede. 1999. “SCIAMACHY: Mission Objectives and Measurement Modes.” *Journal of the Atmospheric Sciences* 56 (2): 127–50. doi:10.1175/1520-0469(1999)056<0127:SMOAMM>2.0.CO;2.
- Boynard, A, D Hurtmans, M E. Koukouli, F Goutail, J Bureau, S Safieddine, C Lerot, et al. 2016. “Seven Years of IASI Ozone Retrievals from FORLI: Validation with Independent Total Column and Vertical Profile Measurements.” *Atmospheric Measurement Techniques* 9 (9): 4327–53. doi:10.5194/amt-9-4327-2016.
- Brewer, A W. 1949. “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 (326). John Wiley & Sons, Ltd: 351–63. doi:10.1002/qj.49707532603.
- Brion, J., A. Chakir, D. Daumont, J. Malicet, and C. Parisse. 1993. “High-Resolution Laboratory Absorption Cross Section of O₃. Temperature Effect.” *Chemical Physics Letters* 213 (5–6): 610–12. doi:10.1016/0009-2614(93)89169-I.
- Brunner, D, J Staehelin, J A Maeder, I Wohltmann, and G E Bodeker. 2006. “Variability and Trends in Total and Vertically Resolved Stratospheric Ozone Based on the CATO Ozone Data Set.” *Atmos. Chem. Phys. Atmospheric Chemistry and Physics* 6: 4985–5008. doi:10.5194/acp-6-4985-2006.
- Burrows, J. P., M. Buchwitz, V. Rozanov, M. Weber, A. Richter, A. Ladstätter-Weißmayer, and M. Eisinger. 1999. “The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission, Instrument Concept, and First Scientific Results.” *European Space Agency, (Special Publication) ESA SP 1 (414 PART 2)*: 585–90. doi:10.1175/1520-0469(1999)056<0151:TGOMEG>2.0.CO;2.
- Butchart, N., A. Charlton-Perez, I. Cionni, S. C. Hardiman, P. Haynes, K. Krüger, P. Kushner, et al. 2011. “Multimodel Climate and Variability of the Stratosphere.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 116 (5): 1–21. doi:10.1029/2010JD014995.
- Butchart, N, I. Cionni, V. Eyring, T. G. Shepherd, D. W. Waugh, H. Akiyoshi, J. Austin, et al. 2010. “Chemistry-Climate Model Simulations of Twenty-First Century Stratospheric

- Climate and Circulation Changes.” *Journal of Climate* 23 (20): 5349–74.
doi:10.1175/2010JCLI3404.1.
- Butchart, N, and E. Remsberg. 1986. “The Area of the Stratospheric Polar Vortex as a Diagnostic for Tracer Transport on an Isentropic Surface.” *Journal of the Atmospheric Sciences*. doi:10.1175/1520-0469(1986)043<1319:TAOTSP>2.0.CO;2.
- Chandra, S., J. R. Ziemke, M. R. Schoeberl, L. Froidevaux, W. G. Read, P. F. Levelt, and P. K. Bhartia. 2007. “Effects of the 2004 El Niño on Tropospheric Ozone and Water Vapor.” *Geophysical Research Letters* 34 (6): 2–6. doi:10.1029/2006GL028779.
- Chandra, S, and R D Mcpeters. 1994. “The Solar Cycle Variation of Ozone in the Stratosphere Inferred from Nimbus 7 and NOAA 11 Satellites.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 99 (D10): 20665–71. doi:10.1029/94JD02010.
- Chang, J., R Brost, I. Isaksen, S. Madronich, P. Middleton, W. Stockwell, and C Walcek. 1987. “A Three-Dimensional Eulerian Acid Deposition Model: Physical Concepts and Formulation” 92: 681–700.
- Chehade, W., M. Weber, and J. P. Burrows. 2014. “Total Ozone Trends and Variability during 1979-2012 from Merged Data Sets of Various Satellites.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (13): 7059–74. doi:10.5194/acp-14-7059-2014.
- Clain, G, J L Baray, R Delmas, R Diab, J Leclair De Bellevue, P Keckhut, F Posny, J M Metzger, and J P Cammas. 2016. “Tropospheric Ozone Climatology at Two Southern Hemisphere Tropical/Subtropical Sites, (Reunion Island and Irene, South Africa) from Ozonesondes, LIDAR, and in Situ Aircraft Measurements.” *Atmos. Chem. Phys. Atmospheric Chemistry and Physics* 9: 1723–34. doi:10.5194/acp-9-1723-2009.
- Clerbaux, C., A. Boynard, L. Clarisse, M. George, J. Hadji-Lazaro, H. Herbin, D. Hurtmans, et al. 2009. “Monitoring of Atmospheric Composition Using the Thermal Infrared IASI/MetOp Sounder.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 9 (16): 6041–54. doi:10.5194/acp-9-6041-2009.
- Cochrane, D, and G Orcutt. 1949. “Application of Least Squares Regression to Relationships Containing Auto- Correlated Error Terms.” *Journal of the American Statistical Association* 44 (245). [American Statistical Association, Taylor & Francis, Ltd.]: 32–61. <http://www.jstor.org/stable/2280349>.
- Cordero, E , and T Nathan. 2000. “The Influence of Wave- and Zonal Mean-Ozone

- Feedbacks on the Quasi-Biennial Oscillation.” *Journal of the Atmospheric Sciences* 57 (20): 3426–42. doi:10.1175/1520-0469(2000)057<3426:TIOWAZ>2.0.CO;2.
- Crutzen, P. J. 1970. “The Influence of Nitrogen Oxides on the Atmospheric Ozone Content.” *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 96 (408): 320–25. doi:10.1002/qj.49709640815.
- Daumont, D., J. Brion, J. Charbonnier, and J. Malicet. 1992. “Ozone UV Spectroscopy I: Absorption Cross-Sections at Room Temperature.” *Journal of Atmospheric Chemistry* 15 (2): 145–55. doi:10.1007/BF00053756.
- Deushi, M, and K Shibata. 2011. “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 (May): 1–46. doi:10.2467/mripapers.62.1.
- Diallo, M., B. Legras, and A. Chédin, 2012: Age of stratospheric air in the ERA-Interim. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 12 133–12 154, doi:<https://doi.org/10.5194/acp-12-12133-2012>
- Dhomse, S., M. P. Chipperfield, W. Feng, and J. D. Haigh. 2011. “Solar Response in Tropical Stratospheric Ozone: A 3-D Chemical Transport Model Study Using ERA Reanalyses.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (24): 12773–86. doi:10.5194/acp-11-12773-2011.
- Dobson, G M B, A W Brewer, and B M Cwilong. 1946. “Bakerian Lecture. Meteorology of the Lower Stratosphere.” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* 185 (1001). The Royal Society: 144–75. <http://www.jstor.org/stable/97837>.
- Douville, H. 2009. “Stratospheric Polar Vortex Influence on Northern Hemisphere Winter Climate Variability.” *Geophysical Research Letters* 36 (18): 1–5. doi:10.1029/2009GL039334.
- Dufresne, J. L., M. A. Foujols, S. Denvil, A. Caubel, O. Marti, O. Aumont, Y. Balkanski, et al. 2013. *Climate Change Projections Using the IPSL-CM5 Earth System Model: From CMIP3 to CMIP5. Climate Dynamics*. Vol. 40. doi:10.1007/s00382-012-1636-1.
- Eskes, H J, and K F Boersma. 2003. “Averaging Kernels for DOAS Total-Column Satellite Retrievals.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 3: 1285–91. doi:10.5194/acp-3-1285-

2003.

- Eyring, V., I. Cionni, G. E. Bodeker, A. J. Charlton-Perez, D. E. Kinnison, J. F. Scinocca, D. W. Waugh, et al. 2010. "Multi-Model Assessment of Stratospheric Ozone Return Dates and Ozone Recovery in CCMVal-2 Models." *Atmospheric Chemistry and Physics* 10 (19): 9451–72. doi:10.5194/acp-10-9451-2010.
- Eyring, V., J.-F. Lamarque, P. Hess, F. Arfeuille, K. Bowman, M. P. Chipperfield, B. Duncan, et al. 2013. "Overview of IGAC/SPARC Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI) Community Simulations in Support of Upcoming Ozone and Climate Assessments." *SPARC Newsletter* 40 (January): 48–66. doi:SPARC Newsletter No. 40, p. 48-66, 2013.
- Eyring, V., T. Shepherd, and D. Waugh. 2010. "SPARC, 2010: SPARC CCMVal Report on the Evaluation of Chemistry-Climate Models. SPARC Report No. 5, WCRP-30/2010, WMO/TD - No. 40." *Atmosp.Physics.Utoronto.Ca*, no. 5: 1–415.
http://www.atmosp.physics.utoronto.ca/SPARC/News15/15_Udelhofen.html.
- Eyring, V., D. S. Stevenson, A. Lauer, F. J. Dentener, T. Butler, W. J. Collins, K. Ellingsen, et al. 2007. "Multi-Model Simulations of the Impact of International Shipping on Atmospheric Chemistry and Climate in 2000 and 2030." *Atmospheric Chemistry and Physics* 7 (3): 757–80. doi:10.5194/acp-7-757-2007.
- Eyring, V, N. Butchart, D. W. Waugh, H. Akiyoshi, J. Austin, S. Bekki, G. E. Bodeker, et al. 2006. "Assessment of Temperature, Trace Species, and Ozone in Chemistry-Climate Model Simulations of the Recent Past." *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 111 (22). doi:10.1029/2006JD007327.
- Farman, J. C., B. G. Gardiner, and J. D. Shanklin. 1985. "Large Losses of Total Ozone in Antarctica Reveal Seasonal ClO_x/NO_x Interaction." *Nature* 315 (6016): 207–10. doi:10.1038/315207a0.
- Finney, D L, R M Doherty, O Wild, P J Young, and A Butler. 2016. "Response of Lightning NO_x Emissions and Ozone Production to Climate Change : Insights from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project." doi:10.1002/2016GL068825.1.
- Fioletov, V E. 2009. "Estimating the 27-Day and 11-Year Solar Cycle Variations in Tropical Upper Stratospheric Ozone." *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 114 (2): 1–15. doi:10.1029/2008JD010499.

- Flower, J.B., and A. Carn. 2015. "Characterising Volcanic Cycles at Soufriere Hills Volcano, Montserrat: Time Series Analysis of Multi-Parameter Satellite Data." *Journal of Volcanology and Geothermal Research* 304 (February). Elsevier B.V.: 82–93. doi:10.1016/j.jvolgeores.2015.07.035.
- Flynn, L. E., C. J. Seftor, G. Jaross, M. Kowitt, M. Haken, and J. Li. 2014. "Performance of the Ozone Mapping and Profiler Suite (OMPS) Products." *Journal of Geophysical Research* 119 (7): 4413–28. doi:10.1002/2013JD020472.
- Forster, M., I. Fomichev, E. Rozanov, C. Cagnazzo, I. Jonsson, U. Langematz, B. Fomin, et al. 2011. "Evaluation of Radiation Scheme Performance within Chemistry Climate Models." *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 116 (D10). doi:10.1029/2010JD015361.
- Gettelman, A., M. I. Hegglin, S. W. Son, J. Kim, M. Fujiwara, T. Birner, S. Kremser, et al. 2010. "Multimodel Assessment of the Upper Troposphere and Lower Stratosphere: Tropics and Global Trends." *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 115: D00M08. doi:D00m08\|10.1029/2009jd013638.
- Godin, S., V. Bergeret, C. David et al. 2001. "Study of the Interannual Ozone Loss and the Permeability of the Antarctic Polar Vortex" 106: 1311–30.
- Gorshchev, V., A. Serdyuchenko, M. Weber, W. Chehade, and J. P. Burrows. 2014. "High Spectral Resolution Ozone Absorption Cross-Sections – Part 1: Measurements, Data Analysis and Comparison with Previous Measurements around 293 K." *Atmospheric Measurement Techniques* 7 (2): 609–24. doi:10.5194/amt-7-609-2014.
- Grainger, J-F., and J. Ring. 1962. "193762a0.Pdf." *Nature*.
- Grandpre, J., S. R. Beagley, V. I. Fomichev, E. Griffioen, J. C. McConnell, A. S. Medvedev, and T. G. Shepherd. 2000. "Ozone Climatology Using Interactive Chemistry: Results from the Canadian Middle Atmosphere Model." *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 105 (D21): 26475–91. doi:10.1029/2000jd900427.
- Granier, C., B. Bessagnet, T. Bond, A. D'Angiola, H. D. Van Der Gon, G. J. Frost, A. Heil, et al. 2011. "Evolution of Anthropogenic and Biomass Burning Emissions of Air Pollutants at Global and Regional Scales during the 1980-2010 Period." *Climatic Change* 109 (1): 163–90. doi:10.1007/s10584-011-0154-1.
- Grant, W. B. 1996. "Tropical Stratospheric Ozone Changes Following the Eruption of Mount

- Pinatubo BT - The Mount Pinatubo Eruption: Effects on the Atmosphere and Climate.”
In , edited by Giorgio Fiocco, Daniele Fuà, and Guido Visconti, 161–75. Berlin,
Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg. doi:10.1007/978-3-642-61173-5_14.
- Haigh, J D. 1994. “The Role of Stratospheric Ozone in Modulating the Solar Radiative
Forcing of Climate.” *Nature* 370 (August). Nature Publishing Group: 544.
<http://dx.doi.org/10.1038/370544a0>.
- Hasebe, F. 1993. “Dynamical Response of the Tropical Total Ozone to Sea Surface
Temperature Changes.” *Journal of the Atmospheric Sciences*.
- Hauchecorne, A., S. Godin, M. Marchand, B. Heese, and C. Souprayen. 2002. “Quantification
of the Transport of Chemical Constituents from the Polar Vortex to Midlatitudes in the
Lower Stratosphere Using the High-Resolution Advection Model MIMOSA and
Effective Diffusivity.” *Journal of Geophysical Research* 107 (D20): 8289.
doi:10.1029/2001JD000491.
- Hendrick, F., J. P. Pommereau, F. Goutail, R. D. Evans, D. Ionov, A. Pazmino, et al. 2011.
“NDACC/SAOZ UV-Visible Total Ozone Measurements: Improved Retrieval and
Comparison with Correlative Ground-Based and Satellite Observations.” *Atmospheric
Chemistry and Physics* 11 (12): 5975–95. doi:10.5194/acp-11-5975-2011.
- Hofmann, D J., and S Solomon. 1989. “Ozone Destruction through Heterogeneous Chemistry
Following the Eruption of El Chichón.” *Journal of Geophysical Research* 94 (2): 5029–
41. doi:10.1029/JD094iD04p05029.
- Hoskins, B J, M E McIntyre, and A W Robertson. 1985. “On the Use and Significance of
Isentropic Potential Vorticity Maps.” *Quarterly Journal of the Royal Meteorological
Society* 111 (470). John Wiley & Sons, Ltd: 877–946. doi:10.1002/qj.49711147002.
- Hourdin, F, M A Foujols, F Codron, V Guemas, J L Dufresne, S Bony, S Denvil, et al. 2013.
“Impact of the LMDZ Atmospheric Grid Configuration on the Climate and Sensitivity of
the IPSL-CM5A Coupled Model.” *Climate Dynamics* 40 (9–10): 2167–92.
doi:10.1007/s00382-012-1411-3.
- Huntrieser, H., U. Schumann, H. Schlager, H. Höller, a. Giez, H.-D. Betz, D. Brunner, C.
Forster, O. Pinto, and R. Calheiros. 2008. “Lightning Activity in Brazilian
Thunderstorms during TROCCINOX: Implications for NO_x Production.” *Atmospheric
Chemistry and Physics* 8 (4): 921–53. doi:10.5194/acp-8-921-2008.

- Hurtmans, D., P. F. Coheur, C. Wespes, L. Clarisse, O. Scharf, C. Clerbaux, J. Hadji-Lazaro, M. George, and S. Turquety. 2012. “FORLI Radiative Transfer and Retrieval Code for IASI.” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 113 (11). Elsevier: 1391–1408. doi:10.1016/j.jqsrt.2012.02.036.
- Inness, A., A. Benedetti, J. Flemming, V. Huijnen, J. W. Kaiser, M. Parrington, and S. Remy. 2015. “The ENSO Signal in Atmospheric Composition Fields: Emission-Driven versus Dynamically Induced Changes.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (15): 9083–97. doi:10.5194/acp-15-9083-2015.
- Jackman, H., R. Marsh, M. Vitt, R. Garcia, E. Randall, E L. Fleming, and M. Frith. 2009. “Long-Term Middle Atmospheric Influence of Very Large Solar Proton Events.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 114 (11): 1–14. doi:10.1029/2008JD011415.
- Jaross, G, P K. Bhartia, G Chen, M Kowitt, M Haken, Z Chen, P Xu, J Warner, and T Kelly. 2014. “Omps Limb Profiler Instrument Performance Assessment.” *Journal of Geophysical Research* 119 (7): 4399–4412. doi:10.1002/2013JD020482.
- Jöckel, P., H. Tost, A. Pozzer, C. Brühl, J. Buchholz, L. Ganzeveld, P. Hoor, et al. 2006. “The Atmospheric Chemistry General Circulation Model ECHAM5/MESSy1: Consistent Simulation of Ozone from the Surface to the Mesosphere.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 6 (12): 5067–5104. doi:10.5194/acp-6-5067-2006.
- Jöckel, P, H Tost, A Pozzer, M Kunze, O Kirner, A.M. Brenninkmeijer, S Brinkop, et al. 2016. “Earth System Chemistry Integrated Modelling (ESCiMo) with the Modular Earth Submodel System (MESSy) Version 2.51.” *Geoscientific Model Development* 9 (3): 1153–1200. doi:10.5194/gmd-9-1153-2016.
- Kayano, M T. 1997. “Principal Modes of the Total Ozone on the Southern Oscillation Timescale and Related Temperature Variations.” *Journal of Geophysical Research* 102 (D22): 25797. doi:10.1029/97JD02362.
- Kestin, T S., D J. Karoly, J I Yano, and N A. Rayner. 1998. “Time-Frequency Variability of ENSO and Stochastic Simulations.” *Journal of Climate* 11 (9): 2258–72. doi:10.1175/1520-0442(1998)011<2258:TFVOEA>2.0.CO;2.
- Kramarova, N. A., P. K. Bhartia, S. M. Frith, R. D. McPeters, and R. S. Stolarski. 2013. “Interpreting SBUV Smoothing Errors: An Example Using the Quasi-Biennial Oscillation.” *Atmospheric Measurement Techniques* 6 (8): 2089–99. doi:10.5194/amt-6-

2089-2013.

- Labow, G J., R D. McPeters, P K. Bhartia, and N Kramarova. 2013. “A Comparison of 40 Years of SBUV Measurements of Column Ozone with Data from the Dobson/Brewer Network.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 118 (13): 7370–78. doi:10.1002/jgrd.50503.
- Labow, G J, J R Ziemke, R D Mcpeters, D P Haffner, and P K Bhartia. 2015. “A Total Ozone-Dependent Ozone Profile Climatology Based on Ozonesondes and Aura MLS Data,” 1–9. doi:10.1002/2014JD022634.Received.
- Lacressonnière, G., V.-H. Peuch, J. Arteta, B. Josse, M. Joly, V. Marécal, D. Saint-Martin, M. Déqué and L. Watson, 2012. How realistic are air quality hindcasts driven by forcings from climate model simulations ? *Geosci. Mod. Dev.*, 5, 1565-1587, 2012.
- Lamarque, J. F., T. C. Bond, V. Eyring, C. Granier, A. Heil, Z. Klimont, D. Lee, et al. 2010. “Historical (1850-2000) Gridded Anthropogenic and Biomass Burning Emissions of Reactive Gases and Aerosols: Methodology and Application.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 10 (15): 7017–39. doi:10.5194/acp-10-7017-2010.
- Lamarque, J. F., D. T. Shindell, B. Josse, P. J. Young, I. Cionni, V. Eyring, D. Bergmann, et al. 2013. “The Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP): Overview and Description of Models, Simulations and Climate Diagnostics.” *Geoscientific Model Development* 6 (1): 179–206. doi:10.5194/gmd-6-179-2013.
- Lean, J, G Rottman, J Harder, and G Kopp. 2005. “Change and Solar Variability.” *Solar Physics* 230: 27–53.
- Leblanc, T, O P Tripathi, I. S McDermid, L Froidevaux, N. J. Livesey, W. G. Read, and J. W. Waters. 2006. “Simultaneous Lidar and EOS MLS Measurements, and Modeling, of a Rare Polar Ozone Filament Event over Mauna Loa Observatory, Hawaii.” *Geophysical Research Letters* 33 (16). doi:10.1029/2006GL026257.
- Lee, S., D. M. Shelow, A. M. Thompson, and S. K. Miller. 2010. “QBO and ENSO Variability in Temperature and Ozone from SHADOZ, 1998-2005.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 115 (18): 1998–2005. doi:10.1029/2009JD013320.
- Lefèvre, F, F Figarol, K S. Carslaw, and T Peter. 1998. “The 1997 Arctic Ozone Depletion Quantified from Three-dimensional Model Simulations.” *Geophysical Research Letters*

25 (13): 2425. doi:10.1029/98GL51812.

- Lerot, C., M. Van Roozendael, R. Spurr, D. Loyola, M. Coldewey-Egbers, S. Kochenova, J. van Gent, et al. 2014. “Homogenized Total Ozone Data Records from the European Sensors Gome/Ers-2, SCIAMACHY/Envisat, and GOME-2/MetOp-A.” *Journal of Geophysical Research* 119 (3): 1639–62. doi:10.1002/2013JD020831.
- Levelt, P F, E Hilsenrath, G W Leppelmeier, G H J Van Den Oord, P K Bhartia, J Tamminen, J F De Haan, and J P Veefkind. 2006. “Science Objectives of the Ozone Monitoring Instrument” 44 (5): 1199–1208.
- Lima, M A., and J W. Wilson. 2002. “Convective Storm Initiation in the Amazon.” *Growth (Lakeland)*, 12–17.
- Malicet, J., D. Daumont, J. Charbonnier, C. Parisse, A. Chakir, and J. Brion. 1995. “Ozone UV Spectroscopy. II. Absorption Cross-Sections and Temperature Dependence.” *Journal of Atmospheric Chemistry* 21 (3): 263–73. doi:10.1007/BF00696758.
- Manatsa, D, and G Mukwada. 2017. “A Connection from Stratospheric Ozone to El Niño-Southern Oscillation.” *Scientific Reports* 7 (1). Springer US: 1–10. doi:10.1038/s41598-017-05111-8.
- Manzini, E, K Matthes, C Blume, G Bodeker, C Cagnazzo, N Calvo, A Charlton-Perrez, et al. 2010. “Natural Variability of Stratospheric Ozone.” *Chpt. 8 in: SPARC CCMVal (2010): SPARC CCMVal Report on the Evaluation of Chemistry-Climate Models, SPARC Report No. 5, WCRP-X, WMO/TD-No. X, (Peer Reviewed).*, no. January.
- Marchand, M., P. Keckhut, S. Lefebvre, C. Claud, D. Cugnet, A. Hauchecorne, F. Lefèvre, et al. 2012. “Dynamical Amplification of the Stratospheric Solar Response Simulated with the Chemistry-Climate Model LMDz-Reprobus.” *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics* 75–76: 147–60. doi:10.1016/j.jastp.2011.11.008.
- Mari, C, J P Chaboureau, J P Pinty, J Duron, P Mascart, J P Cammas, F Gheusi, et al. 2006. “Regional Lightning NO_x Sources during the TROCCINOX Experiment.” *Atmos. Chem. Phys. Atmospheric Chemistry and Physics* 6 (x): 5559–72. doi:10.5194/acpd-6-5197-2006.
- Mayer, B., and A. Kylling. 2005. “Technical Note: The LibRadtran Software Package for Radiative Transfer Calculations – Description and Examples of Use.” *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 5 (2): 1319–81. doi:10.5194/acpd-5-

1319-2005.

- McIntyre, M. E., and T. N. Palmer. 1984. "The 'surf Zone' in the Stratosphere." *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics* 46 (9): 825–49. doi:10.1016/0021-9169(84)90063-1.
- McPeters, R., P. K. Bhartia, a. Krueger, J. Herman, C. Wellemeyer, C. Seftor, G. Jaross, et al. 1998. "Earth Probe Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Data Product User's Guide," no. November.
- McPeters, R., M. Kroon, G. Labow, E. Brinksma, D. Balis, I. Petropavlovskikh, J. P. Veefkind, P. K. Bhartia, and P. F. Levelt. 2008. "Validation of the Aura Ozone Monitoring Instrument Total Column Ozone Product." *Journal of Geophysical Research* 113 (D15): D15S14. doi:10.1029/2007JD008802.
- McPeters, R D., P. K. Bhartia, D. Haffner, G J. Labow, and L Flynn. 2013. "The Version 8.6 SBUV Ozone Data Record: An Overview." *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 118 (14): 8032–39. doi:10.1002/jgrd.50597.
- Meinshausen, M, S. J. Smith, K. Calvin, J. S. Daniel, M. L.T. Kainuma, J. Lamarque, K. Matsumoto, et al. 2011. "The RCP Greenhouse Gas Concentrations and Their Extensions from 1765 to 2300." *Climatic Change* 109 (1): 213–41. doi:10.1007/s10584-011-0156-z.
- Miller, A. J., S. M. Hollandsworth, L. E. Flynn, G. C. Tiao, G. C. Reinsel, L. Bishop, R. D. McPeters, et al. 1996. "Comparisons of Observed Ozone Trends and Solar Effects in the Stratosphere through Examination of Ground-Based Umkehr and Combined Solar Backscattered Ultraviolet (SBUV) and SBUV 2 Satellite Data." *Journal of Geophysical Research* 101 (D4): 9017–21. doi:10.1029/96JD00229.
- Monteith, J L. 1972. "Solar Radiation and Productivity in Tropical Ecosystems." *Journal Appl. Ecol.* 9: 747–66.
- Morgenstern, O, M Hegglin, E Rozanov, F O'Connor, N. Luke Abraham, H Akiyoshi, A Archibald, et al. 2017. "Review of the Global Models Used within Phase 1 of the Chemistry-Climate Model Initiative (CCMI)." *Geoscientific Model Development* 10 (2): 639–71. doi:10.5194/gmd-10-639-2017.
- Munro, R, C Anderson, J Callies, E Corpaccioli?, Michael Eisinger, Rüdiger Lang, Alain Lefebvre, Yakov Livschitz, and Abelardo Pérez Albiñana. 2006. "GOME-2 on MetOp."

European Space Agency, (Special Publication) ESA SP di (628).

- Munro, R, R Lang, D Klaes, G Poli, C Retscher, R Lindstrot, R Huckle, et al. 2016. “The GOME-2 Instrument on the Metop Series of Satellites: Instrument Design, Calibration, and Level 1 Data Processing – an Overview.” *Atmospheric Measurement Techniques* 9 (3): 1279–1301. doi:10.5194/amt-9-1279-2016.
- Murray, L T., J A. Logan, and J. Jacob. 2013. “Interannual Variability in Tropical Tropospheric Ozone and OH: The Role of Lightning.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 118 (19): 11468–80. doi:10.1002/jgrd.50857.
- Muthers, S., F. Arfeuille, C. C. Raible, and E. Rozanov. 2015. “The Impacts of Volcanic Aerosol on Stratospheric Ozone and the Northern Hemisphere Polar Vortex: Separating Radiative-Dynamical Changes from Direct Effects Due to Enhanced Aerosol Heterogeneous Chemistry.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (20): 11461–76. doi:10.5194/acp-15-11461-2015.
- Nijhuis, A. O. 2012. “The Influence of the Effective Ozone Temperature on OMDAO3.” *Royal Netherlands Meteorological Institute.*
- Orphal, J, J Staehelin, J Tamminen, G Braathen, M R De Backer, A Bais, D Balis, et al. 2016. “Absorption Cross-Sections of Ozone in the Ultraviolet and Visible Spectral Regions: Status Report 2015.” *Journal of Molecular Spectroscopy* 327 (July). Elsevier Inc.: 105–21. doi:10.1016/j.jms.2016.07.007.
- Pacifico, F., G. A. Folberth, S. Sitch, J. M. Haywood, L. V. Rizzo, F. F. Malavelle, and P. Artaxo. 2015. “Biomass Burning Related Ozone Damage on Vegetation over the Amazon Forest: A Model Sensitivity Study.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (5): 2791–2804. doi:10.5194/acp-15-2791-2015.
- Pastel, M., J. P. Pommereau, F. Goutail, A. Richter, A. Pazmiño, D. Ionov, and T. Portafaix. 2014. “Construction of Merged Satellite Total O₃ and NO₂ Time Series in the Tropics for Trend Studies and Evaluation by Comparison to NDACC SAOZ Measurements.” *Atmospheric Measurement Techniques* 7 (10): 3337–54. doi:10.5194/amt-7-3337-2014.
- Pazmiño, A, S Godin-Beekmann, M Ginzburg, S Bekki, A Hauchecorne, D. Piacentini, and J. Quel. 2005. “Impact of Antarctic Polar Vortex Occurrences on Total Ozone and UVB Radiation at Southern Argentinean and Antarctic Stations during 1997-2003 Period.” *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres* 110 (3): 1–13. doi:10.1029/2004JD005304.

- Percival, P. 1995. "On Estimation of the Wavelet Variance." *Biometrika* 82 (3): 619–31. doi:10.1093/biomet/82.3.619.
- Peters, W, M Krol, F Dentener, A M Thompson, J Lelieveld, W Peters, M Krol, F Dentener, A M Thompson, and J Lelieveld Chemistry-transport. 2002. "Chemistry-Transport Modeling of the Satellite Observed Distribution of Tropical Tropospheric Ozone."
- Picquet-Varrault, B., J. Orphal, J.-F. Doussin, P. Carlier, and J.-M. Flaud. 2005. "Laboratory Intercomparison of the Ozone Absorption Coefficients in the Mid-Infrared (10 Mm) and Ultraviolet (300–350 Nm) Spectral Regions." *The Journal of Physical Chemistry A* 109 (6): 1008–14. doi:10.1021/jp0405411.
- Platt, U., and J. Stutz. 2008. "Differential Optical Absorption Spectroscopy the Evaluation and Interpretation of Spectra of Trace Gas Distributions by Ground , Aircraft , and Satellite-Based" 49 (0): 6221.
- Pommereau, J-P, and F Goutail. 1988. "O₃ AND NO₂ GROUND-BASED MEASUREMENTS BY VISIBLE SPECTROMETRY DURING ARCTIC WINTER AND SPRING 1988" 15 (8): 891–94.
- Poulain, V., S. Bekki, M. Marchand, M. P. Chipperfield, M. Khodri, F. Lefèvre, S. Dhomse, et al. 2016. "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. doi:10.1016/j.jastp.2016.03.010.
- Punge, H J, and M A Giorgetta. 2008. "Net Effect of the QBO in a Chemistry Climate Model." *Atmos. Chem. Phys. Atmospheric Chemistry and Physics Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss* 8: 6505–25. doi:10.5194/acp-8-6505-2008.
- Randel, W., and M. Thompson. 2011. "Interannual Variability and Trends in Tropical Ozone Derived from SAGE II Satellite Data and SHADOZ Ozonesondes." *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 116 (7): 1–9. doi:10.1029/2010JD015195.
- Randel, W., and F Wu. 1995. "TOMS Total Ozone Trends in Potential Vorticity Coordinates." *Geophysical Research Letters* 22 (6): 683–86. doi:10.1029/94GL02790.
- Randriambelo, T., J-L. Baray, and S Baldy. 2000. "Effect of Biomass Burning, Convective Venting, and Transport on Tropospheric Ozone over the Indian Ocean Reunion Island Field Observations" 105.

- Rayner, N. A., D.E. Parker, E.B. Horton, C.K. Folland, L.V. Alexander, D.P. Rowell, E.C. Kent, and A. Kaplan. 2003. “Global Analyses of Sea Surface Temperature, Sea Ice, and Night Marine Air Temperature since the Late Nineteenth Century.” *Journal of Geophysical Research* 108 (D14): 4407. doi:10.1029/2002JD002670.
- Rayner, N A, P Brohan, D E Parker, C K Folland, J J Kenndy, M Vanicek, T J Ansell, and S F B Tett. 2006. “Improved Analysis of Changes and Uncertainties in Sea Surface Temperature Measured In Situ since the Mid-Nineteenth Century: The HadSST2 Dataset.” *Journal Of Climate* 19: 446–69. doi:10.1175/JCLI3637.1.
- Redondas, A., R. Evans, R. Stuebi, U. Köhler, and M. Weber. 2014. “Evaluation of the Use of Five Laboratory-Determined Ozone Absorption Cross Sections in Brewer and Dobson Retrieval Algorithms.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (3): 1635–48. doi:10.5194/acp-14-1635-2014.
- Reinsel, G , G Tgao, J Deluist, L Mateer, and E John. 1984. “Analysis of Upper Stratospheric Umkher Ozone Profile Data for Trends and the Effects of Stratospheric Aerosols” 89: 4833–40.
- Riahi, K, S Rao, V Krey, C Cho, V Chirkov, G Fischer, G Kindermann, N Nakicenovic, and P Rafaj. 2011. “RCP 8.5-A Scenario of Comparatively High Greenhouse Gas Emissions.” *Climatic Change* 109 (1): 33–57. doi:10.1007/s10584-011-0149-y.
- Rivière, E. D., V. Marécal, N. Larsen, and S. Cautenet. 2006. “Modelling Study of the Impact of Deep Convection on the UTLS Air Composition – Part 2: Ozone Budget in the TTL.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 6 (6): 1585–98. doi:10.5194/acp-6-1585-2006.
- Savage, N H, K S Law, J A Pyle, A Richter, J P Burrows, N H Savage, K S Law, J A Pyle, A Richter, and Using Gome. 2004. “Using GOME NO2 Satellite Data to Examine Regional Differences in TOMCAT Model Performance To Cite This Version : And Physics Using GOME NO 2 Satellite Data to Examine Regional Differences in TOMCAT Model Performance.”
- Seidel, D , Q Fu, W Randel, and T Reichler. 2007. “Widening of the Tropical Belt in a Changing Climate.” *Nature Geoscience* 1 (December). Nature Publishing Group: 21. <http://dx.doi.org/10.1038/ngeo.2007.38>.
- Serdyuchenko, A., V. Gorshelev, M. Weber, W. Chehade, and J. P. Burrows. 2014. “High Spectral Resolution Ozone Absorption Cross-Sections &Ndash; Part 2: Temperature Dependence.” *Atmospheric Measurement Techniques* 7 (2): 625–36.

doi:10.5194/amt-7-625-2014.

- Setoh, T, S Imawaki, A Ostrovskii, and S I Umatani. 1999. "Interdecadal Variations of ENSO Signals and Annual Cycles Revealed by Wavelet Analysis." *Journal of Oceanography* 55 (3): 385–94. doi:10.1023/A:1007854415983.
- Shepherd, T G, D A Plummer, J F Scinocca, M I Hegglin, V E Fioletov, M C Reader, E Remsberg, T von Clarmann, and H J Wang. 2014. "Reconciliation of Halogen-Induced Ozone Loss with the Total-Column Ozone Record." *Nature Geoscience* 7 (May). Nature Publishing Group: 443. <http://dx.doi.org/10.1038/ngeo2155>.
- Shettle, E. 1989. "Models of Aerosols, Clouds and Precipitation for Atmospheric Propagation Studies." *AGARD Conf.*, no. February 1990: 1–13.
- Shindell, D, D Rind, N Balachandran, J Lean, and P Lonergan. 1999. "Solar Cycle Variability, Ozone, and Climate." *Science* 284 (5412): 305–8. doi:10.1126/science.284.5412.305.
- Shiotani, M. 1992. "Annual, Quasi-Biennial, and El Niño-Southern Oscillation (ENSO) Time-Scale Variations in Equatorial Total Ozone." *Journal of Geophysical Research* 97 (D7): 7625–33. doi:10.1029/92JD00530.
- Shiotani, M, and F Hasebe. 1994. "Stratospheric Ozone Variations in the Equatorial Region as Seen in Stratospheric Aerosol and Gas Experiment Data." *Journal of Geophysical Research* 99 (D7): 14575–84. doi:10.1029/94JD00741.
- Sioris, C. E., C. A. McLinden, V. E. Fioletov, C. Adams, J. M. Zawodny, A. E. Bourassa, C. Z. Roth, and D. A. Degenstein. 2014. "Trend and Variability in Ozone in the Tropical Lower Stratosphere over 2.5 Solar Cycles Observed by SAGE II and OSIRIS." *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (7): 3479–96. doi:10.5194/acp-14-3479-2014.
- Solomon, S., L. M. Polvani, D. W. Waugh, and S. M. Davis. 2016. "Contrasting Upper and Lower Atmospheric Metrics of Tropical Expansion in the Southern Hemisphere." *Geophysical Research Letters* 43 (19): 10,496-10,503. doi:10.1002/2016GL070917.
- Solomon, S. 1999. "Stratospheric Ozone Depletion: A Review of Concepts and History." *Reviews of Geophysics* 37 (3): 275–316. doi:10.1029/1999RG900008.
- Solomon, Susan. 1999. "Stratospheric Ozone Depletion: A Review of Concepts and History." *Reviews of Geophysics* 37 (3): 275–316. doi:10.1029/1999RG900008.
- Son, S. W., E. P. Gerber, J. Perlwitz, L. M. Polvani, N. P. Gillett, K. H. Seo, V. Eyring, et al.

2010. “Impact of Stratospheric Ozone on Southern Hemisphere Circulation Change: A Multimodel Assessment.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 115 (19). doi:10.1029/2010JD014271.
- Soukharev, B., and L Hood. 2006. “Solar Cycle Variation of Stratospheric Ozone: Multiple Regression Analysis of Long-Term Satellite Data Sets and Comparisons with Models.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 111 (20): 1–18. doi:10.1029/2006JD007107.
- Spurr, R, J Haan, R Oss, and A Vasilkov. 2008. “Discrete-Ordinate Radiative Transfer in a Stratified Medium with First-Order Rotational Raman Scattering.” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 109 (3): 404–25. doi:10.1016/j.jqsrt.2007.08.011.
- Steinbrecht, W, B Hassler, H Claude, P Winkler, and R S Stolarski. 2003. “Global Distribution of Total Ozone and Lower Stratospheric Temperature Variations.” *Atmos. Chem. Phys. Atmospheric Chemistry and Physics* 3: 1421–38. doi:10.5194/acpd-3-3411-2003.
- Stolarski, R, D Waugh, L Wang, L Oman, A Douglass, and P Newman. 2014. “Seasonal Variation of Ozone in the Tropical Lower Stratosphere: Southern Tropics Are Different from Northern Tropics.” *Journal of Geophysical Research* 119 (10): 6196–6206. doi:10.1002/2013JD021294.
- Takahashi, M., and T. Nagashima. 1998. “The First Simulation of an Ozone QBO in a General Circulation Model” 25 (16): 3131–34.
- Tapping, K. F. 2013. “The 10.7 Cm Solar Radio Flux (F10.7).” *Space Weather* 11 (7): 394–406. doi:10.1002/swe.20064.
- Taylor, Karl E. 2001. “Summarizing Multiple Aspects of Model Performance in a Single Diagram.” *Journal of Geophysical Research* 106 (D7): 7183–92. doi:10.1029/2000JD900719.
- Telford, P, P Braesicke, O Morgenstern, and J Pyle. 2009. “Reassessment of Causes of Ozone Column Variability Following the Eruption of Mount Pinatubo Using a Nudged CCM.” *Atmos. Chem. Phys. Discuss* 9 (May 2014): 5423–46. doi:10.5194/acp-9-4251-2009.
- Thiéblemont, R, M Marchand, S Bekki, S Bossay, F Lefèvre, M Meftah, and A Hauchecorne. 2017. “Sensitivity of the Tropical Stratospheric Ozone Response to the Solar Rotational

- Cycle in Observations and Chemistry-Climate Model Simulations.” *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 2 (January): 1–32. doi:10.5194/acp-2016-1102.
- Thompson, A. M., N. V. Balashov, J. C. Witte, J. G R Coetzee, V. Thouret, and F. Posny. 2014. “Tropospheric Ozone Increases over the Southern Africa Region: Bellwether for Rapid Growth in Southern Hemisphere Pollution?” *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (18): 9855–69. doi:10.5194/acp-14-9855-2014.
- Thompson, A. M., K. E. Pickering, D. P. McNamara, M. R. Schoeberl, R. D. Hudson, J. H. Kim, E. V. Browell, V. W. J. H. Kirchhoff, and D. Nganga. 1996. “Where Did Tropospheric Ozone over Southern Africa and the Tropical Atlantic Come from in October 1992? Insights from TOMS, GTE TRACE A, and SAFARI 1992.” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 101 (D19): 24251–78. doi:10.1029/96JD01463.
- Tiao, G. C., G. C. Reinsel, D. Xu, J. H. Pedrick, X. Zhu, A. J. Miller, J. J. DeLuisi, C. L. Mateer, and D. J. Wuebbles. 1990. “Effects of Autocorrelation and Temporal Sampling Schemes on Estimates of Trend and Spatial Correlation” 95 (90).
- Toihir, A. M., H. Bencherif, V. Sivakumar, L. El Amraoui, T. Portafaix, and N. Mbatha. 2015. “Comparison of Total Column Ozone Obtained by the IASI-MetOp Satellite with Ground-Based and OMI Satellite Observations in the Southern Tropics and Subtropics.” *Annales Geophysicae* 33 (9): 1135–46. doi:10.5194/angeo-33-1135-2015.
- Torrence, C, and G Compo. 1998. “A Practical Guide to Wavelet Analysis.” *Bulletin of the American Meteorological Society* 79 (1): 61–78. doi:10.1175/1520-0477(1998)079<0061:APGTWA>2.0.CO;2.
- Trenberth, K., 1997. “The Definition of El Nino.” *Bulletin of the American Meteorological Society* 78 (12): 2771–77. doi:10.1175/1520-0477(1997)078<2771:TDOENO>2.0.CO;2.
- Valdoire A., Sanchez-Gomez E., Salas y Méliá D., Decharme B., Cassou C., Sénési S, Valcke S., Beau I., Alias A., Chevallier M., Déqué M., Deshayes J., Douville H., Fernandez E., Madec G, Maisonnave E., Moine M.-P., Planton S., Saint-Martin D., Szopa S., Tyteca S., Alkama R., Belamari S., Braun A., Coquart L., Chauvin F. 2013 "The CNRM-CM5.1 global climate model : description and basic evaluation. *Climate Dynamics*, vol 40, Issue 9-10, pp 2091-2121.
- Valks, P., N. Hao, S. Gimeno Garcia, D. Loyola, M. Dameris, P. Jöckel, and A. Delcloo. 2014. “Tropical Tropospheric Ozone Column Retrieval for GOME-2.” *Atmospheric Measurement Techniques* 7 (8): 2513–30. doi:10.5194/amt-7-2513-2014.

- Vanderleun, J. 1998. *Environmental Effects of Ozone Depletion: 1998 Assessment. Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology*. Vol. 46. doi:10.1016/S1011-1344(98)00195-X.
- Van Roozendael, M, P. Peeters, H. K. Roscoe, H. De Backer, A. E. Jones, L. Bartlett, G. Vaughan, et al. 1998. “Validation of Ground-Based Visible Measurements of Total Ozone by Comparison with Dobson and Brewer Spectrophotometers.” *Journal of Atmospheric Chemistry* 29 (1): 55–83. doi:10.1023/A:1005815902581.
- Van Roozendael, M., R. Spurr, D. Loyola, C. Lerot, D. Balis, J. C. Lambert, W. Zimmer, et al. 2012. “Sixteen Years of GOME/ERS-2 Total Ozone Data: The New Direct-Fitting GOME Data Processor (GDP) Version 5 Algorithm Description.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 117 (3): 1–18. doi:10.1029/2011JD016471.
- Vaz Peres, L, H Bencherif, N Mbatha, A P Schuch, A M Tohir, N Bègue, T Portafaix, et al. 2017. “Measurements of the Total Ozone Column Using a Brewer Spectrophotometer and TOMS and OMI Satellite Instruments over the Southern Space Observatory in Brazil.” *Annales Geophysicae* 35 (1): 25–37. doi:10.5194/angeo-35-25-2017.
- Veefkind, J P, F. De Haan, E.J. Brinksma, M. Kroon, and P F Levelt. 2006. “Total Ozone From the Ozone Monitoring Instrument (OMI) Using the DOAS Technique.” *EGS - AGU - EUG Joint Assembly* 44 (5): 8932. doi:10.1109/TGRS.2006.871204.
- Vernier, J. P., L. W. Thomason, J. P. Pommereau, A. Bourassa, J. Pelon, A. Garnier, A. Hauchecorne, et al. 2011. “Major Influence of Tropical Volcanic Eruptions on the Stratospheric Aerosol Layer during the Last Decade.” *Geophysical Research Letters* 38 (12). doi:10.1029/2011GL047563.
- Weber, M, V Gorshlev, and A Serdyuchenko. 2016. “Uncertainty Budgets of Major Ozone Absorption Cross Sections Used in UV Remote Sensing Applications.” *Atmospheric Measurement Techniques* 9 (9): 4459–70. doi:10.5194/amt-9-4459-2016.
- Wellemeier, C G, Pawan K Bhartia, S L Taylor, W Qin, Changwoo Ahn, S L Taylor, W Qin, and C S Zerefos. 2004. “Version 8 Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Algorithm.” *Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium*. doi:10.1029/2003JD003395.Bhartia.
- WMO : Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2006, Global Ozone Research and Monitoring Project, Geneva, Switzerland.” 2007. *Memory*, no. 50.

- WMO. 1990. "Report of the International Ozone Trends Panel: 1988. Global Ozone Research and Monitoring Project." *International Organization*, 829 pp.
- WMO. 1999. "WMO Statement on the Status of the Global Climate in 1999." *World Meteorological Organization*, no. 1108: WMO-No. 1108.
http://www.wmo.int/pages/mediacentre/press_releases/documents/WMO_1108_EN_web_000.pdf.
- WMO. 2010. *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2010. Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2010*.
- WMO. 2012. "WMO Statement on the Status of the Global Climate in 2012." *World Meteorological Organization*, no. 1108: WMO-No. 1108.
http://www.wmo.int/pages/mediacentre/press_releases/documents/WMO_1108_EN_web_000.pdf.
- WMO. 1982. *WMO. International Organization*. Vol. 16. doi:10.1017/S0020818300010924.
- WMO. 2014. *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014. World Meteorological Organization, Global Ozone Research and Monitoring Project - Report No. 55*.
- Yamamoto, A, and D. Lee. 1994. "Wavelet Analysis : Theory and Applications." *Hewlett-Packard Journal*, no. December: 44–52. doi:10.1051/jp1:1997114.
- Yano, J-I, M Moncrieff, X Wu, and M Yamada. 2001. "Wavelet Analysis of Simulated Tropical Convective Cloud Systems. Part I: Basic Analysis." *Journal of the Atmospheric Sciences* 58 (8): 850–67. doi:10.1175/1520-0469(2001)058<0850:WAOSTC>2.0.CO;2.
- Zerefos, C S, A F Bais, I C Ziomas, and R D Bojkov. 1992. "On the Relative Importance of Quasi-Biennial Oscillation and El-Nino Southern Oscillation in the Revised Dobson Total Ozone Records." *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 97 (D9): 10135–44.
- Zerefos, C S, K Tourpali, B R Bojkov, D S Balis, and I S A Isaksen. 1997. "Solar Activity-Total Column Ozone Relationships : Observations and Model Studies with Heterogeneous Chemistry Abstract . In the Present Paper We Examine the Effect of Long-Term Solar Variability On" 102: 1561–69.
- Ziemke, J. R., S. Chandra, B. N. Duncan, L. Froidevaux, P. K. Bhartia, P. F. Levelt, and J. W. Waters. 2006. "Tropospheric Ozone Determined from Aura OMI and MLS: Evaluation of Measurements and Comparison with the Global Modeling Initiative's Chemical

Transport Model.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 111 (19): 1–18.
doi:10.1029/2006JD007089.

Ziemke, J. R., S. Chandra, B. N. Duncan, M. R. Schoeberl, O. Torres, M. R. Damon, and P. K. Bhartia. 2009. “Recent Biomass Burning in the Tropics and Related Changes in Tropospheric Ozone.” *Geophysical Research Letters* 36 (15): 1–5.
doi:10.1029/2009GL039303.

Ziemke, J. R., A. R. Douglass, L. D. Oman, S. E. Strahan, and B. N. Duncan. 2015. “Tropospheric Ozone Variability in the Tropics from ENSO to MJO and Shorter Timescales.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (14): 8037–49. doi:10.5194/acp-15-8037-2015.