



HAL
open science

Assimilation des luminances IASI dans un modèle de chimie transport pour la surveillance de l'ozone et des poussières désertiques

Mohammad El Aabaribaoune

► **To cite this version:**

Mohammad El Aabaribaoune. Assimilation des luminances IASI dans un modèle de chimie transport pour la surveillance de l'ozone et des poussières désertiques. Planétologie et astrophysique de la terre [astro-ph.EP]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2022. Français. NNT : 2022TOU30271 . tel-04095007

HAL Id: tel-04095007

<https://theses.hal.science/tel-04095007v1>

Submitted on 11 May 2023

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.



Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par : *l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)*

Présentée et soutenue le *30/05/2022* par :

Mohammad EL AABARIBAOUNE

**Assimilation des luminances IASI dans un modèle de chimie transport
pour la surveillance de l'ozone et des poussières désertiques**

JURY

SOLÈNE TURQUETY
GILLES FORET
ISABELLE CHIAPELLO
VALÉRIE THOURET
EMANUELE EMILI
VINCENT GUIDARD

Professeur d'Université, LMD
Maître de conférences, LISA
Chargé de Recherche, LOA
Physicienne, Laboratoire
d'aérogologie
Directeur de thèse, CERFACS
Directeur de thèse, CNRM

Rapporteure
Rapporteur
Examinatrice
Présidente
Directeur de thèse
Co-Directeur de thèse

École doctorale et spécialité :

SDU2E : Astrophysique, Sciences de l'Espace, Planétologie

Unité de Recherche :

CECI, Cerfacs, CNRS

Directeur(s) de Thèse :

Emanuele EMILI et Vincent GUIDARD

Rapporteurs :

Solène Turquety et Gilles Foret

Résumé :

L’ozone et les poussières désertiques jouent un rôle crucial dans notre atmosphère nécessitant une surveillance continue. Cette surveillance est effectuée par le biais des observations et de la modélisation. Ces deux outils sont combinés par une approche appelée ‘assimilation de données’ visant à trouver un compromis optimal entre mesures et prévisions, qui décrit au mieux l’état de l’espèce surveillée. Les systèmes d’assimilation de données utilisent des produits dérivés des mesures satellitaires dans la bande spectrale de l’infrarouge pour améliorer les prévisions d’ozone issues des modèles. L’assimilation directe des luminances satellitaires a été adoptée récemment dans le cas de l’ozone pour pallier quelques problématiques rencontrées lors de l’utilisation des produits existants. L’objectif de ce travail est d’améliorer l’assimilation des luminances IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) pour l’ozone puis les utiliser pour corriger conjointement l’ozone et les poussières désertiques, dans le but de tirer profit de la sensibilité du spectre mesuré par IASI aux deux espèces. Nous avons utilisé le modèle de chimie-transport MOCAGE, (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle), un schéma d’assimilation 3D-VAR et 280 canaux de l’instrument IASI situés entre 980 et 1100 cm^{-1} , déjà utilisés pour la restitution de l’ozone et des poussières désertiques dans des études précédentes. Nous avons investigué dans un premier temps les erreurs d’observation et leurs impact sur les analyses d’ozone. Nous avons constaté que la mise à jours des erreurs d’observation a amélioré considérablement les résultats d’assimilation de l’ozone sur une durée d’un mois en les comparant à des mesures obtenues par des instruments indépendants. Ensuite, la production d’analyses sur une période d’une année a été effectuée dans le but d’évaluer la capacité de l’assimilation infrarouge IASI de reproduire la variabilité saisonnière de l’ozone troposphérique. Une validation avec des réanalyses et des simulations utilisant des schémas chimiques plus détaillés que la notre a montré que les mesures infrarouges apportent une plus-value pour les analyses d’ozone aussi sur des périodes longues. La deuxième partie de ce travail a été consacrée à l’inclusion des poussières désertiques dans le modèle de transfert radiatif et dans la variable de contrôle, permettant ainsi la correction des poussières et de l’ozone. Les analyses de l’épaisseur optique de la totalité d’aérosols AOD (Aerosols Optical Depth) et des colonnes totales des poussières désertiques ont été évaluées. L’épaisseur optique a été comparée avec des instruments indépendants (MODIS et AERONET) en montrant un impact significatif et positif de l’assimilation infrarouge sur les champs de aérosols. En résumé, à travers ce travail, nous avons amélioré les analyses d’ozone existantes et produit pour la première fois des analyses de poussières désertiques en assimilant des observations satellitaires dans l’infrarouge.

Mots clés :

Assimilation de données, Ozone, Aérosols désertiques, Télédétection, IASI, Luminances infrarouges.

Abstract :

Ozone and desert dust play a crucial role in our atmosphere requiring continuous monitoring. This monitoring is done through observations and modeling. These two tools are combined by an approach called 'data assimilation' aiming to find an optimal trade-off between measurements and forecasts, which best describes the state of the monitored species. Data assimilation systems use products derived from satellite measurements in the infrared spectral band to improve model-based ozone forecasts. Direct assimilation of satellite radiances has been adopted recently for ozone to overcome some of the issues encountered when using retrievals. The objective of this work is to improve the assimilation of IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) radiances for ozone and then use them to jointly correct ozone and desert dust, in order to take advantage of the sensitivity of the spectrum measured by IASI to both species. We used the MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle) chemistry-transport model, a 3D-VAR assimilation scheme and 280 channels of the IASI instrument located between 980 and 1100 cm^{-1} , already used for ozone and desert dust retrieval in previous studies. We first investigated the observation errors and their impact on the ozone analyses. We found that updating the observation errors significantly improved the ozone assimilation results over a period of one month when compared to measurements obtained by independent instruments. Then, we computed ozone analyses over a period of one year in order to evaluate the capacity of IASI radiances assimilation to reproduce the seasonal variability of tropospheric ozone. A validation with reanalyses and simulations using more detailed chemical schemes than ours has shown that infrared measurements bring an added value for ozone analyses also over long periods. The second part of this work was devoted to the inclusion of desert dust in the radiative transfer model and in the control variable, thus allowing the correction of the ozone and desert dusts. The optical thickness of the total aerosol AOD (Aerosols Optical Depth) and the total desert dust columns were evaluated. The optical thickness was compared with independent instruments (MODIS and AERONET) showing a significant and positive impact of the infrared assimilation on the aerosol fields. In summary, through this work, we have improved existing ozone analyses and produced for the first time desert dust analyses by assimilating satellite observations in the infrared.

Keywords :

Data assimilation, Ozone, Desert dusts, Remote sensing, IASI, Infrared radiances.

Table des matières

1	Introduction et généralités	6
2	Modélisation	14
2.1	Modèles de chimie transport	14
2.2	MOCAGE	15
2.2.1	Définition et utilisations :	15
2.2.2	Résolution spatiale	16
2.2.3	Transport, forçage météorologique et conditions initiales :	17
2.3	L’ozone et les poussières désertiques dans MOCAGE	20
2.3.1	L’ozone	20
2.3.2	Les poussières désertiques	21
3	Observations	24
3.1	Téledétection	24
3.2	Transfert radiatif	27
3.3	L’instrument IASI	31
3.4	Observations utilisés dans ce travail	34
4	Assimilation de données	44
4.1	Principes théoriques	44
4.2	Approche variationnelle : 3D-Var	47
4.3	Description du système d’assimilation utilisé dans ce travail	49
4.4	Erreur d’observation	52
4.4.1	Définition et sources	52
4.4.2	Méthodes d’estimation	54
5	Assimilation des luminances IASI pour l’ozone	58
5.1	Erreurs d’observation : Estimation et première évaluation d’impact	59
5.1.1	Résumé de l’article 1	59
5.1.2	Article 1	60
5.1.3	Résultats supplémentaires	77
5.2	Utilisation des luminances IASI pour des réanalyses d’ozone	84
5.2.1	Résumé de l’article 2	86
5.2.2	Article 2	87
5.3	Synthèse	106
6	Assimilation conjointe de l’ozone et des poussières désertiques	107
6.1	Contexte et configuration de l’étude	107
6.2	Prise en compte des poussières désertiques dans l’opérateur d’observation	113
6.2.1	Éléments préliminaires de l’étude	113
6.2.2	Impact sur les luminances et sur les analyses d’ozone	118
6.3	Introduction des poussières désertiques dans la variable de contrôle	123
6.3.1	Configuration de l’étude	123

6.3.2	Impact sur les analyses d'ozone et de poussières désertiques	123
6.3.3	Synthèse	136
7	Conclusions et perspectives	137
	Bibliographie	141

1 Introduction et généralités

La composition chimique de l'atmosphère terrestre a un rôle principal : elle interagit avec notre environnement, le climat et la météorologie faisant de sa surveillance une nécessité. Les gaz à effet de serre, qui comprennent principalement la vapeur d'eau (H_2O), l'ozone (O_3), le dioxyde de carbone (CO_2), l'oxyde nitreux (N_2O) et le méthane (CH_4) ont un effet remarquable sur le réchauffement climatique. Les aérosols ont aussi un impact significatif sur le bilan radiatif de l'atmosphère, qui peut varier entre réchauffement et refroidissement en fonction du type de particule, de la longueur d'onde et des propriétés de la surface terrestre. Dans ce travail, nous nous intéressons à l'ozone et aux aérosols, notamment aux poussières désertiques.

L'ozone est un gaz qui joue un rôle crucial dans notre atmosphère. Selon l'endroit où il se trouve, il peut protéger ou nuire à la vie sur Terre.

La majeure partie de l'ozone (environ 90 %) se trouve dans la stratosphère. Cette région avec la concentration d'ozone la plus élevée est communément appelée la *couche d'ozone*. Laquelle couche s'étend sur l'ensemble du globe avec quelques variations d'altitude et d'épaisseur. Le reste de l'ozone (environ 10 %) se trouve dans la troposphère. Les molécules d'ozone ont une abondance relativement faible dans l'atmosphère. Dans la stratosphère, il y a généralement quelques milliers de molécules d'ozone pour chaque milliard de molécules d'air. Dans la troposphère, l'ozone est encore moins abondant, avec une gamme de 20 à 100 molécules d'ozone pour chaque milliard de molécules d'air.

L'ozone stratosphérique absorbe le rayonnement ultraviolet du Soleil. Ces rayonnements sont nocifs pour diverses formes de vie. Une exposition accrue aux rayons UV présente des risques importants pour la santé humaine (risques de cancer de la peau, de cataractes, affaiblissement du système immunitaire, etc.). Une exposition excessive aux UV peut également endommager la vie végétale terrestre, les organismes unicellulaires et les écosystèmes aquatiques. L'ozone troposphérique est un gaz à effet de serre. Son augmentation entraîne un réchauffement de la surface de la Terre. Il est le troisième plus grand contributeur au forçage radiatif troposphérique total depuis la période pré-industrielle, avec des augmentations globales de sa concentration contribuant à un forçage radiatif global sur la période 1750-2011 de $+0.35 \text{ Wm}^{-2}$. La présence en excès de l'ozone troposphérique par rapport aux quantités naturelles présente aussi des effets négatifs pour l'environnement et pour la santé humaine.

L'ozone stratosphérique se forme naturellement par des réactions chimiques impliquant le rayonnement ultraviolet solaire et les molécules d'oxygène, qui constituent 21 % de l'atmosphère. Dans la première étape, le rayonnement ultraviolet solaire décompose une molécule de dioxygène O_2 pour produire deux atomes d'oxygène. Dans la deuxième étape, chacun de ces atomes se combine avec une molécule de dioxygène pour produire une molécule d'ozone O_3 . Ces réactions se produisent continuellement chaque fois que le rayonnement ultraviolet solaire est présent dans la stratosphère. Par conséquent, la plus grande production d'ozone se situe dans la stratosphère tropicale. La production d'ozone stratosphérique est équilibrée par sa destruction lors des réactions chimiques. L'ozone

réagit continuellement avec la lumière du soleil et une grande variété de produits chimiques naturels et produits par l'homme, cumulés, malgré leurs petites quantités, dans la stratosphère. Dans chaque réaction, une molécule d'ozone est perdue et d'autres composés chimiques sont produits. Les gaz réactifs importants qui détruisent l'ozone sont les oxydes d'hydrogène et d'azote et ceux contenant du chlore. Une partie de l'ozone stratosphérique est régulièrement transportée dans la troposphère via des échanges de masse d'air appelés intrusions stratosphériques.

Dans la troposphère, l'ozone est produit par des réactions chimiques impliquant des gaz naturels et des gaz provenant de sources de pollution. Les réactions de production d'ozone impliquent principalement des gaz issus de la combustion d'hydrocarbures et d'oxyde d'azote, ainsi que l'ozone lui-même, et toutes nécessitent la lumière du soleil pour s'achever. La combustion de combustibles fossiles est une source primaire de gaz polluants qui conduisent à la production d'ozone troposphérique. Comme dans la stratosphère, l'ozone dans la troposphère est détruit par des réactions chimiques naturelles et par des réactions impliquant des produits chimiques produits par l'homme. L'ozone est éliminé aussi par le dépôt au sol (dépôt sec).

Les poussières désertiques ou aérosols minéraux sont l'une des plus grandes sources d'aérosols en général. Les sources de ce type d'aérosols se trouvent principalement dans les déserts. Les autres sources d'aérosols minéraux sont les sols semi-arides, les régions à végétation réduite ou les sols perturbés par les activités humaines comme la circulation et la construction.

Les poussières désertiques sont issues des sols érodés et, par conséquent, leur composition ressemble à la composition du sol d'origine. La composition élémentaire des poussières du désert est assez constante autour du globe mais, néanmoins, dans les particules, nous pouvons trouver une variété de différents types de minéraux (Usher et al. [2003]). Les poussières du désert proviennent principalement du sable, et la poussière des autres zones arides et semi-arides contient plus d'argile (Alfaro et al. [1998]). La réactivité chimique des aérosols de poussière du désert est très faible, mais ils peuvent fournir une surface pour des réactions chimiques. Les interactions avec des espèces chimiques inorganiques ou organiques réactives ou des aérosols peuvent modifier la nature chimique des particules de poussière. Elles peuvent changer et altérer leur surface ou y faire un revêtement qui peut améliorer ou empêcher d'autres réactions. Les poussières du désert participent dans la diffusion du rayonnement. Elles absorbent aussi le rayonnement avec une section efficace plus petite que celle de diffusion. Mais du fait de sa forte abondance massique, leurs absorption totale globale est importante (Sokolik and Toon [1996]).

Les aérosols de poussière du désert sont, comme déjà mentionné, des parties de sols désintégrées mécaniquement. Leur formation et leur émission dépendent fortement du vent, mais aussi des propriétés physiques et des conditions des sols. Lorsque le vent atteint une vitesse suffisamment élevée, il commence à déplacer des particules. Cette vitesse du vent est appelée *vitesse seuil d'érosion* et dépend de la taille des particules qui commencent à se déplacer. Cela dépend également des propriétés du sol : sa rugosité, son humidité, des forces de cohésion entre les particules du sol, ou la présence de végétation. Si la vé-

gétation est présente, il est important de savoir à quel degré elle est présente et de quel type. Lorsque la vitesse du vent d'érosion est atteinte, les particules commencent à se déplacer horizontalement dans la couche proche de la surface. Les plus grosses particules ne rebondissent pas à cause de leur poids et de leur traînée gravitationnelle, mais roulent simplement sur la surface. Les particules en mouvement peuvent se décomposer ou décomposer les agrégats du sol qu'elles frappent. L'impact pourrait fournir suffisamment d'énergie pour briser les forces de cohésion qui lient les particules de sol et libérer de petites particules de poussière dans l'air (Laurent et al. [2006]).

La particularité des aérosols de poussières désertiques est qu'ils sont transportés sur de très longues distances, souvent sur plusieurs milliers de kilomètres voire plus. Les poussières ont un rôle fertilisant pour les écosystèmes océaniques et continentaux en apportant des nutriments comme le phosphore (P) ou le fer (Fe) (Bristow et al. [2010]). Ce rôle semble être particulièrement important pour la forêt amazonienne et l'océan Atlantique équatorial (Bristow et al. [2010]). Les poussières ont un effet radiatif direct significatif sur le bilan énergétique de la Terre, qui agit probablement globalement pour refroidir la planète. Selon la fraction des poussières apportées par les sources anthropiques, le forçage radiatif direct exercé sur le système climatique est estimé à -0.1 (-0.3 à $+0.1$) W m^{-2} (Boucher [2013]). Pour mettre cela en perspective, le forçage radiatif total exercé par tous les aérosols est estimé à -0.45 (-0.95 à $+0.05$) W m^{-2} (Boucher [2013]). Kok et al. [2017] ont noté que l'effet global de refroidissement de la poussière serait moindre si le mode grossier des particules de poussière était mieux représenté dans les modèles climatiques. La poussière joue également un rôle dans la micro-physique des nuages, agissant comme des noyaux de glace impactant ainsi le développement des nuages par la suite les effets radiatifs des nuages de glace et les caractéristiques des précipitations. En plus de leurs effets sur le bilan énergétique de la Terre et le cycle de l'eau, le transport des particules de poussière minérale est connu pour être important pour la productivité biologique dans les régions océaniques (Mahowald et al. [2009]). Le transport de poussières sur des longues distances contribue à la dégradation de la qualité de l'air (Yu et al. [2015]) et peut être un moyen de transport intercontinental d'agents biologiques et pathogènes (Smith et al. [2012]). Le désert du Sahara est la principale source de poussière dans le monde, contribuant à plus de la moitié de toutes les émissions mondiales, avec une quantité estimée à 182 millions de tonnes de poussière transportée à travers la bordure ouest du Sahara chaque année (Yu et al. [2015]).

Les poussières désertiques et l'ozone jouent un rôle important dans l'atmosphère de notre planète. Cependant, leur suivi est difficile en raison leur variation rapide et continue dans le temps et dans l'espace due aux processus complexes qui gouvernent leur évolution. Des simulations des modèles et des observations en continu sont des moyens efficaces pour leur surveillance.

Les observations permettent de suivre et déterminer les propriétés de l'ozone et des poussières désertiques, leur variabilité et leur impact sur l'environnement. Ceci en s'appuyant sur plusieurs techniques comme les mesures in situ par des sondes ou des réseaux au sol, et les techniques de télédétection, depuis le sol ou l'espace, s'appuyant sur des mesures de rayonnement. Pour l'ozone, les sondes d'ozone embarquées sous des ballons

météorologiques ont permis d'observer les profils verticaux depuis quelques décennies. Ces mesures fournissent des longues séries temporelles d'ozone accessibles depuis le World Ozone and Ultraviolet Data Center (WOUDC, <http://woudc.org/data/>). Bien que les sondes d'ozone soient précises et présentent une bonne résolution sur la verticale, leur faible couverture spatiale et temporelle limite leur utilisation pour la description globale de l'ozone. D'autres observations du profil vertical de l'ozone peuvent être obtenues depuis des instruments de mesure in situ à bord d'avions limité aux zones d'atterrissage, de décollage et aux altitudes de croisières. Le programme MOZAIC (*Measurements of OZone and water vapor by in-service AIRbus airCraft*, Marenco et al. [1998]) fut le premier système d'observation embarqué sur avion. Ensuite d'autres projets d'observations aéroportées dont le programme actuel IAGOS (*In-service Aircraft for a Global Observing System*, Petzold et al. [2015]) ont été menés. Les poussières désertiques, à leur tour, ont été mesurées par des techniques in situ depuis plusieurs années. Les campagnes de terrain, les instruments aéroportés, et les mesures au sol par des réseaux de stations insitu ou par télédétection comme le réseau AERONET (*AERosol RObotic NETwork*, Holben et al. [1998]) ont fourni des mesures détaillées et précises. Cependant, ces données ont généralement une bonne précision verticale, mais sont limitées à de courtes périodes de temps pendant les campagnes et à des couvertures spatiales non suffisantes. Le sondage satellitaire intervient donc pour assurer une large couverture spatiale et temporelle sur tout le globe pour de nombreux constituants de l'atmosphère, en particulier pour l'ozone et pour les poussières désertiques. Dans le but de mesurer l'ozone, plusieurs sondeurs ont été utilisés. Jusqu'à aujourd'hui, la colonne totale de l'ozone est mesurée majoritairement dans l'ultraviolet (UV), comme par le sondeur OMI (*Ozone Monitoring instrument*) à bord de AURA ou le sondeur GOME-2 (*Global Ozone Monitoring Experiment-2*) à bord des satellites européens Metop. Les profils d'ozone en stratosphère sont fournis plutôt par des instrument au limbe balayant l'atmosphère sur la verticale au cours de l'orbite comme MLS (*Microwave Limb Sounder*) à bord du satellite AURA. La colonne troposphérique est obtenue par combinaison des instruments au limbe observant la stratosphère avec les instruments au nadir fournissant une information intégrée sur toute la verticale (e.g. Ziemke et al. [2015]). L'observation de l'ozone dans l'infrarouge connaît de plus en plus un intérêt remarquable vu sa sensibilité dans la troposphère et aussi la disponibilité d'information continue dans le temps (jour et nuit). L'instrument TOVS (*Tiros Operational Vertical Sounder*) embarqué à bord du satellite TIROS-N de la NOAA fut le premier instrument d'observation de l'ozone dans l'infrarouge en 1978. Ensuite, d'autres missions se sont succédées. On peut citer, à titre d'exemple, AIRS (*Atmospheric Infrared Sounder*, Aumann et al. [2003]), TES (*Tropospheric Emission Spectrometer*, Beer et al. [1999]), et IASI (*Interféromètre Atmosphérique de Sondage dans l'Infrarouge*, Clerbaux et al. [2009]). Pour les poussières désertiques, les satellites jouent un rôle crucial dans la surveillance de leurs évolution. Il fournissent des mesures à l'échelle globale depuis déjà plus de 30 ans permettant d'établir leur climatologie et les tendances à long terme. Les satellites mesurent généralement les grandeurs intégrées, comme l'épaisseur optique des aérosols (AOD). Parmi les données les plus utilisées on peut citer les données MODIS (*MODerate resolution Imaging Spectrometer*, Remer et al. [2005]) et AERONET (AERosol RObotic NETwork, Holben et al. [1998]). Cependant, un intérêt croissant a été accordé à

l'infrarouge avec l'émergence des instruments hyperspectraux comme AIRS et IASI. Le spectre infrarouge est sensible aux poussières désertiques et présente, par conséquent, une possibilité pour suivre les épisodes des poussières désertiques. En effet, plusieurs travaux ont été menés pour restituer des caractéristiques des poussières désertiques depuis IASI et AIRS : l'épaisseur optique (e.g. Peyridieu et al. [2013], Klüser et al. [2011]), les profils verticaux (e.g. Vandenbussche et al. [2013], Cuesta et al. [2015], Capelle et al. [2014], Capelle et al. [2018]), et l'altitude et la taille des particules (Ventress et al. [2016]).

Malgré l'apport énorme des observations et la multitude d'instruments et de techniques utilisées, elles ne sont pas suffisantes pour représenter l'atmosphère dans sa globalité. D'autre part, les processus physiques de l'ozone et des poussières désertiques (sources, puits et transport) sont complexes. Ceci rend l'utilisation des modèles nécessaire.

Le but d'un modèle de chimie-transport, ou de circulation générale décrivant les processus chimiques en ligne, est de fournir une représentation réaliste des espèces chimiques et des aérosols, notamment l'ozone et les poussières désertiques, dans l'atmosphère à la fois dans le temps et dans l'espace. Les modèles de pointe sont devenus des puissants outils pour étudier l'ozone et les aérosols. Chaque rapport du GIEC (Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat), les publications de référence sur le sujet du changement climatique, constate des améliorations considérables des modèles d'aérosols (GIEC, 2001, 2007, 2013, 2021). Au fur et à mesure que les connaissances et les outils progressent, des représentations physiquement plus complètes des aérosols sont mises en œuvre et simulées. Cependant, les comparaisons avec les observations et les inter-comparaisons entre modèles montrent encore des écarts importants entre les résultats des modèles et des incertitudes significatives (e.g. pour l'ozone, ACCMIP *Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project* Lamarque et al. [2013] et Mann et al. [2014]; Textor et al. [2007] pour les aérosols). D'après les résultats d'inter-comparaison de plusieurs modèles, le forçage radiatif moyen global de l'ozone troposphérique est estimé à $0.40 \pm 0,20 W m^{-2}$ (Stocker et al. [2013]). Les barres d'erreur relativement grandes ($\pm 50\%$) sont dues aux incertitudes dans l'estimation des niveaux d'ozone pré-industriels (Young et al. [2013]) et aux incertitudes liées à la distribution spatiale actuelle de l'ozone troposphérique (Wu et al. [2007]).

Dans notre étude, nous nous intéressons à la stratosphère et à la troposphère. De ce fait, nous utilisons le modèle de chimie transport (CTM) global MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle) développé au CNRM (Centre National des Recherches Météorologiques) de Météo France, qui décrit les processus chimiques et liés aux aérosols à la fois dans la stratosphère et le troposphère.

Des efforts accrus restent à faire pour améliorer les performances des modèles. L'un des moyens consiste à améliorer directement les composants du modèle. Cela comprend le développement de paramétrisations plus détaillées physiquement, le développement des schémas explicites et résolus en particules de processus connus, l'ajout de nouveaux processus dans le modèle, l'amélioration de la résolution spatiale et temporelle du modèle, etc. Une autre approche pour améliorer les performances consiste à intégrer dans des modèles les informations obtenues à partir d'observations à l'aide de techniques d'assimi-

lation de données. Un système d'assimilation de données prend en compte les incertitudes du modèle et des observations et recherche l'état de l'atmosphère le plus réaliste en combinant de manière optimale modèle et observations. L'assimilation de données devient progressivement une technique importante pour combiner l'information issue des observations et des modèle de chimie transport. C'est bien sur ce deuxième levier qui se focalise ce travail de thèse.

L'assimilation des produits restitués à partir des mesures satellitaires (appelés produits de niveau 2) dans le modèle de chimie transport MOCAGE a été évaluée dans plusieurs études passés, soit pour l'ozone (e.g. Massart et al. [2009], Emili et al. [2014] et Peiro et al. [2018]) que pour les aérosols (Sič et al. [2016]). Ce genre d'approche est aujourd'hui utilisé dans plusieurs centres de prévision pour la production opérationnelle des analyses de composition de l'atmosphère (e.g. Inness et al. [2019], Dragani and McNally [2013]). Cependant, l'utilisation des produits de niveau 2 dans le système d'assimilation peut introduire des biais dans le processus d'assimilation (Emili et al. [2019]). En effet, l'information a priori utilisée pour les restitutions dans l'infrarouge thermique influence la qualité des restitutions. Dans certaines circonstances il peut s'avérer difficile de corriger les erreurs résultants d'un a priori trop éloigné du profil de concentration local. D'autre part, le processus de l'assimilation de données requiert la spécification des erreurs d'observations. Cette spécification est plus difficile quand les produits de niveau 2 sont utilisés, car dépendante des hypothèses faites pendant l'étape de restitution (y compris le profil a priori et ses erreurs). L'assimilation des luminances mesurées par l'instrument (appelés produits de niveau 1) permet un description plus directe des erreurs de l'instrument, souvent mieux connus. En plus, l'assimilation des luminances a déjà montré un apport remarquable dans le cadre de la prévision numérique de temps (e.g. Marquis et al. [2021], Bormann et al. [2016]). Récemment, l'assimilation directe des luminances pour la correction de l'ozone a été introduite dans le modèle MOCAGE (Emili et al. [2019]). Cependant, les erreurs instrumentales y sont définies d'une manière empirique et simple, en lien avec les choix déjà adoptés dans la littérature pour ce qui concerne les restitutions de niveau 2. Deuxièmement, le spectre que nous avons utilisé dans ce travail hérite des sélections utilisées pour les restitutions IASI de l'ozone. Cependant cette région du spectre a une sensibilité aussi aux poussières désertiques (Vandenbussche et al. [2013]). Cette sensibilité pourrait avoir un impact sur le calcul du transfert radiatif et donc sur les analyses de l'ozone. Elle pourrait être utilisée aussi pour produire des analyses des poussières désertiques conjointement avec l'ozone.

Dans le présent travail, nous reprenons l'objectif qui a été initié par Emili et al. [2019] : tirer profit des luminances IASI (qu'on note L1) pour les analyses de l'ozone, et nous investiguons ensuite leur apport pour les poussières désertiques. En effet, Emili et al. [2019] ont comparé pour la première fois l'assimilation des luminances IASI et des produits de niveau 2 (restitués, qu'on note L2) dans un modèle de chimie transport pour les analyses de l'ozone. Les résultats ont montré que la précision de l'information a priori de l'ozone utilisée dans les restitutions L2 peut influencer l'analyse. Lorsque l'information a priori de l'ozone est fortement biaisée, l'assimilation de L1 et L2 diffère significativement

et l'analyse montre une meilleure variabilité en assimilant directement les luminances L1 au lieu des produits L2. Cependant, Emili et al. [2019] ont rencontré quelques problèmes lors de l'utilisation des luminances dans le système d'assimilation : une augmentation des erreurs d'analyse de l'ozone dans certaines latitudes (particulièrement sévère aux tropiques). Le premier objectif de ce travail est donc d'améliorer le processus d'assimilation des luminances IASI dans notre système. Pour ce fait, nous avons investigué la spécification des erreurs d'observation et nous avons évalué l'impact de leurs mis à jours sur les analyses de l'ozone sur un une durée d'un mois. Cette partie a donné lieu à un premier article (El Aabaribaoune et al. [2021]). Notre deuxième objectif était d'évaluer l'apport des luminances IASI pour des réanalyses d'ozone de longue durée. Nous avons, par conséquent, tiré profit des derniers développements apportés à notre système notamment l'utilisation directe des luminances (Emili et al. [2019]) et la mise à jour des erreurs d'observations (El Aabaribaoune et al. [2021]) pour calculer une réanalyse d'ozone d'une année. Ce deuxième objectif a donné lieu à un deuxième article (Emili and El Aabaribaoune [2021]). D'autre part, comme nous l'avons souligné précédemment, le spectre utilisé pour l'assimilation de l'ozone est sensible aux poussières désertiques, mais nous n'avions pas jusqu'à présent inclus cette contribution dans le calcul du transfert radiatif. Cette approximation a été contournée jusqu'ici en utilisant un filtre pour rejeter les observations signalant une présence significative de poussières désertiques. Ce filtre n'est pas parfait et quelques pixels pourraient y échapper et, par conséquent, une contamination résiduelle des poussières désertiques pourrait persister. Cette contamination pourrait par la suite impacter les résultats de l'assimilation. Des problématiques similaires sont rencontrées dans le processus de la restitution des paramètres atmosphériques dans l'infrarouge. Pierangelo et al. [2004] ont montré que les poussières désertiques peuvent induire des biais de température de brillance dans l'infrarouge d'environ 10 K . Un comportement identique peut être attendu dans notre cas puisque la partie du spectre de l'ozone utilisé dans notre étude est sensible aux poussières désertiques, avec une sensibilité qui peut atteindre 10 K comme le montrent Sokolik [2002] et Vandembussche et al. [2013]. Des études récentes ont été menées pour investiguer l'impact des poussières désertiques sur l'assimilation des luminances infrarouges dans le contexte de la prévision numérique de temps (e.g. Marquis et al. [2021] et Grogan et al. [2022]). Ces études ont montré que l'assimilation des observations des sondeurs infrarouges hyperspectraux impactées par les poussières désertiques s'avère significative. Le dernier objectif donc de ce travail est de prendre en compte l'effet des poussières désertiques dans notre système d'assimilation, d'évaluer leur impact sur les analyses de l'ozone et de les étendre aux poussières elles mêmes.

Notre manuscrit est organisé comme suit. Dans le premier chapitre, nous présentons la modélisation comme moyen de suivi de l'évolution spatio-temporelle de l'ozone et des poussières désertiques. Le modèle utilisé dans ce travail est décrit dans ce chapitre. Les observations sont décrites à leur tour dans le deuxième chapitre. Dans le troisième chapitre, nous avons abordé les différents concepts de l'assimilation de données et le système utilisé dans ce travail. Le chapitre quatre discute les erreurs d'observation et leur impact sur les analyses ainsi que la capacité des mesures infrarouge de reproduire la variabilité spatio-temporelle de l'ozone sur une durée prolongée. Dans le cinquième

chapitre, nous avons abordé l'introduction des poussières désertiques dans le système d'assimilation et leurs impact sur l'ozone et sur les poussières elles-mêmes. Enfin, nous avons clôturé notre travail par les conclusions et les perspectives.

2 Modélisation

Dans cette partie nous allons mettre l'accent sur la modélisation comme première approche de surveillance de l'évolution spatio-temporelle de la composition chimique de l'atmosphère, en particulier de l'ozone et des poussières désertiques. Une introduction générale des modèles de chimie transport est présentée. Ensuite, une description générale du modèle MOCAGE est détaillée. La dernière partie de ce chapitre abordera les différents schémas utilisés dans ce modèle pour l'ozone et les poussières désertiques.

2.1 Modèles de chimie transport

L'atmosphère est un système réactif extrêmement complexe dans lequel de nombreux processus physiques et chimiques se déroulent simultanément. La compréhension d'un processus atmosphérique individuel n'implique pas la compréhension du système dans son ensemble. Les modèles mathématiques fournissent le cadre nécessaire à l'intégration de notre compréhension des processus atmosphériques individuels et à l'étude de leurs interactions. Ces modèles comprennent des descriptions des schémas d'émissions, de la météorologie, des transformations chimiques et des processus d'élimination. Les modèles de chimie transport (MCT) représentent donc une première approche pour surveiller les composants chimiques dans l'atmosphère. Les MCTs permettent de suivre les composants chimiques considérés depuis l'origine jusqu'à la disparition. Sur la figure 1 Sur la 2 présentent les principaux processus représentés dans un modèle physico-chimique de l'atmosphère, qui contribuent à l'évolution spatiale et temporelle des espèces atmosphériques. Ces processus peuvent être classés en quatre catégories : les sources comme les émissions naturelles et anthropiques, les transformations, le transport à grande échelle et sous maille et les puits sous forme de dépôts humides et secs.

Les modèles de chimie transport peuvent être utilisés pour servir à plusieurs applications allant de la qualité de l'air à la modélisation du climat. Plusieurs pays d'Europe ont utilisé de tels systèmes pour surveiller la qualité de l'air. Le gouvernement français a initié le système "Prev'air" (www2.prevoir.org) pour proposer des prévisions de la qualité de l'air pour la journée en cours et jusqu'à deux jours en utilisant les modèles MOCAGE (qui sera décrit en détails dans cette partie) et CHIMERE. Un autre exemple d'utilisation des CTM est l'étude des cycles biochimiques, tels que la formation ou le transport de particules d'aérosols sulfatés provenant d'éruptions volcaniques et leurs interactions avec la végétation. Ils peuvent être utilisés pour exécuter des simulations paléochimiques de la qualité de l'air à l'époque préhistorique afin d'évaluer l'impact sur la chimie et le climat d'événements extrêmes comme les impacts d'astéroïdes ou les éruptions volcaniques. Ils peuvent également être utilisés pour étudier les interactions entre la chimie et le changement climatique. Par exemple, le comité IGAC (*Science Plan and Implementation Strategy*) étudie, entre autres sujets, l'impact de l'ozone sur le changement climatique ou l'effet des aérosols sur les nuages en utilisant des CTMs.

Dans le présent travail, nous utilisons MOCAGE comme CTM. Ce modèle sera décrit en détail, notamment pour ce qui concerne les schémas des poussières désertiques et de

l'ozone adoptés.

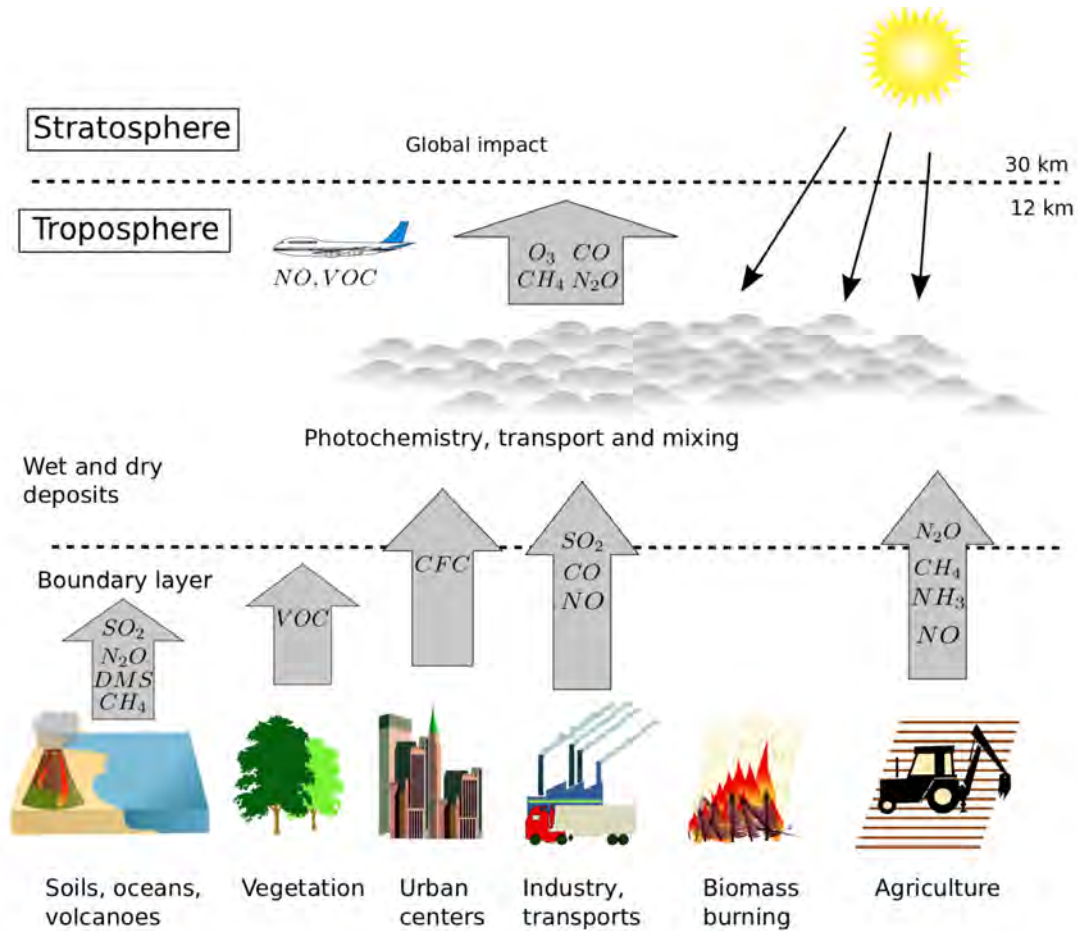


FIGURE 1 – Représentation schématique des différents processus représentés dans un modèle de chimie transport. COV signifie composé organique volatil, DMS signifie sulfure de diméthyle, un composé soufré organique. CFC signifie chlorofluorocarbures, un composé massivement utilisé dans l'industrie, qui contribue à l'appauvrissement de la couche d'ozone (Praga [2015]).

2.2 MOCAGE

2.2.1 Définition et utilisations :

Le **MO**dèle de **Chimie Atmosphérique à Grande Echelle** (MOCAGE) est le modèle utilisé dans ce travail. Il a été développé au Centre National de Recherches Météorologiques de Météo France. Il permet de simuler les différents processus de l'évolution spatio-temporelle des gaz (e.g. Dufour et al. [2005]; Josse et al. [2004]; Teyssède et al. [2007a]); et des aérosols (e.g. Guth et al. [2016]; Martet et al. [2009]; Sič et al. [2015])

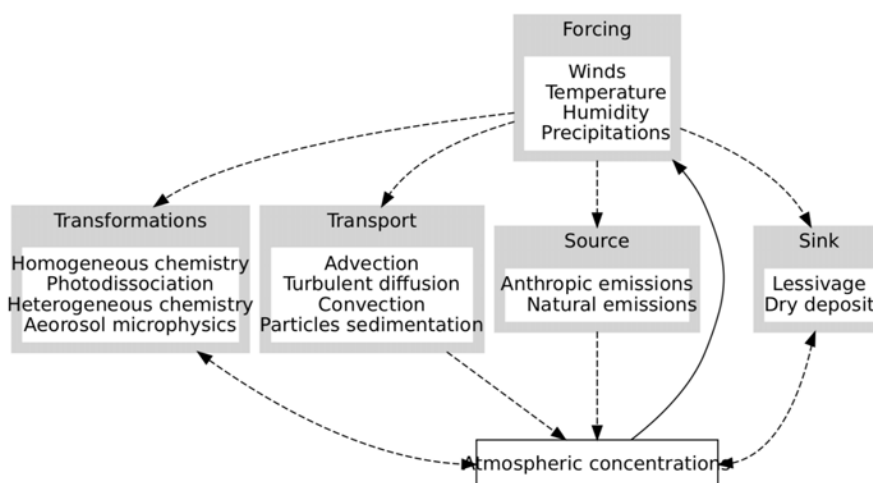


FIGURE 2 – Représentation schématique des différents processus impliqués dans l'évolution des concentrations chimiques (gaz ou particules) représenté dans un modèle de chimie transport (Praga [2015]).

depuis la surface jusqu'à la stratosphère sur tout le globe. Il peut aussi décrire la composition atmosphérique à plus fine échelle sur des domaines régionaux, imbriqués dans le domaine global. Ainsi, MOCAGE offre une panoplie d'utilisations scientifiques allant de l'étude de qualité de l'air (e.g. Martet et al. [2009]), l'assimilation de observations pour différentes espèces chimiques (e.g. Massart et al. [2009], Emili et al. [2014], Peiro et al. [2018]), les échanges entre la stratosphère et la troposphère (El Amraoui et al. [2010], Barré et al. [2014]) jusqu'à l'impact du climat sur la chimie atmosphérique (e.g. Lamarque et al. [2013]; Morgenstern et al. [2017]; Teyssède et al. [2007b]). MOCAGE est utilisé quotidiennement depuis 2005 pour alimenter Prev'Air, la plate-forme française de prévision de la qualité de l'air (<http://www2.prevoir.org/>) qui propose des prévisions quotidiennes des concentrations de différents polluants. Il participe également à la prévision opérationnelle d'ensemble des modèles de qualité de l'air sur l'Europe de la plate-forme *Copernicus Atmosphere Monitoring Service* (CAMS) (Marécal et al. [2015], <http://www.regional.atmosphere.copernicus.eu>).

2.2.2 Résolution spatiale

- Résolution horizontale

Comme nous l'avons évoqué précédemment, MOCAGE est un modèle multi-échelles. Il permet de suivre l'évolution des composants chimiques modélisés sur le domaine global ainsi que sur des domaines régionaux. En ce qui concerne la résolution horizontale, le modèle utilise une grille de longitude-latitude régulière. Cette résolution peut aller de 2° de longitude par 2° de latitude jusqu'à 0.5° par 0.5° pour le domaine globale, et de 0.5°

par 0.5° jusqu'à 0.1° par 0.1° pour les différents domaines régionaux. Pour ce travail, nous avons utilisé dans la première partie (assimilation de l'ozone tout seul, Chapitre 5) la résolution de $2^\circ \times 2^\circ$ puis $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ dans la deuxième partie (assimilation de l'ozone et des aérosols, Chapitre 6). En effet, les poussières sont émises sur des régions bien précises (déserts) et le suivi de leur évolution spatiale et temporelles sur ces régions requiert l'utilisation d'une résolution élevée. En outre, pour tirer profit des observations IASI sur ces régions il est nécessaire d'utiliser le plus grand nombre de pixels possible. Lorsque la résolution est élevée, le nombre de pixels rejetés par le pré-traitement est réduit.

- *Résolution verticale*

Sur la verticale, MOCAGE offre deux possibilités de résolution : 60 et 47 niveaux verticaux avec un toit différent pour chaque configuration. La coordonnée adoptée dans MOCAGE est la coordonnée sigma-pression. Le système de coordonnée hybride permet au niveaux verticaux de suivre le relief au sol et de suivre les isobares en s'éloignant de la surface. La pression P_η pour un niveau η est calculée selon la formule suivante :

$$P_\eta = f_\eta \cdot P_0 + g_\eta \cdot P_s$$

où P_s est la pression à la surface, P_0 une pression de référence, f_η et g_η sont des coefficients fixes dans le temps.

Dans notre travail, nous avons utilisé la version de 60 niveaux comme le montre la figure 3.

2.2.3 Transport, forçage météorologique et conditions initiales :

- *Transport*

Le transport des composants chimiques dans MOCAGE est calculé en résolvant les schémas numériques liés aux différents mécanismes qui interviennent. Ces mécanismes peuvent être classés en deux familles : le transport de grande échelle et le transport sous maille. Le premier revient à résoudre un problème d'advection. Le deuxième correspond à la convection et la diffusion. Dans cette partie nous aborderons dans un premier temps le transport à grande échelle, et nous mettrons l'accent par la suite sur la convection et la diffusion.

- *Transport de grande échelle*

Le transport de grande échelle d'une espèce chimique est décrit selon l'équation d'advection suivante :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} C = 0 \quad (2.2.1)$$

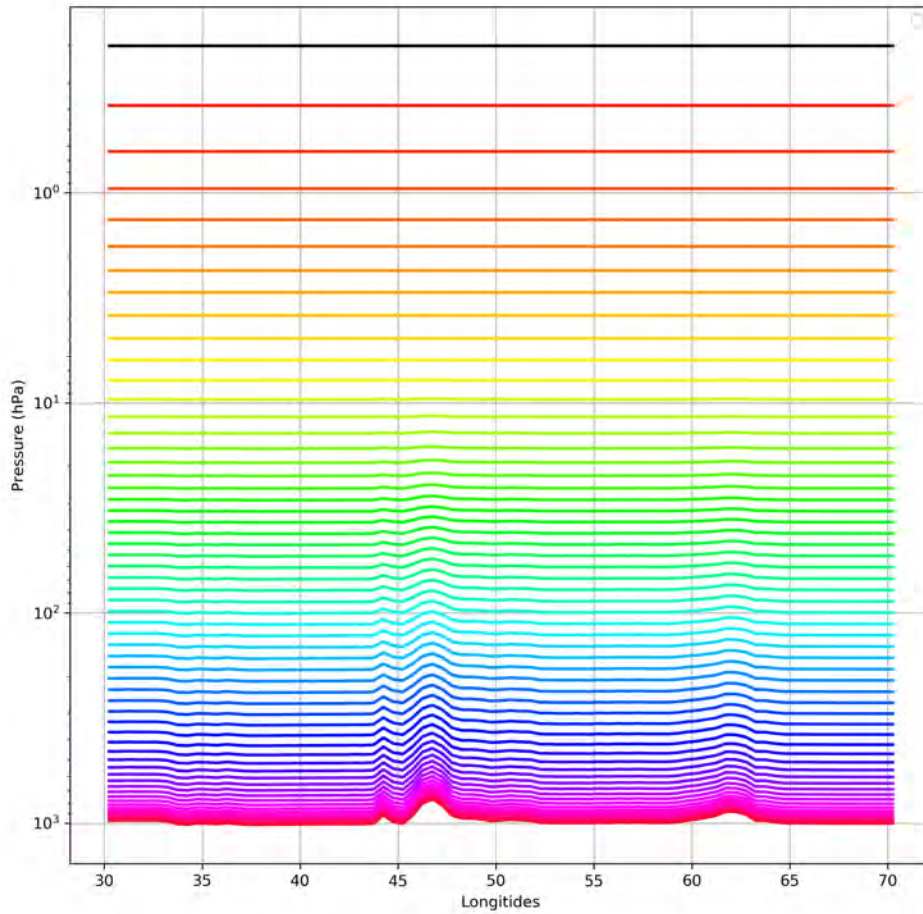


FIGURE 3 – Représentation de la configuration des niveaux verticaux utilisée dans ce travail.

où C est la concentration de l'espèce chimique transporté et \vec{u} le vecteur de la vitesse de transport.

Deux approches se présentent pour résoudre cet équation : eulérienne et lagrangienne Qaddouri et al. [2021]. La première consiste à fixer le référentiel et résoudre localement l'équation en discrétisant le domaine (par différence finis, éléments finis, etc.). Cette méthode présente la limitation de la condition de Courant Friedrich Levy (CFL). Cette condition impose que la distance parcourue au cours d'un pas de temps soit inférieure au pas de la grille : $u\Delta t < \Delta x$. De ce fait, une augmentation de résolution s'accompagne nécessairement d'une diminution du pas de temps. La deuxième adopte un référentiel

mobile qui suit la particule à étudier. Pour résoudre l'équation d'advection, cette approche suit les parcelles d'air au cours du temps. La condition CFL n'est pas une limite pour cette méthode. Néanmoins, elle est difficile à implémenter pour l'atmosphère dans sa globalité en raison de la complexité de suivre un grand nombre de particules non homogènes sur l'espace d'étude.

La dynamique d'advection dans MOCAGE est basée sur un schéma semi-Lagrangien (Wallis [2001]). Ce schéma combine deux approches de modélisation d'advection : eulérienne et lagrangienne. Ce schéma ne dépend pas de la condition CFL permettant ainsi de choisir des pas de temps relativement longs. En outre, en utilisant ce schéma, le coût de calcul n'est pas proportionnel au nombre d'espèces, en effet les rétro-trajectoires sont indépendantes de l'espèce considérée, il suffit de les estimer une seule fois à chaque itération.

- *Transport sous maille*

La convection et la diffusion ne sont pas explicitement décrites dans MOCAGE. Ils sont donc paramétrés.

La convection se caractérise par un fort mouvement ascendant à l'intérieur des nuages, un lent mouvement descendant autour d'eux et un entraînement et un déchargement d'air sur les côtés. Dans MOCAGE, le transport par convection est basé sur le schéma de Bechtold et al. [2001] qui est une paramétrisation unidimensionnelle déclenchée uniquement si des nuages convectifs sont détectés dans une colonne atmosphérique.

La diffusion domine l'axe vertical :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} (K_z \frac{\partial C}{\partial z})$$

où K_z est le coefficient de diffusion. La diffusion verticale est mise en œuvre suivant le paramétrage de Louis [1979]. Dans ce schéma, les coefficients de diffusion sont calculés en fonction de l'estimation de la stabilité de l'atmosphère à l'aide du nombre de Richardson.

- *Forçage*

MOCAGE est un modèle de chimie transport. Ainsi, il requiert les champs météorologiques tels que le vent, la pression, l'humidité et la température pour le calcul du transport et des paramétrisations physiques et chimiques. Ces champs sont fournis par les modèles de prévision numérique du temps ARPEGE (Action de Recherche Petite Echelle Grande Echelle) ou IFS (Integrated Forecast System) du CEPMMT (Centre Européen pour les Prévisions Météorologiques à Moyen Terme). Pour le domaine de la France, les champs météorologiques sont fournis par AROME (Application de la recherche aux opérations à Mesoéchelle), ARPEGE ou IFS. MOCAGE est alimenté par ces champs selon le pas de temps choisi.

- *Conditions initiales*

Les conditions initiales jouent un rôle important pour faire une prédiction précise. Deux cas de figures se présentent pour MOCAGE : utiliser une climatologie pour démarrer une

simulation ou un état issu d'une simulation précédente. Le modèle est exécuté suffisamment longtemps pour s'approcher de sa propre climatologie après avoir été démarré à partir d'autres conditions initiales. Cet état cohérent avec les émissions et puits sur la période d'étude est atteint après une période appelée "spin-up".

2.3 L'ozone et les poussières désertiques dans MOCAGE

Outre le transport des composants chimiques, MOCAGE modélise aussi les réactions chimiques dans l'atmosphère avec des schémas chimiques offrant la possibilité de les spécifier selon l'application. Nous aborderons dans cette partie les schémas utilisés pour l'ozone et pour les poussières désertiques.

2.3.1 L'ozone

L'ozone dans MOCAGE est transporté selon l'équation décrite dans la partie précédente 2.2.3 (transport à grand échelle et transport sous mail).

Pour le cycle de vie chimique, l'ozone est traité dans la stratosphère selon un schéma appelé *REactive Processes Ruling the Ozone BUDget in the Stratosphe* (REPROBUS, Lefevre et al. [1994]). Les réactions photochimiques incluent 72 réactions décrites dans le tableau 2 de Lefevre et al. [1994]. Les processus hétérogènes sont pris en compte en utilisant un schéma détaillé qui décrit la condensation, la sédimentation, et l'évaporation des nuages startosphériques polaires. Dans la troposphère, le *Regional Atmospheric Chemistry Mechanism* (RACM, Stockwell et al. [1997]) est utilisé. Il est conçu pour suivre l'évolution de l'espèce chimique modélisé dans la troposphère de la couche limite jusqu'à la haute troposphère. Ce mécanisme comprend 17 espèces inorganiques stables, 4 des intermédiaires inorganiques, 32 espèces organiques stables (dont 4 sont principalement d'origine biogénique) et 24 intermédiaires organiques. Il includ 237 réactions (voir le tableau 2 de Stockwell et al. [1997]). Pour les deux schémas REPROBUS et RACM, nous ne pourrons pas reprendre toutes les réactions explicités. Le lecteur est, donc, prié de consulter les deux papiers Lefevre et al. [1994] et Stockwell et al. [1997] pour plus de détails.

Les deux schémas décrits juste avant sont des schémas détaillés dont le coût de calcul est très élevé et pas bien adapté pour des simulations longues. Dans le cas de ces dernière, MOCAGE offre la possibilité d'utiliser un schéma linéaire appelé *CARIOLE* (Cariolle et al. [1986]) pour gagner en temps de calcul. L'équation de continuité de l'ozone du schéma CARIOLE correspond à une décomposition en série de Taylor au premier ordre autour de valeurs de référence du rapport de mélange de l'ozone, de la température et de la colonne d'ozone.

Les processus d'échange de surface, les émissions et le dépôt sont pris en compte et traités de manière externalisée (Michou and Peuch [2002]). Le dépôt sec en surface est basé essentiellement sur le schéma de Wesely [1989], décrit dans Michou et al. [2004]. Le dépôt humide (ou lessivage) est paramétré pour les nuages stratiformes et convectifs (Mari et al. [2000]).

Dans le travail présent, nous avons utilisé les deux premiers schémas dans les simu-

lations que nous avons effectuées sur une durée de un mois. Pour les simulation d’une année, nous avons adopté le dernier schéma en raison du temps de calcul réduit.

2.3.2 Les poussières désertiques

Les poussières désertiques sont transportés dans MOCAGE suivant les modalités de transport décrites dans la partie 1.2.3 : transport à grande échelle et transport sous maille. Dans cette partie nous mettrons l’accent sur les sources et les puits.

a. Émissions

Comme nous l’avons décrit précédemment, Les particules peuvent être émises dans l’atmosphère quand la vitesse de frottement du vent est supérieure à la vitesse de seuil d’érosion pour une taille de particule et des propriétés du sol données Zhao et al. [2006]. Les émissions pour les poussière désertiques sont implémentées dans MOCAGE comme décrit dans Sič et al. [2015]. Ils dépendent de l’intensité du vent et des caractéristiques de la surface. Dans MOCAGE, deux schémas d’émission ont été implémentés : le premier pour les déserts d’Asie (Laurent et al. [2006]) et le second pour les déserts africains et arabes (Marticorena et al. [1997]) . Cependant, ce schéma présente encore une source d’incertitude impactant les performances du modèle sur les régions des émissions comme le Sahara. L’estimation du flux horizontale G des poussières désertiques est calculée par la relation suivante :

$$G = EC \frac{\rho_a}{g} U^3 \int_{D_p} (1 + R)(1 - R^2) dS_{rel}(D_p) dD_p$$

où E est la fraction du sol érodée, C constante égale à 2.61, ρ_a la densité de l’air, g la constante de pesanteur, la taille des particules et U est la vitesse de frottement. R est le rapport entre la vitesse de frottement à partir duquel les poussières sont émises et la vitesse de frottement. Le flux vertical de poussières désertiques émis est proportionnel au flux horizontal selon la relation suivante :

$$F = \alpha G$$

où α est un coefficient qui dépend des caractéristiques du sol. Ces caractéristiques sont dérivées d’échantillons de sol et statistiquement analysé et extrapolé à tous les déserts connus dans le domaine.

La quantité totale émise est répartie sur des boîtes (appelées *bins* en anglais) suivant les modes d’émissions. On montre dans le tableau 1 les bins adoptés dans MOCAGE. Ces bins sont basés sur les modes d’émissions présenté dans Alfaro et al. [1998].

MOCAGE bins	Bin 1	Bin 2	Bin 3	Bin 4	Bin 5	Bin 6
Size (μm)	0.0001–0.01	0.01–0.1	0.1–1	1–2.5	2.5–10	10–50

TABLE 1 – Les bins adoptés dans MOCAGE pour les poussières désertiques.

b. Dépôts

Comme nous l'avons cité précédemment, les deux processus qui suppriment les poussières désertiques de l'atmosphère sont le dépôt humide et le dépôt sec. Ce dernier inclue la sédimentation gravitationnelle et le dépôt par interaction avec la surface. Dans cette partie nous aborderons séparément ces trois puits.

- Dépôts secs

Ce processus de dépôt est décrit comme le transport des particules vers la surface induit par les résistances (Nho-Kim et al. [2004]). Dans MOCAGE, le dépôt sec des poussières désertiques est basé sur les études de Slinn [1982]. Différents mécanismes contribuent à la vitesse de dépôt : la diffusion turbulente R_a (résistance aérodynamique) et le transport dans la couche quasi-laminaire influencé par la diffusion R_b . Les caractéristiques de la surface sont définies comme dans le modèle ARPEGE qui intègre les paramètres physiques des sols (rugosité, type de végétation) nécessaires à l'interaction particule-surface. La résistance de la surface est supposée nulle dans MOCAGE par simplification. La vitesse de dépôt sec est définie par la formule suivante (Nho-Kim et al. [2004]) :

$$V_{dd} = \frac{1}{R_a + R_b} + V_p$$

où R_a la résistance aérodynamique en sm^{-1} , R_b la résistance quasi-laminaire en sm^{-1} et V_p est le terme dû à la sédimentation des particules sous l'effet de leurs poids. Ce dernier sera détaillé dans la partie suivante.

La sédimentation gravitationnelle des poussières désertiques est implémentée dans MOCAGE comme décrit dans Pandis. and Seinfeld [1998]. La vitesse du dépôt V_p est basée sur la loi de Stokes et est fonction de la taille des particules, de la densité des particules et de la viscosité de l'air :

$$V_p = \frac{D_p^2 \rho_p g C_c}{18 \mu_a}$$

où D_p est le diamètre de l'aérosol ambiant (m), ρ_p est la densité des particules d'aérosol (Kg m^{-3}), g est la constante gravitationnelle (ms^{-2}), et C_c est le facteur de correction du glissement qui tient compte des effets non continus lorsque le diamètre des particules et le libre parcours moyen de l'air sont du même ordre de grandeur. C_c est défini comme Pandis. and Seinfeld [1998]. μ_a est la viscosité dynamique de l'air (*Pas*) calculée en fonction de la température par la loi de Sutherland White [1991].

- Dépôts humides

Les précipitations marquent la fin de résidence des poussières désertiques dans l'atmosphère par deux processus physique : dans les nuages *rainout* (Chameides [1986]) et lors des précipitations *washout* (Slinn [1982]). La fraction d'aérosols éliminés à chaque pas de temps par ces deux processus est calculée comme suit :

$$F = f_{prec}(1 - e^{-\mu \Delta t})$$

où F est la fraction d'aérosols éliminés, f_{prec} est la fraction de couverture nuageuse précipitante (le pourcentage de couverture nuageuse dans une grille où les précipitations se forment ou tombent); μ est le coefficient de balayage (s^{-1}) qui décrit un taux de perte de particules dû au balayage; Δt est le pas de temps du modèle pour le balayage (s). Le coefficient de balayage, μ , se compose du coefficient de balayage dans les nuages, μ_{ro} , et du coefficient de balayage sous les nuages dû aux précipitations, μ_{wo} , et dû aux chutes de neige, μ_{so} . Si le lecteur est intéressé par plus de détails sur le calculs de ces coefficients, il est conseillé de consulter la thèse de Bojan Sič (Sič et al. [2015]).

3 Observations

Après avoir abordé la modélisation comme première approche de surveillance de l’ozone et des poussières désertiques, les observations sont la deuxième approche que nous présentons dans ce manuscrit. Les satellites et les observations in situ comme les spectromètres au sol ou les ballons ont joué un rôle clé en capturant les principales caractéristiques des espèces chimiques surveillées. Les observations in situ fournissent depuis de nombreuses années une grande quantité de mesures utiles pour étudier la chimie et la dynamique de l’atmosphère. À partir de ces mesures, un ensemble de données à long terme a été constitué dans de nombreuses régions de la planète pour étudier les variations temporelles de l’ozone, la charge en aérosols et d’autres paramètres physiques importants.

À la fin des années 70, les instruments satellitaires ont commencé à fournir des informations très utiles concernant l’état de notre atmosphère et la variation de ses composés. Au cours des 20 dernières années, le nombre d’instruments satellitaires surveillant l’ozone et les aérosols dans l’atmosphère a considérablement augmenté. Les instruments au sol peuvent fournir des enregistrements de données longs et stables pour un emplacement spécifié. D’autre part, les instruments satellitaires sont le moyen le plus efficace pour obtenir une vision globale de l’atmosphère.

Dans cette section nous allons aborder la surveillance par les observations en nous focalisant sur la télédétection. Nous allons commencer par présenter quelques concepts de la télédétection. Ensuite nous aborderons le transfert radiatif et le modèle RTTOV utilisé dans ce travail. Puisque c’est l’instrument principal dans ce travail, IASI sera décrit en détail par la suite. Nous allons clôturer ce chapitre par aborder l’observation de l’ozone et des poussières désertiques notamment les différents instruments et données utilisés dans ce travail.

3.1 Télédétection

Dans cette partie nous définissons la télédétection par satellite et son principe de mesure. Une grande partie des concepts abordés ici sont détaillés dans Dirac [1981].

- *Définition*

La télédétection est une science et une technologie permettant d’extraire des informations sur un objet sans contact réel avec lui. Cela implique une variété de méthodes de détection, qui utilisent le rayonnement électromagnétique, la gravitation terrestre, l’intensité magnétique, les ondes sonores, etc. Dans notre travail, nous désignons par la télédétection atmosphérique la technologie qui surveille la l’atmosphère en captant et en analysant le rayonnement électromagnétique réfléchi et/ou émis depuis la surface jusqu’au sommet de l’atmosphère (ou des altitudes plus élevées) avec des capteurs embarqués sur des satellites (ou des avions). Une illustration de la télédétection effectuée par des capteurs embarqués à bord des satellites est présentée sur la figure 4 utilisant le rayonnement terrestre et du soleil.

La télédétection atmosphérique est divisée en deux grandes catégories : passive et

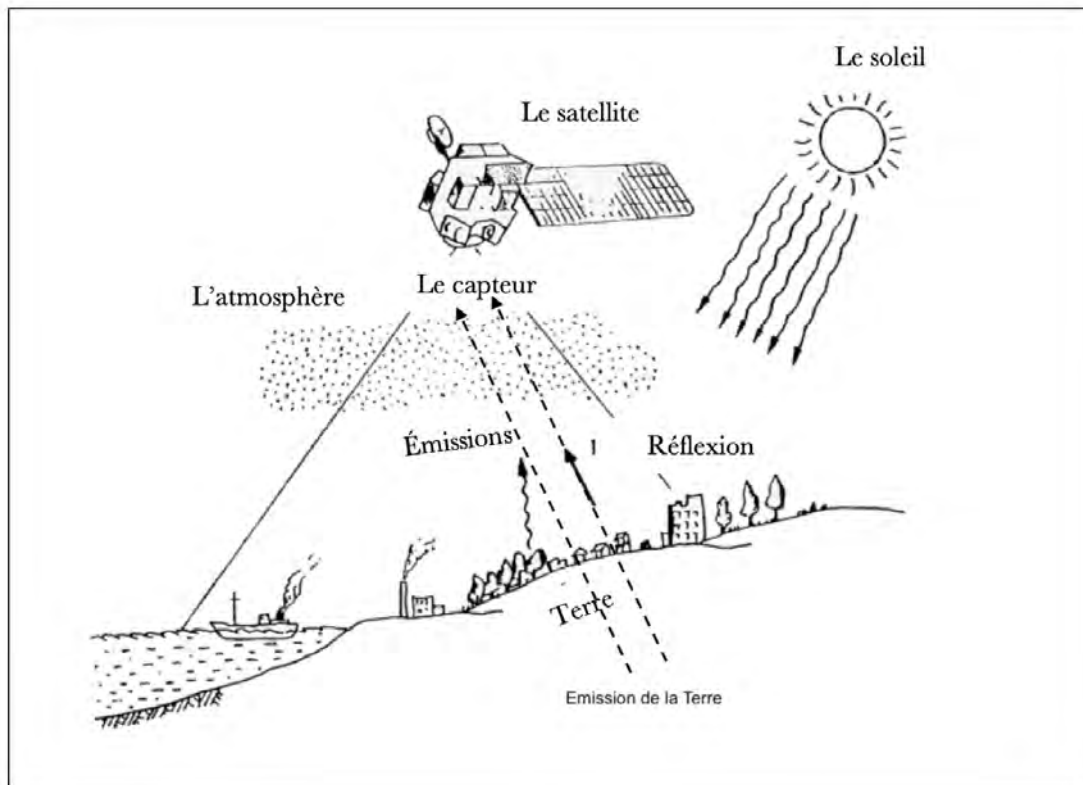


FIGURE 4 – Illustration de la collecte de données effectuée par télédétection par satellite (inspiré de Dirac [1981]).

active. Les capteurs à distance passifs détectent uniquement le rayonnement électromagnétique émanant naturellement de la surface de la terre et/ou de l'atmosphère et le rayonnement solaire réfléchi. Des capteurs actifs, tels qu'un radar laser, éclairent l'objet d'étude avec leur propre rayonnement produit artificiellement et enregistrent la composante réfléchie.

Comparée aux observations in situ, la télédétection par satellite offre plusieurs avantages distincts. Elle permet de collecter des données sur une vaste zone à un seul moment et d'acquérir des mesures d'une même zone de manière répétitive.

- *Principe de mesure*

Le rayonnement émanant de la terre, du soleil ou des composants de l'atmosphère, est une énergie qui se propage sous la forme d'ondes électromagnétiques. Nous appelons dans la suite de ce travail *luminance* l'intensité du rayonnement électromagnétique. Les caractéristiques du rayonnement électromagnétique varient dans la longueur d'onde. L'ensemble de la gamme de longueurs d'onde s'appelle le spectre électromagnétique. Différents noms sont attribués à différentes régions du spectre, qui partagent des caractéristiques communes.

téristiques similaires. La lumière visible n'est qu'une de ces bandes spectrales. Les ondes radio, les rayons infrarouges et les rayons ultraviolets sont d'autres régions du spectre. Dans ce travail, nous nous intéressons à la région infrarouge puisque c'est la source des luminances assimilées. Nous montrons sur la figure 5 une représentation du spectre électromagnétique dans le domaine de l'infrarouge. On note en particulier ses trois domaines : proche infrarouge, moyen infrarouge et lointain infrarouge. L'infrarouge moyen est connu sous le nom d'infrarouge thermique, qui est la région d'intérêt de ce travail.

Lorsque le rayonnement électromagnétique interagit avec l'atmosphère terrestre, les

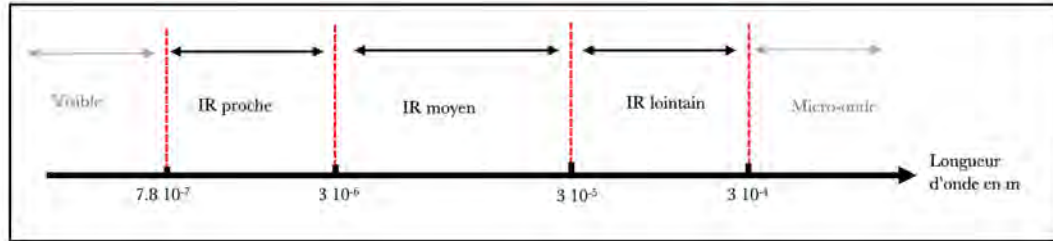


FIGURE 5 – Représentation du spectre électromagnétique dans le domaine infrarouge.

différentes bandes spectrales se comportent différemment. Le rayonnement à certaines longueurs d'onde traverse librement l'atmosphère, alors qu'il est limité à d'autres longueurs d'onde. Les régions du spectre où le rayonnement peut traverser l'atmosphère sont appelées fenêtres atmosphériques. La télédétection par satellite utilise le rayonnement électromagnétique traversant ces fenêtres. Données dans l'ordre des longueurs d'onde croissantes, les régions spectrales disponibles pour la télédétection satellitaire sont l'ultraviolet, le visible, l'infrarouge (en particulier l'infrarouge proche et thermique) et les micro-ondes. Nous détaillons dans les paragraphes suivants le principe de mesure l'infrarouge puisque c'est la source principale de l'information assimilée dans ce travail.

La télédétection infrarouge utilise des capteurs pour détecter le rayonnement infrarouge émis par des objets chauds tels que la surface de la Terre et les composants de l'atmosphère. Le rayonnement émis passe à travers l'atmosphère et interagit avec les espèces chimiques atmosphériques fournissant des signatures spectrales. Cette interaction peut être sous forme d'absorption, diffusion, ou/et émission. Cette signature est captée par l'instrument à bord du satellite. La télédétection infrarouge est utilisée pour plusieurs applications. Nous pouvons citer, par exemple, la mesure de la température de surface de la terre et de la mer et la surveillance de la composition chimique de l'atmosphère comme dans notre cas.

Nous discutons dans la partie suivante l'interaction entre le rayonnement traversant l'atmosphère avec la matière : le transfert radiatif.

3.2 Transfert radiatif

Le transfert radiatif atmosphérique est le moyen de décrire l'interaction entre le rayonnement traversant l'atmosphère et la matière (gaz, aérosols, gouttelettes nuageuses). Le rayonnement infrarouge thermique émis depuis la surface de la Terre est altéré après avoir traversé l'atmosphère terrestre, suivant trois processus clés : émission, absorption et diffusion par les constituants atmosphériques (correspondant à une redistribution de l'énergie radiative dans toutes les directions). Ces trois processus seront discutés dans cette partie. Nous aborderons aussi l'équation du transfert radiatif et le modèle de transfert radiatif RTTOV utilisé dans ce travail.

a - Interaction avec le rayonnement

Le rayonnant de la surface de la Terre ou de l'atmosphère appartient à la région infrarouge thermique du spectre électromagnétique. L'émission thermique de la Terre est présente le jour et la nuit, offrant l'avantage aux instruments de la télédétection infrarouges thermiques. Initialement proposée en 1900, la loi de Planck décrit le rayonnement électromagnétique émis par un corps noir en équilibre thermique à une température définie et est décrite par :

$$B_\nu(T) = \frac{2h\nu^3 c^2}{\exp\left(\frac{h\nu c}{kT}\right) - 1} \quad (3.2.1)$$

où $k = 1.38 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ représente la constante de Boltzmann et ν le nombre d'onde.

La quantité de rayonnement thermique émise à une longueur d'onde particulière ν par un objet chaud dépend de sa température T . Si la surface de la Terre est considérée comme un émetteur de corps noir, sa température apparente (appelée température de brillance B) et la luminance spectrale sont liées par l'équation du corps noir de Planck tracée dans la figure 6 pour la Terre et le soleil. Pour une surface à une température de brillance d'environ 300 K, la luminance spectrale culmine à une longueur d'onde d'environ $10 \mu\text{m}$.

Étant donné que les terres, les océans, et l'atmosphère ne sont pas des corps noirs parfaits, un facteur de correction, appelé *émissivité*, doit être utilisé. L'équation 3.2.1 est corrigé et l'énergie radiative effectivement émise par un milieu ou une composante atmosphérique à une température T , pour un nombre d'onde ν donné est :

$$E_\nu = \epsilon_\nu B_\nu(T) \quad (3.2.2)$$

où $B_\nu(T)$ est la température de brillance donnée dans la fonction de Planck du corps noir à la température du sol T , et ϵ_ν l'émissivité est comprise entre 0 et 1 (sans unité).

Une partie de la quantité du rayonnement émise par la surface terrestre et/ou l'atmosphère est absorbée par les composants de l'atmosphère. La portion du rayonnement absorbée par une épaisseur de couche de gaz uniforme ds dans l'atmosphère, peut être exprimée par la loi de Beer-Lambert qui régit la réduction de la luminance, notée L_ν , à un nombre d'onde ν . Selon cette loi l'atténuation de l'intensité de rayonnement dL_ν le long d'un trajet ds s'écrit comme suit :

$$dL_\nu = -Lk_e\rho(s)ds \quad (3.2.3)$$

où k_e est le coefficient d'extinction de masse m^2Kg^{-1} et $\rho(s)$ la densité du milieu m^2Kg^{-1} . Le coefficient d'extinction k_e est la somme du coefficient d'absorption k_a et du coefficient de diffusion k_d .

Pour décrire plus spécifiquement à quel point les composants de l'atmosphère affectent le passage de le rayonnement qui traverse le milieu ds pour une longueur d'onde donnée, nous utilisons une grandeur appelé *épaisseur optique* décrit comme suit :

$$\tau_\nu = \int_l^{l+dl} k_e\rho(s)ds \quad (3.2.4)$$

La transmittance est définie en fonction de l'épaisseur optique comme suit :

$$\Gamma_\nu = \exp(-\tau_\nu) \quad (3.2.5)$$

Dans notre travail nous intéressons, en plus de l'ozone, aux aérosols. Ces derniers ont un albédo de diffusion simple non nul dans le domaine spectral infrarouge. Une partie du rayonnement émis par la surface terrestre et les couches de l'atmosphère est donc diffusée. L'équation de transfert radiatif qui nous donne la luminance émergeant au niveau du satellite doit tenir compte de cette diffusion.

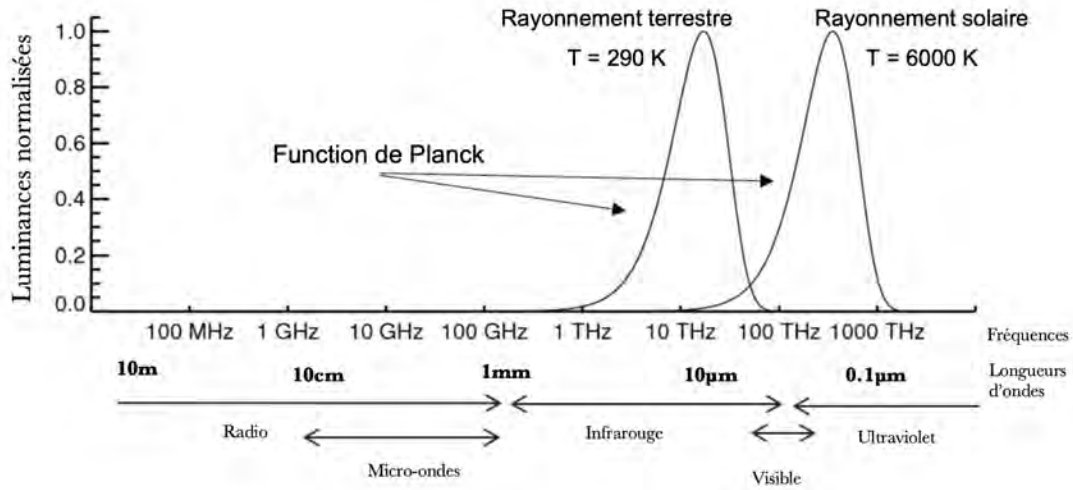


FIGURE 6 – Représentation de la fonction de Planck pour la Terre et pour le soleil (inspiré du cours de l'assimilation de données de l'ECMWF).

b - Équation de transfert radiatif :

Nous aborderons ici l'équation régissant le transfert du rayonnement de la Terre vers le satellite.

Lorsqu'un faisceau de rayonnement se déplace, il perd de l'énergie par absorption, gagne de l'énergie par émission et redistribue de l'énergie par diffusion. On note L_ν^\uparrow la luminance arrivée au satellite après avoir traversée l'atmosphère pour un nombre d'onde ν . Le bilan des processus ayant affectés cette luminance peuvent s'écrire comme suit :

$$L_\nu^\uparrow = L_{emis} + J_{diff} - L_{abs} - L_{diff} \quad (3.2.6)$$

le signe '-' désigne une perte et '+' un gain du rayonnement lors du trajet.

- L_{emis} : désigne la luminance émise. Il contient celle émise par la surface terrestre et l'émission atmosphérique ascendante.
- J_{diff} : désigne la luminance réfléchie vers le satellite par la surface ou par les composants de l'atmosphère.
- L_{abs} : désigne la perte par absorption.
- L_{diff} : désigne la perte par la diffusion.

Si nous considérons θ , représenté sur la figure 7, l'angle d'incidence de la luminance L_ν^\uparrow (définie juste avant), nous écrivons l'équation de transfert radiatif sous forme suivante :

$$L_\nu^\uparrow(\theta) = \varepsilon_\nu(\theta)B_\nu[T(z_0)] + \tau_\nu(z_0, \theta) + \int_{z_0}^{\infty} B_\nu[T(z)] \frac{\partial \tau_\nu(z, \theta)}{\partial z} + \Psi \quad (3.2.7)$$

où ε_ν est l'émissivité de la surface pour le nombre d'onde ν , z_0 l'altitude à la surface τ_ν la transmittance pour ν , z désigne l'altitude de la surface émettrice et $B_\nu[T(z)]$ représente la fonction de Planck. Ψ désigne les processus de diffusion.

L'équation 3.2.7 nous permet de simuler la luminance spectrale mesurée par le capteur satellitaire connaissant l'état de l'atmosphère. Ceci est appelé "problème direct". Cependant, pour avoir l'information sur les profils atmosphériques il faut résoudre le problème dans le sens inverse ("problème inverse"). Pour ce fait, des outils ont été développés pour réaliser des inversions des caractéristiques atmosphériques à partir des luminances observées en se basant sur l'équation du transfert radiatif. Dans le présent travail, nous avons utilisé les luminances comme source principale d'information pour notre système d'assimilation. Cependant nous avons utilisé aussi les produits restitués des données satellitaires.

Dans le processus de l'assimilation des luminances, la mesure satellitaire est comparée à des simulations de la luminance mesurée par le satellite en résolvant l'équation 3.2.7 à partir d'une estimation de l'état de l'atmosphère. L'état de l'atmosphère est fourni par le modèle de chimie transport, grâce à une interpolation spatiale et temporelle à l'endroit géographique de l'observation. L'ensemble de ces opérations qui permettent de passer de l'état du modèle aux luminances satellitaires sont généralement appelés *opérateur d'observation*. Cet opérateur s'appuie donc sur des modèles de transfert radiatif. Nous

présentons dans la partie qui suit le modèle de transfert radiatif utilisé dans ce travail, appelé 'RTTOV'.

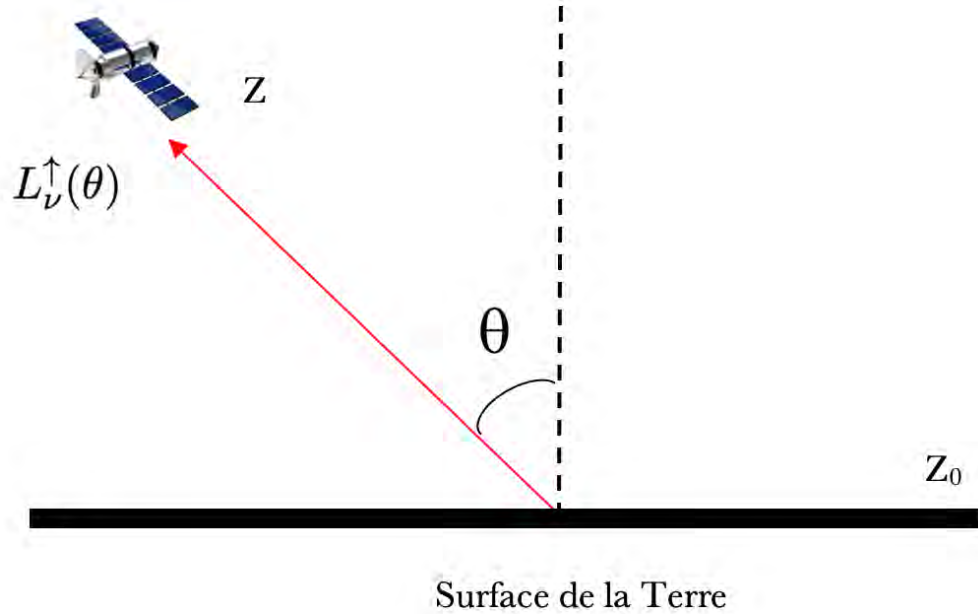


FIGURE 7 – Illustration de la géométrie d'observation du satellite.

c - Modèle de transfert radiatif RTTOV

Comme nous l'avons abordé dans la partie précédente, les capteurs à bord des satellites mesurent la luminance traversant l'atmosphère. Cette luminance est simulée par les modèles de transfert radiatif en fonction de l'état de l'atmosphère et des propriétés de la surface terrestre. Dans ce travail nous avons utilisé le modèle RTTOV (*Radiative Transfert for TOVS*, Saunders et al. [2018]). Nous présentons ici une brève description de ce modèle.

Le modèle RTTOV a été développé par Météo France, UK Met Office (le centre de météorologique de l'Angleterre), le CEPMMT (Centre Européen pour les Prévisions Météorologiques à Moyen Terme) et le DWD (le centre de météorologique de l'Allemagne). Ceci au sein de EUMETSAT (*EUropean Organisation for the Exploitation of METeoro-logical SATellites*). Il s'agit d'un modèle de transfert radiatif qui permet de simuler les luminances dans le visible, infrarouge et la région des micro-ondes à partir des profils atmosphériques.

Idéalement, pour simuler la luminance mesurée par le capteur à bord du satellite, il faut résoudre l'équation de transfert radiatif pour les différentes fréquences mesurées puis

réaliser une convolution avec la fonction de réponse spectrale de l'instrument pour obtenir la luminance de la bande souhaitée. Ceci nécessite une connaissance des différents processus impliqués et aussi très coûteux en ressources informatiques. Pour surmonter ce coût et simuler la luminance d'une manière rapide, RTTOV utilise une paramétrisation de l'épaisseur optique à l'aide d'une régression linéaire en fonction des variables appelés "prédicteurs". Si nous considérons que l'atmosphère est divisée en N couches homogènes délimitées par $N + 1$ niveaux de pression fixes. L'épaisseur optique totale du canal pour la couche j s'écrit comme suit :

$$\tau_{\nu,j} = \sum_{k=1}^M a_{j,k,\nu} X_{j,k} \quad (3.2.8)$$

où M est le nombre de prédicteurs, $a_{j,k,\nu}$ est le coefficient pour la couche j à un nombre d'onde ν , et $X_{j,k}$ est le prédicteur dépendant du profil atmosphérique.

Les coefficients $a_{j,k,\nu}$ sont obtenus par des régressions effectuées par de modèle **raie par raie**. Ces modèles discrétisent le spectre observé d'une manière très fine et la transmittance τ_{ν} est calculée pour chacune de ces raies. Les coefficient obtenus sont utilisés dans RTTOV.

Pour effectuer une simulation RTTOV, il est nécessaire de préciser des caractéristiques de l'atmosphère et de la surface ainsi que des informations relative à la géométrie de l'instrument utilisé. Dans les différentes parties de ce travail, les profils verticaux de la température, de la pression et de la vapeur d'eau sont issus des prévisions opérationnels du modèle IFS (Integrated Forecast System) du CEPMMT. La température de surface est issue aussi des prévisions de IFS. Pour l'émissivité de surface, les atlas TIR (Borbas and Ruston [2010]) sont utilisés sur terre et les sorties du modèle ISEM (Infrared Surface Emissivity Model) sont utilisées sur Mer. Pour les gaz trace, à l'exception de l'ozone qui est modélisé par MOCAGE, tous les autres sont issus de la climatologie de RTTOV. Sur la figure 8, nous montrons une illustration des différents profils fournis à RTTOV dans notre travail.

3.3 L'instrument IASI

IASI a été développé par le Centre National d'Etudes Spatiales (CNES) en coopération avec EUMETSAT, vole à bord du satellite météorologique européen Metop. Le premier instrument IASI a été lancé à bord du satellite en orbite polaire Metop-A en 2006, suivi d'un deuxième et d'un troisième instruments similaires sur Metop-B et Metop-C fin 2012 et 2018 respectivement. Il est à noter que nous utilisons dans ce travail les données issu de IASI-A puisque il était le seul à couvrir la période d'étude (2010).

- *Conception instrumentale et orbite*

IASI est conçu pour mesurer le spectre émis par le système Terre-atmosphère dans le domaine de l'infrarouge thermique, en utilisant la géométrie du nadir (en observant la Terre en pointant l'instrument vers son centre). Les mesures sont effectuées depuis l'orbite polaire parcourue par MetOp, à une altitude d'environ 817 km. Le satellite est

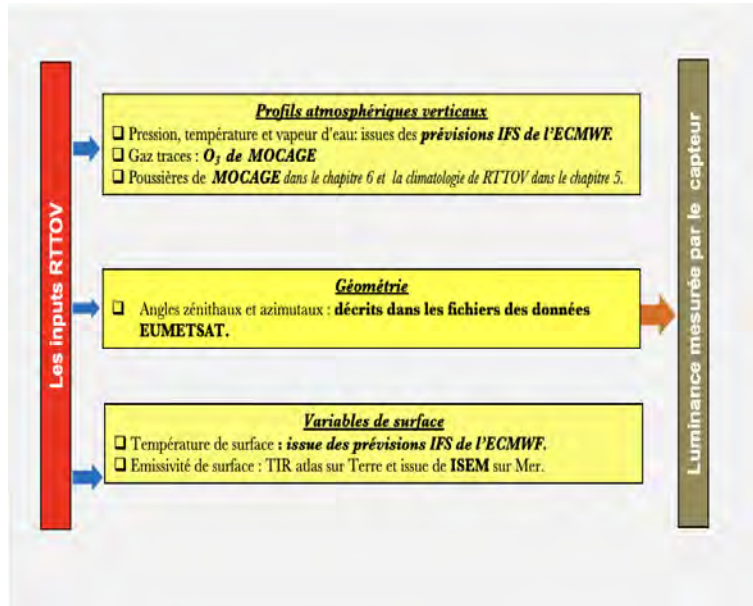


FIGURE 8 – Représentation des différentes entrées fournies à RTTOV.

héliosynchrone avec une inclinaison de 98.7° par rapport à l'équateur, et le passage du satellite est à environ 09h30 heure locale le matin (et 21h30 le soir). Le temps pour terminer une orbite est d'environ 101 minutes, ce qui implique que MetOp effectue un peu plus de 14 orbites par jour.

- *Couverture horizontale*

Comme présenté sur la figure 9, IASI observe la Terre jusqu'à un angle de 48° de part et d'autre de la trajectoire du satellite. Cela correspond à 2×15 positions de rétroviseurs et à une fauchée d'environ 2×1100 km. Chaque champ de vision instantané ($50 \text{ km} \times 50 \text{ km}$ au nadir) est composé de 2×2 pixels circulaires, correspondant chacun à une empreinte au sol de 12 km de diamètre au nadir (cet empreinte n'est pas représentée sur la figure 9).

- *Domaine spectral*

L'instrument utilise plusieurs détecteurs pour couvrir entièrement la gamme spectrale qui s'étend de 645 à 2760 cm^{-1} (15.5 à $3.62 \mu\text{m}$). La gamme spectrale a été choisie pour inclure les caractéristiques d'absorption forte de la bande d'absorption du CO_2 autour de $15 \mu\text{m}$ (utilisée pour les restitutions de profil de température), la bande de l'ozone $9,6 \mu\text{m}$, la bande d'absorption forte de la vapeur d'eau et jusqu'à la bande d'absorption CH_4 . Nous présentons sur la figure 10 le spectre IASI indiquant la bande utilisé pour cette étude avec un rectangle rouge.

- *Acquisition de données*

La mission IASI délivre environ 1 300 000 spectres par jour. L'acquisition d'un balayage transversal complet de IASI, y compris l'étalonnage embarqué, prend 8 secondes. Le traitement embarqué permet de réduire le débit de 45 Mégabits par seconde à 1.5 Mégabits par seconde des spectres. Ces spectres descendent du satellite au sol en temps quasi réel (environ 3 h après l'acquisition).

Les produits sont distribués de manière opérationnelle via le système de distribution de données d'EUMETSAT (EumetCast). EumetCast utilise les services d'un opérateur satellite et d'un fournisseur de télécommunications pour distribuer les fichiers de données à un large public situé dans une zone de couverture géographique qui comprend la majeure partie de l'Europe et certains endroits en Afrique. EumetCast distribue des données de luminances de niveau 1C, utilisées dans ce travail, depuis juin 2007, des produits géophysiques de niveau 2 tels que la température, les profils de vapeur d'eau, la surface et les propriétés des nuages depuis septembre 2007, ainsi que des colonnes totales et partielles pour les gaz traces depuis mars 2008.

- *Niveaux de données*

Les données satellitaires sont classées par niveaux de catégories selon les traitements qui ont été effectués. Le **niveau 0** représente des données sous leur forme brute. Les spectres sont transformés après la transformée de Fourier inverse en spectres calibrés. Ils sont ensuite envoyés au centre d'EUMETSAT. Des corrections sont appliquées par la suite sur ces spectres pour donner les données de **niveau 1a**. Les spectres du niveau 1a sont rééchantillonnés avec une longueur d'onde constante (0.25 cm^{-1}) et ils sont interpolés sur une nouvelle grille spectrale pour donner des données appelées de **niveau 1b**. Ces derniers sont apodisées pour donner des luminances **niveau 1c** qui sont utilisées dans ce travail. Des procédures de restitution peuvent être appliquées aux luminances pour obtenir des produits de **niveau 2** sous forme de profil atmosphérique tels que la température et l'ozone.

Pour plus de détails sur la mission IASI le lecteur est prié de consulter la description de Clerbaux et al. [2009] et de visiter le site de l'instrument <https://iasi.cnes.fr/fr>.

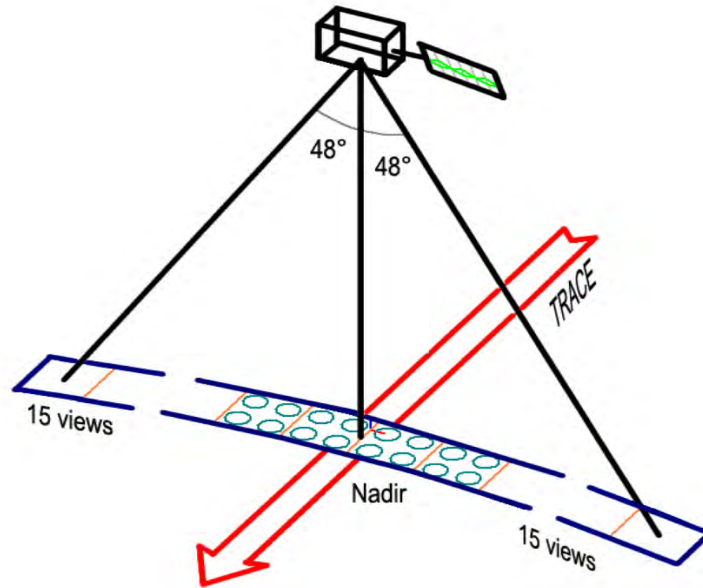


FIGURE 9 – Représentation du champ de vision de IASI (source : Clerbaux et al. [2009]).

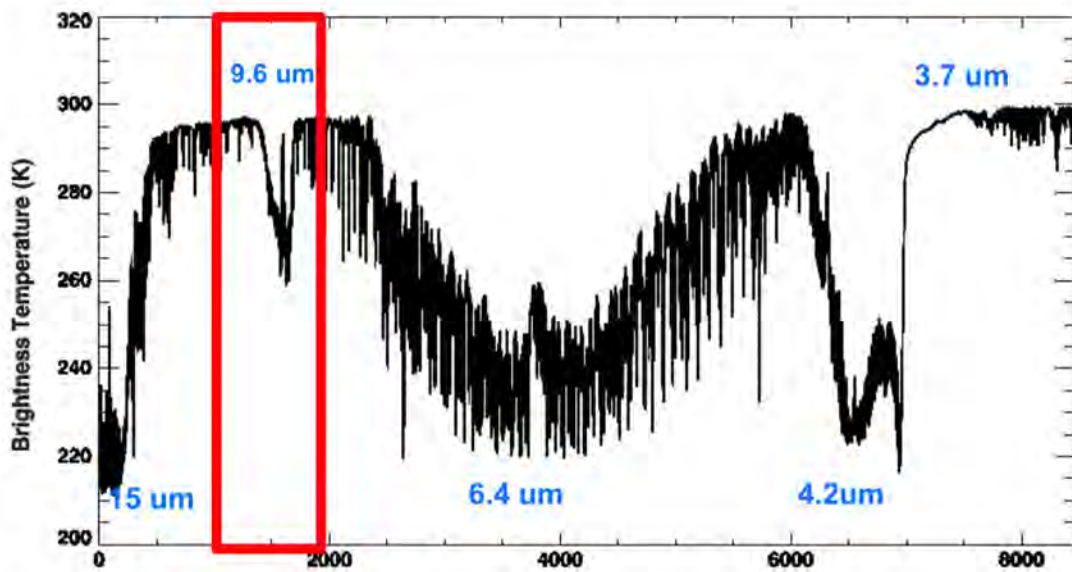


FIGURE 10 – Exemple de spectre IASI (en unités de température de brillance) montrant (en rouge) la gamme spectrale utilisée dans ce travail.

3.4 Observations utilisés dans ce travail

Dans cette partie, nous discuterons l'observation de l'ozone et des poussières désertiques et nous aborderons les différents instruments (données) utilisés dans ce travail.

a. Ozone

Les quantités d’ozone sont traditionnellement mesurées par des instruments insitu, qui ont fourni des observations à long terme et précises. Ces mesures s’effectuent avec des capteurs sur le sol ou avec des ballons lancés depuis le sol dans l’atmosphère : les sondes d’ozone. Cette dernière fournit des observations de l’ozone troposphérique et stratosphérique à haute résolution verticale. Les mesures insitu peuvent s’effectuer aussi par des instruments à bord des aéronefs. A titre d’exemple, le programme européen de recherche pour les observations globales de la composition atmosphérique à partir d’avions commerciaux (IAGOS, <https://www.iagos.org>) est utilisé depuis plus d’une décennie. Cependant, généralement la répartition géographique des observations insitu est clairsemée et elles ne sont pas très fréquentes dans le temps. Cette limitation peut être surmontée par l’utilisation de mesures satellitaires, qui, depuis la fin des années 1970, fournissent des enregistrements de données d’ozone continus dans l’espace et dans le temps. Les mesures verticales de l’ozone à partir d’instruments spatiaux ultraviolets (UV) ont commencé avec les instruments *Solar Backscatter UltraViolet* (SBUV) à partir de 1970 sur différents satellites fournissant une mesure du profil vertical de l’ozone (e.g. Bhartia et al. [2013]) et *Total Ozone Mapping Spectrometer* lancé en 1978 (TOMS). Plus tard, des instruments satellitaires avec une résolution plus élevée et une couverture spectrale importante ont été lancés, par exemple *Global Ozone Monitoring Experiment* (GOME) à bord d’ERS-2 en 1995 (Burrows et al. [1999]), *SCanning Imaging Absorption spectrometer for Atmospheric CHARtographY* (SCIAMACHY) à bord d’Envisat en 2002 (Bovensmann et al. [1999]), *Ozone Monitoring Instrument* (OMI) à bord d’Aura en 2004 (Levelt et al. [2006]) et *Global Ozone Monitoring Experiment 2* (GOME-2) sur Metop-A/B en 2006/2012 (Munro et al. [2016]). Les instruments TOMS, GOME, et OMI mesurent la colonne totale par observation au nadir. Les observations issues du micro-onde, le visible et l’ultraviolet sont limités au jour. L’utilisation de l’infrarouge a permis une observation continue (jour et nuit). Les premières mesures dans l’IR thermique ont été initiées en 1978 avec le sondeur TOVS (*Tiros Operational Vertical Sounder*). Puis, le *Atmospheric Infrared Sounder* (AIRS) en 2003 et *Infrared Atmospheric Sounding Interferometer* (IASI) en 2006. IASI, OMI et MLS seront décrits en détail dans la suite puisqu’ils sont utilisés dans ce travail.

À partir de l’instrument GOME, des profils verticaux d’ozone de la troposphère jusqu’à la stratosphère supérieure ont été restitués à l’aide de spectres continus hautement résolus dans l’UV (e.g. Hasekamp and Landgraf [2001]). L’accent a été aussi mis sur l’amélioration de l’ozone troposphérique (e.g. Liu et al. [2005]). Les profils d’ozone ont également été restitués de l’instrument successeur GOME-2 et utilisés pour générer des séries temporelles à partir de plusieurs instruments (e.g. van Peet et al. [2014]). Des restitutions des profils dans la stratosphère et l’ozone troposphérique avec une précision allant jusqu’à 10 % ont été menées (e.g. Liu et al. [2010]). Grâce à la validation avec des capteurs d’ozone et des mesures lidar, des résultats similaires ont également été obtenus pour les mesures UV de TROPOMI sur le précurseur Sentinel-5 (S5P) (e.g. Mettig et al. [2021]). Alors que le défi majeur pour les profils des mesures UV est la faible résolution verticale dans les altitudes inférieures à 20 km, les profils d’ozone des mesures IR fournissent plus d’informations sur la troposphère mais ne restituent généralement

pas l’ozone au dessus d’environ 30 km (Bowman et al. [2002]). Les restitutions du profil d’ozone, avec une précision globale de 10 % et une précision de 20 % jusqu’à 35 km sont possibles en utilisant les mesures CrIS IR (e.g. Nalli et al. [2018]).

La combinaison des mesures spectrales UV et IR de différents instruments améliore le contenu informatif des restitutions des profils d’ozone en fournissant une haute résolution verticale dans la stratosphère (jusqu’à 55 km) déterminée par la région UV et une haute résolution verticale dans la troposphère à partir de l’utilisation de la gamme IR. Le concept d’utilisation d’observations UV et TIR combinées pour améliorer la restitution des profils verticaux de l’ozone a été discuté pour la première fois dans le concept de mission géostationnaire d’exploration de la pollution troposphérique (GeoTROPE) (Burrows et al. [2004]). Ensuite, l’amélioration de l’ozone troposphérique a été montrée pour plusieurs combinaisons d’instruments : OMI et TES (e.g. Worden et al. [2007]), GOME-2 et IASI (Costantino et al. [2017]), et OMI avec AIRS (e.g. Fu et al. [2018]).

- *L’instrument IASI*

Comme nous l’avons abordé, IASI a été utilisé pour restituer les concentrations de l’ozone. Dans ce travail, nous avons utilisé principalement les luminances. Néanmoins les produits de niveaux 2 ont été utilisés dans des analyses d’ozone antérieures du CER-FACS, qui ont été reprises ici pour une inter-comparaison dans le Chapitre 5.

IASI a fourni des mesures d’O₃ pour une large gamme d’applications notamment la composition atmosphérique (e.g. Boynard et al. [2009] ; Wespes et al. [2016]) et la qualité de l’air (e.g. Dufour et al. [2015], Eremenko et al. [2008], Safieddine et al. [2014]). Ils ont été utilisé pour corriger les modèles de chimie transport depuis plusieurs années (e.g. Massart et al. [2009], Emili et al. [2014] et Peiro et al. [2018]) pour l’ozone. Récemment des luminances ont été assimilées directement, pour la première fois, dans notre système (Emili et al. [2019]).

Les luminances de la bande spectrale entre 980-1100 cm⁻¹ ont été utilisées dans ce travail. Cette sélection des canaux est héritée des travaux de restitutions IASI de O₃ (Dufour et al. [2012]) et utilisée dans Emili et al. [2019]. Les données ont été téléchargées depuis le portail de données EUMETSAT (<https://eoportal.eumetsat.int>) au format NetCDF. Les fichiers de données contiennent également les valeurs du masque nuageux, obtenues à partir des mesures du radiomètre avancé à très haute résolution AVHRR (*Advanced Very High Resolution Radiometer*), également à bord de Metop-A. Ce masque a été utilisé pour rejeter les pixels entachés par les nuages. Seuls les pixels avec une fraction nuageuse inférieure ou égale à 1 % ont été conservés. Un rejet dynamique des observations avec un seuil de 12 % basé sur les écarts relatifs entre les valeurs simulées et mesurées par rapport aux valeurs simulées a été considéré. Étant donné que la résolution spatiale de MOCAGE est plus grossière que la taille des pixels, le nombre de pixels au sol a été réduit en fonction de la grille utilisée (2°x2° puis 0.5° x 0.5°) en ne conservant que la première observation qui tombe dans une case de la grille. Dans la partie utilisant les luminances IASI pour l’ozone (Chapitre 5) les pixels signalant des poussières désertiques sont rejetés et conservé dans le chapitre des aérosols (Chapitre 6). Le critère de détection des poussières désertiques sera discuté plus tard dans le chapitre 6.

- *L'instrument OMI*

L'*Ozone Monitoring Instrument* (OMI) vole sur le satellite Aura de la NASA (lancé le 15 juillet 2004). L'instrument OMI est un instrument à vision nadir qui mesure le rayonnement solaire rétrodiffusé par l'atmosphère et la surface de la Terre sur toute la plage de longueurs d'onde de 270 à 500 nm avec une résolution spectrale d'environ 0.5 nm. L'angle de vision de 114° du télescope correspond à une fauchée de 2600 km de large en surface, ce qui permet des mesures avec une couverture mondiale quotidienne. La lumière entrant dans le télescope est divisée en deux canaux : le canal UV (gamme de longueur d'onde 270 - 380 nm) et le canal VIS (gamme de longueur d'onde 350 - 500 nm). En mode global, la taille du pixel OMI est de $13 \text{ km} \times 24 \text{ km}$ au nadir.

Les données de la colonne d'ozone totale OMI ont été comparées aux enregistrements de la colonne d'ozone totale par le réseau d'observation terrestre Dobson et Brewer (Balis et al. [2007]). Un biais moyen global de 0,8 % a été trouvé. Lorsque l'on considère les moyennes des stations individuelles, les biais sont à moins de 3%. Aucune dépendance significative de l'angle zénithal solaire, de la fraction nuageuse ou de la réflectivité sur la colonne d'ozone totale n'a été trouvée.

Dans ce travail, la colonne totale issue de l'algorithme OMI-TOMS version 8 (Bhartia [2002]), est utilisée pour valider les résultats des expériences d'assimilation.

- *L'instrument MLS*

Le *Microwave Limb Sounder* (MLS) vole à bord du satellite Aura sur une orbite polaire avec un enregistrement continu qui commence en juillet 2004. Le satellite Aura a un temps de traversée équatoriale de 13h45 (temps de traversée solaire équatoriale locale de 13h45, en ascendant) avec environ 15 orbites par jour en moyenne. MLS mesure les émissions thermiques au niveau du limbe atmosphérique et fournit des profils verticaux de plusieurs constituants atmosphériques de la haute stratosphère jusqu'à la haute troposphère (Waters et al. [2006]). MLS permet la restitution d'environ 3500 profils par jour avec une couverture spatiale presque mondiale entre 82°S et 82°N .

Plusieurs études ont bénéficié des produits MLS, notamment les profils d'ozone dans les expériences d'assimilation (Emili et al. [2014], Massart et al. [2009]), grâce à son faible biais dans la stratosphère ($< 5\%$) (Froidevaux et al. [2008]).

Une étude de validation de l'ozone Aura MLS a été menée par Jiang et al. [2007] dans la haute troposphère et la basse stratosphère à l'aide de sondes d'ozone globales et de mesures lidar au sol. Dans la haute troposphère et la basse stratosphère, l'ozone MLS est généralement biaisé aux latitudes moyennes à élevées, par rapport aux sondes d'ozone, mais à moins de 20%, en moyenne, sous les tropiques. Dans la stratosphère moyenne, MLS se situe à moins de 7% des mesures globales des sondes d'ozone. Moyennées sur chaque station des sondes d'ozone, les comparaisons de la colonne d'ozone avec MLS montrent un accord dans la limite de 10% et il n'y a pas de biais significatif à l'échelle globale.

Dans ce travail, nous avons utilisé les profils d'ozone restitués de MLS (version V4.2) comme données indépendantes pour valider nos résultats. Les données ont été téléchargées à partir du portail *Web Goddard Earth Sciences Data and Information Services*

Center (GES DISC) (<https://disc.gsfc.nasa.gov>)

a. Aérosols

Dans cette partie nous aborderons les deux familles d’observations des aérosols : in-situ et par télédétection. Nous aborderons ensuite les instruments (données) utilisés dans ce travail.

Les premières mesures d’aérosols étaient des mesures in-situ au sol. Ce type de mesures donne des informations très détaillées et précises sur leur composition chimique, leurs propriétés optiques, etc. Elles sont réalisées en collectant des aérosols, en les filtrant selon leur taille et en analysant l’échantillon représentatif collecté. Les aérosols échantillonnés peuvent être traités avec de nombreuses méthodes et instruments différents pour acquérir leurs propriétés. Cependant, comme pour l’ozone, les mesures in situ des aérosols sont limitées dans les lieux et dans le temps. Il est assez coûteux de construire un réseau étendu, exigeant un effort et des fonds continus afin d’acquérir des données pendant de longues périodes de temps.

Les mesures in situ de nos jours ne se limitent pas seulement aux mesures au sol. Les propriétés des aérosols ambiants peuvent être obtenues par instrument sur des ballons ou des avions. Ces vols ont généralement une bonne couverture horizontale et verticale, mais ils sont limités à de courtes périodes de temps lors de campagnes d’observation étendues. Dans ce travail, nous n’utilisons pas d’observations in-situ pour les aérosols.

L’observation des aérosols par télédétection peut se faire depuis le sol comme elle peut se faire depuis l’espace.

Depuis le sol, les aérosols peuvent être mesurés par des méthodes de télédétection active ou passive. Ces mesures, obtenues par des instruments tels que des photomètres ou des lidars, peuvent fournir une variété de propriétés d’aérosol. Ils peuvent être effectués plusieurs fois par jour et donnent une information détaillée sur les aérosols à l’échelle locale.

Pour la télédétection passive, nous traiterons le réseau AERONET (AErosol RObotic NETwork, Holben et al. [1998]). Ce sont des mesures réalisées par les photomètres solaires, sensibles à la réduction du rayonnement solaire atteignant le sol. Ce réseau contient quelques centaines de stations, mesurant l’épaisseur optique AOD , à l’aide de photomètres solaires. Ils ont fourni déjà des données recueillies assez longtemps pour des études climatologiques sur les aérosols à l’échelle locale. Les AERONET couvrent différentes longueurs d’onde et, en plus des mesures AOD , fournissent d’autres propriétés des aérosols comme les indices de réfraction et la distribution des tailles. Cependant, la couverture des mesures AERONET n’est pas suffisante en raison de la grande variabilité spatiale des aérosols. Outre AERONET, il existe d’autres réseaux au sol d’aérosols comme GAW (*the Global Atmosphere Watch*, Collaud et al. [2013]).

Concernant les mesures par télédétection active, nous trouvons les LIDAR (*Light Detection and Ranging* en anglais). C’est un système d’instruments utilisé pour le sondage atmosphérique. Avec un LIDAR, il est possible d’obtenir des profils atmosphériques d’aérosols. L’idée principale derrière cela est de transmettre un faisceau de lumière et de

détecter le rayonnement qui est renvoyé vers l'instrument. Le rayonnement reçu aura des signatures de l'air dans lequel il a voyagé et est analysé après la détection. Chaque système LIDAR est composé d'un émetteur, d'un récepteur et d'un détecteur. Les LIDARs utilisent des longueurs d'onde dans la partie visible du spectre, et le rayonnement dans les systèmes LIDAR est généré par des lasers. Là encore, les mesures sont limitées en termes de couverture spatiale et de fréquence d'observation.

Les instruments embarqués sur satellites viennent pour fournir une observation globale pour répondre à la forte variabilité spatio-temporelle des aérosols.

Les premiers produits aérosols opérationnels provenaient de AVHRR (*Advanced Very High Resolution Radiometer*) et TOMS (*Total Ozone Mapping Spectrometer*, Torres et al. [2002]) lancés à la fin des années 1970. Ces instruments n'étaient pas spécifiquement conçus pour la mission de mesure d'aérosols. Les instruments dédiés à la mesure des aérosols sont par exemple MISR (*Multiangle Imaging Spectro-Radiometer*, Kahn et al. [2005]), MODIS (*Moderate Resolution Imaging Spectrometer*, Remer et al. [2005]), POLDER (*Polarization and Directionality of the Earth's Reflectance*). MISR et MODIS sont tous deux capables de mesurer les aérosols au-dessus des océans, des terres et des surfaces hautement réfléchissantes.

MODIS est un instrument embarqués sur deux satellites héliosynchrones, Terra et Aqua, observant la Terre à plusieurs longueurs d'onde dans le visible et proche infrarouge. Les produits AOD de MODIS sont les observations d'aérosols les plus utilisées depuis l'espace (Leeuw et al. [2011]); au-dessus de l'océan, il peut séparer les particules fines et grossières. Les AOD sont restitués avec une erreur de $\pm 0,05 \pm 0,20\%$ AOD sur la terre (Chu et al. [2002]) et de $\pm 0,03 \pm 0,05\%$ AOD sur l'océan (Remer et al. [2005]).

Parmi les instruments de visualisation des limbes, on peut citer SCIAMACHY (*Scanning Imaging Absorption spectrometer for Atmospheric CHARTography*, Bovensmann et al. [1999]) qui a été utilisé pour la réflectance au sommet de l'atmosphère des aérosols (e.g. von Hoyningen-Huene et al. [2007]).

Dans notre travail, nous utilisons l'AOD fourni par MODIS et AERONET pour valider les résultats.

Les instruments cités utilisent le rayonnement solaire : UV-visible-procheIR (de 200 ηm à 4 μm). Il existe une autre voie d'observation qui utilise la Terre comme source de rayonnement. Le domaine utilisé dans ce cas est le domaine de l'infrarouge thermique de 3.5 à quelques dizaines de microns. Cette approche constitue l'observation utilisée dans ce travail. Un intérêt croissant a été accordé à l'infrarouge avec l'émergence d'instruments hyperspectraux comme AIRS et IASI.

En effet, à partir de la télédétection infrarouge, un ensemble cohérent de caractéristiques des aérosols peut être restitués simultanément comme l'épaisseur optique (e.g. Carboni et al. [2012], De Paepe and Dewitte [2009]), altitude moyenne (e.g. Pierangelo et al. [2004], Peyridieu et al. [2010]) et la taille des particule (e.g. Wainker et al. [2013]).

L'infrarouge constitue un domaine propice à l'observation des épisodes de poussière désertiques. En outre, cette approche offre une continuité de l'observation pendant la journée et la nuit contrairement aux instruments qui utilisent le soleil observant que la journée. La nouvelle génération de sondeurs infrarouges à haute résolution spectrale,

comme le sondeur infrarouge atmosphérique AIRS sur Aqua, ou l’interféromètre sondeur atmosphérique infrarouge IASI sur Metop, ont déjà montré des capacités prometteuses pour restituer différentes propriétés des aérosols de poussière telles que l’épaisseur optique de $10 \mu m$, l’altitude moyenne et la taille moyenne des particules en mode grossier (e.g. Pierangelo et al. [2005], Peyridieu et al. [2010], Klüser et al. [2011]).

Les premières approches conçues pour représenter la localisation des panaches des poussières au dessus des déserts arides clairs étaient basées sur des indicateurs dans l’UV à l’aide d’observations du TOMS (e.g. Prospero et al. [2002], Chiapello et al. [2005]), OMI, GOME, et GOME-2 (e.g. Torres et al. [2007]), ainsi que dans l’infrarouge thermique (TIR) en utilisant les observations de AVHRR et SEVIRI (Spinning Enhanced Visible and Infrared Imager). Les estimations quantitatives de la distribution horizontale des quantités des poussières en colonne sont généralement effectuées en termes d’épaisseur optique d’aérosol (AOD). L’AOD a été dérivée d’observations MODIS sur des scènes non désertiques basées sur des mesures visibles et proche-infrarouge à l’aide de la méthode Dark-Target (Remer et al. [2005]) ou sur des déserts et d’autres surfaces terrestres réfléchives (par exemple, des villes) dans la région spectrale bleue en utilisant l’approche Deep Blue (Sayer et al. [2013]). Les AOD liés à la poussière sont également généralement restitués dans les domaines spectraux de l’UV au proche infrarouge à l’aide d’observations provenant de OMI Torres et al. [2007], SeaWiFS (Sea-Viewing Wide Field-of-View Sensor) (e.g. Hsu et al. [2004]), POLDER (Polarisation et Directionnalité des Réflectances de la Terre) (Su et al. [2010]), MISR (Multi-angle Imaging Spectroradiometer) (Diner [2001]), et SEVIRI (e.g. Banks et al. [2013]). Des AOD associées à la distribution horizontale des panaches des poussières désertiques ont également été dérivées sur une base quotidienne en utilisant des mesures hyperspectrales TIR de AIRS (e.g. DeSouza-Machado et al. [2010]) et IASI (e.g. Vandembussche et al. [2013]). Ces observations infrarouges ont également été utilisées pour détecter les propriétés optiques et microphysiques de différents types d’aérosols (e.g. Clarisse et al. [2013]) ainsi que la taille effective des poussières grossières (Pierangelo et al. [2005]). La distribution verticale des aérosols dans l’atmosphère peut être obtenue à haute résolution spatiale grâce à la capacité de CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization), un lidar spatial pointant au nadir embarqué à bord du satellite CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations) depuis 2006 (e.g. Winker et al. [2007]). La distribution tridimensionnelle (3D) des aérosols a été restituée de CALIOP à des échelles saisonnières et inter-annuelles (e.g., Yu et al. [2010]). D’autre part, les sondeurs hyperspectraux passifs TIR ont également montré des compétences prometteuses pour restituer la distribution verticale des poussières. Les altitudes moyennes mensuelles des couches de poussière ont été extraites de AIRS (e.g. Pierangelo et al. [2004]) et IASI (e.g. Peyridieu et al. [2013]) au dessus de l’océan. Les observations quotidiennes de la distribution verticale des panaches de poussière sahariens ont également été restituées jusqu’à présent principalement au dessus de l’océan et pour une fraction limitée de pixels dans un ciel clair au dessus de la terre, à la fois en termes de hauteurs de couche supérieure d’AIRS (e.g. DeSouza-Machado et al. [2010]) et profils verticaux de concentration de poussière de l’IASI (e.g. Vandembussche et al. [2013]). Une approche permettant la

restitution de la distribution 3D des panaches de poussière sur toutes les surfaces (à la fois terrestres et océaniques) a été initiée par Cuesta et al. [2015].

De nombreuses études ont assimilé les produits restitués des mesures satellitaires pour corriger les modèles de chimie transport. Ces efforts ont principalement utilisés l'épaisseur optique comme produit. Par exemple, l'AOD a été utilisé par Zhang et al. [2008] dans le *Naval Research Laboratory* (NRL), par Liu et al. [2011] dans le système *Weather Research and Forecasting-Chemistry/Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport/Gridpoint Statistical Interpolation* (WRFChem/GOCART/GSI) du *National Center for Environmental Prediction* (NCEP), et par Benedetti et al. [2009] dans le système de prévision intégré (IFS) du Centre européen pour les prévisions météorologiques à moyen terme (ECMWF). Récemment, Sič et al. [2016] et ont assimilé l'AOD dans notre système durant la campagne TRAQA/ChArMEx (TRANsport à longue distance et Qualité de l'Air dans le bassin méditerranéen/*Chemistry AeRosol Mediterranean EXperiment*). Dans notre travail nous assimilons directement les luminance IASI, pour la première fois, pour corriger les poussières désertiques. Néanmoins, nous avons utilisé les produits AOD pour valider nos résultats. Nous introduirons ensuite les instruments (données) utilisés dans ce travail.

- *L'instrument IASI*

Plusieurs études ont utilisé IASI pour détecter et mesurer les poussières désertiques. Il a été utilisé pour restituer plusieurs propriétés des poussières telles que l'épaisseur optique (e.g. Peyridieu et al. [2013], Klüser et al. [2011]), des profils verticaux (e.g. Vandenbussche et al. [2013], Capelle et al. [2014], Cuesta et al. [2015], Capelle et al. [2018]), l'altitude et la taille des particules (Ventress et al. [2016]). Ces études ont utilisé des bandes spectrales contenant les canaux spectraux utilisés dans notre travail (sensibles aussi à l'ozone). Nous présentons le tableau 2 un exemple des différentes bandes utilisées dans la restitution des propriétés des poussières depuis IASI.

L'étude	La bande IASI utilisée
Ventress et al. [2016]	680–1200 cm^{-1}
Cuesta et al. [2015]	831–1183 cm^{-1}
Vandenbussche et al. [2013]	900–930 cm^{-1} et 1095–1125 cm^{-1}
Klüser et al. [2011]	830–1250 cm^{-1}

TABLE 2 – Exemple des différentes bandes utilisées dans la restitution des propriétés des poussières depuis IASI

Dans notre travail nous utilisons les luminances mesurées dans la bande 980–1100 cm^{-1} contenant les canaux utilisés dans les différentes études citées dans le tableau 2. La sensibilité de cette bande aux poussières désertiques a été montrée dans la figure 11 extraite de Vandenbussche et al. [2013].

- *L'instrument MODIS*

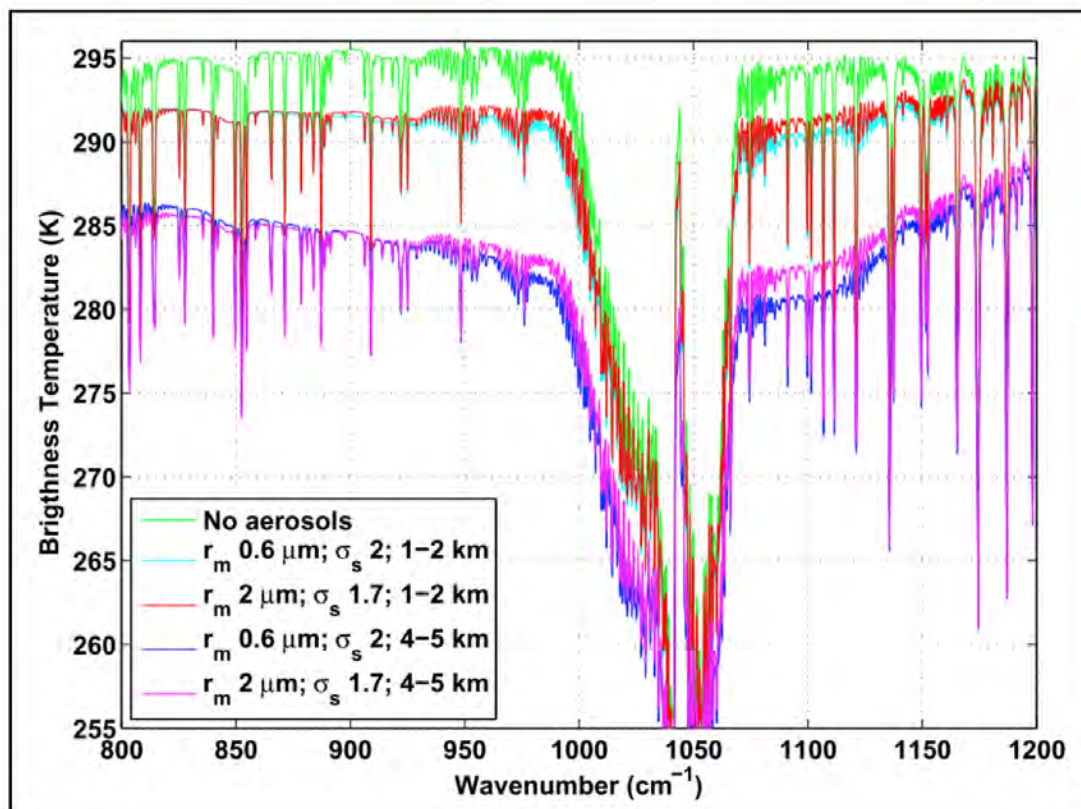


FIGURE 11 – La luminance qui serait observée par IASI pour deux distributions granulométriques associées à une couche d’aérosol à deux altitudes différentes. La modélisation directe correspondante en l’absence d’aérosols est également représentée (couleur verte).

L’instrument *MOderate-resolution Imaging Spectroradiometer* (MODIS) observe les aérosols atmosphériques à bord de Terra (depuis 2000) et Aqua (depuis 2002) à partir d’orbites héliosynchrones complémentaires. Il observe les aérosols atmosphériques et fournit les informations sur la distribution des aérosols sur la couverture mondiale à des résolutions horizontales de 10 et 3 km (sous forme d’épaisseur optique).

Le produit AOD MODIS C61 (utilisé dans ce travail) a été évalué en détail sur la Chine continentale dans diverses conditions en ce qui concerne la distribution spatiale, les saisons et la qualité de l’air pour la période 2010-2017 (Huang et al. [2019]). Cet évaluation a indiqué de bonnes performances du produit MODIS, avec un RMSE faible (0.23) par rapport aux mesures au sol (Huang et al. [2019]).

Dans notre travail, nous évaluons nos résultats d’AOD par l’AOD de MODIS, particulièrement le produit Deep Blue (Gupta et al. [2016]) en utilisant les restituions de la Collection C61 à 550 nm à la fois de Terra et d’Aqua.

- Le réseau AERONET

AERONET (*AErosol RObotic NETwork*) est une fédération de réseaux de télédétection d'aérosols au sol établis par la NASA et LOA-PHOTONS (CNRS, Centre National de la Recherche Scientifique) et est considérablement élargi par des collaborateurs d'agences nationales, d'instituts, d'universités, de scientifiques individuels et de partenaires. Le programme fournit une base de données du domaine public à long terme, continue et facilement accessible des propriétés optiques, microphysiques et radiatives des aérosols pour la recherche et la caractérisation des aérosols, la validation des restitutions par satellite et la synergie avec d'autres bases de données. La collaboration AERONET fournit des observations réparties à l'échelle mondiale de l'épaisseur optique. Les mesures AERONET sont disponibles à trois niveaux : Niveau 1 (sans écran), Niveau 1.5 (avec écran nuage) et Niveau 2 (avec écran nuage et qualité garantie). Dans le présent manuscrit, nous avons utilisé AERONET niveau 2 (L2).

L'incertitude des mesures AOD depuis AERONET, due principalement à l'incertitude d'étalonnage, a été estimée à moins de 0.02 (Sinyuk et al. [2008]).

4 Assimilation de données

Dans cette partie nous allons traiter l'assimilation de données comme approche pour combiner au mieux le modèle et les observations. Dans un premier temps, nous présenterons une définition de l'assimilation de données. Ensuite, l'approche variationnelle sera abordée. Nous conclurons cette partie par une description des erreurs d'observation et des méthodes pour leur estimation.

4.1 Principes théoriques

L'assimilation de données est une technique permettant de fournir une meilleure estimation de l'état du modèle. Dans notre cas, elle consiste à réduire les incertitudes du modèle en utilisant les observations liées aux variables modélisées. L'assimilation de données recherche l'état du système qui correspond au modèle et aux observations d'une façon optimale en prenant en compte leurs incertitudes respectives. Ensuite, l'état corrigé du système est appelé analyse et peut être utilisé comme condition initiale pour une étape ultérieure de prévision.

La figure 12 représente un schéma illustratif une représentation de ce processus : Les sorties du modèle sont interpolées dans le temps et dans l'espace et sont par la suite corrigées par les observations pour obtenir un état corrigé à la fin du processus. Dans notre cas, il s'agit des observations satellitaires, le transfert radiatif est utilisé pour calculer l'équivalent de l'état du modèle dans l'espace des luminances. Ceci en plus de l'interpolation est appelé *opérateur* d'observation. Les différentes notations utilisées dans ce schéma (\mathbf{x}_b , y , et H) seront détaillées dans la suite.

La résolution d'un problème d'assimilation de données revient à trouver le vecteur d'état \mathbf{x} qui représente la meilleure estimation possible de l'état vrai dans l'espace du modèle \mathbf{x}_t , pour un jeu d'observations données. La meilleure estimation de l'état vrai \mathbf{x}_t s'appelle l'analyse \mathbf{x}_a . Pour trouver l'analyse, il faut considérer une estimation a priori de l'état du système \mathbf{x}_b , que l'on appelle ébauche ou *background* en anglais. \mathbf{x}_b est généralement une prévision à courte échéance du modèle. Il est également connu sous le nom de première estimation, *first-guess* en anglais, ou a priori.

L'erreur de l'ébauche est définie comme la différence entre l'ébauche et l'état réel :

$$\varepsilon_b = \mathbf{x}_b - \mathbf{x}_t \quad (4.1.1)$$

Le vecteur des observations est noté \mathbf{y} . Le nombre des observations et leur répartition dans le domaine d'étude peuvent être très variables. Ceci affecte la qualité de l'analyse qui dépend de la quantité d'informations disponibles. L'erreur d'observation ε_o est définie comme la différence l'observation \mathbf{y} et l'équivalent de l'état vrai dans l'espace des observations $\mathcal{H}(\mathbf{y}_t)$:

$$\varepsilon_o = \mathbf{y} - \mathcal{H}(\mathbf{y}_t) \quad (4.1.2)$$

L'erreur d'observation sera discutée en détaille dans la partie 4.3.

La résolution du problème de l'assimilation de données suppose que les erreurs d'ébauche

et d'observation ne soient pas biaisées. Cela signifie que la moyenne des erreurs d'ébauche et des erreurs d'observation est nulle :

$$E(\varepsilon_o) = 0 \quad (4.1.3)$$

$$E(\varepsilon_b) = 0 \quad (4.1.4)$$

où E est l'espérance mathématique.

D'autre part, en général, les erreurs d'observation et d'ébauche sont supposées non corrélées entre elles.

$$E(\varepsilon_b(\varepsilon_o)^T) = 0 \quad (4.1.5)$$

La matrice d'erreur d'ébauche est définie comme suit :

$$\mathbf{B} = E(\varepsilon_b(\varepsilon_b)^T) \quad (4.1.6)$$

et la matrice des covariances d'erreur d'observation est définie par :

$$\mathbf{R} = E(\varepsilon_o(\varepsilon_o)^T) \quad (4.1.7)$$

L'information contenue dans les variances et les covariances des erreurs d'ébauche et d'observation est nécessaire pour les techniques d'assimilation. La matrice des covariances d'erreur d'observation sera discutée en détails dans cette section.

Le principe de l'assimilation de données est de trouver une analyse qui soit la meilleure estimation de l'état réel en termes de minimisation des carrés des écarts à l'ébauche et aux observations. Ceci est effectué pour chaque fenêtre temporelle appelée 'fenêtre d'assimilation' (1 heure dans notre cas) durant toute la période d'assimilation. Les différents processus impliqués dans l'optimisation pour obtenir l'analyse durant la fenêtre utilisé constituent le *cycle d'assimilation*.

Plusieurs approches existent pour rechercher l'état optimal de la fonction coût. L'approche appelée *variationnelle* est adoptée dans ce travail. Elle consiste à rechercher l'état optimal du système en minimisant une fonction dite *fonction coût* qui décrit la distance de l'état recherché avec l'état du modèle et avec les données observées. Nous décrivons La minimisation peut être décrite comme un problème de contrôle optimal. Ceci nécessite la connaissance des statistiques des erreurs d'ébauche et des erreurs d'observation. Nous discuterons ici la méthode appelée 3D-Var utilisée dans le présent travail.

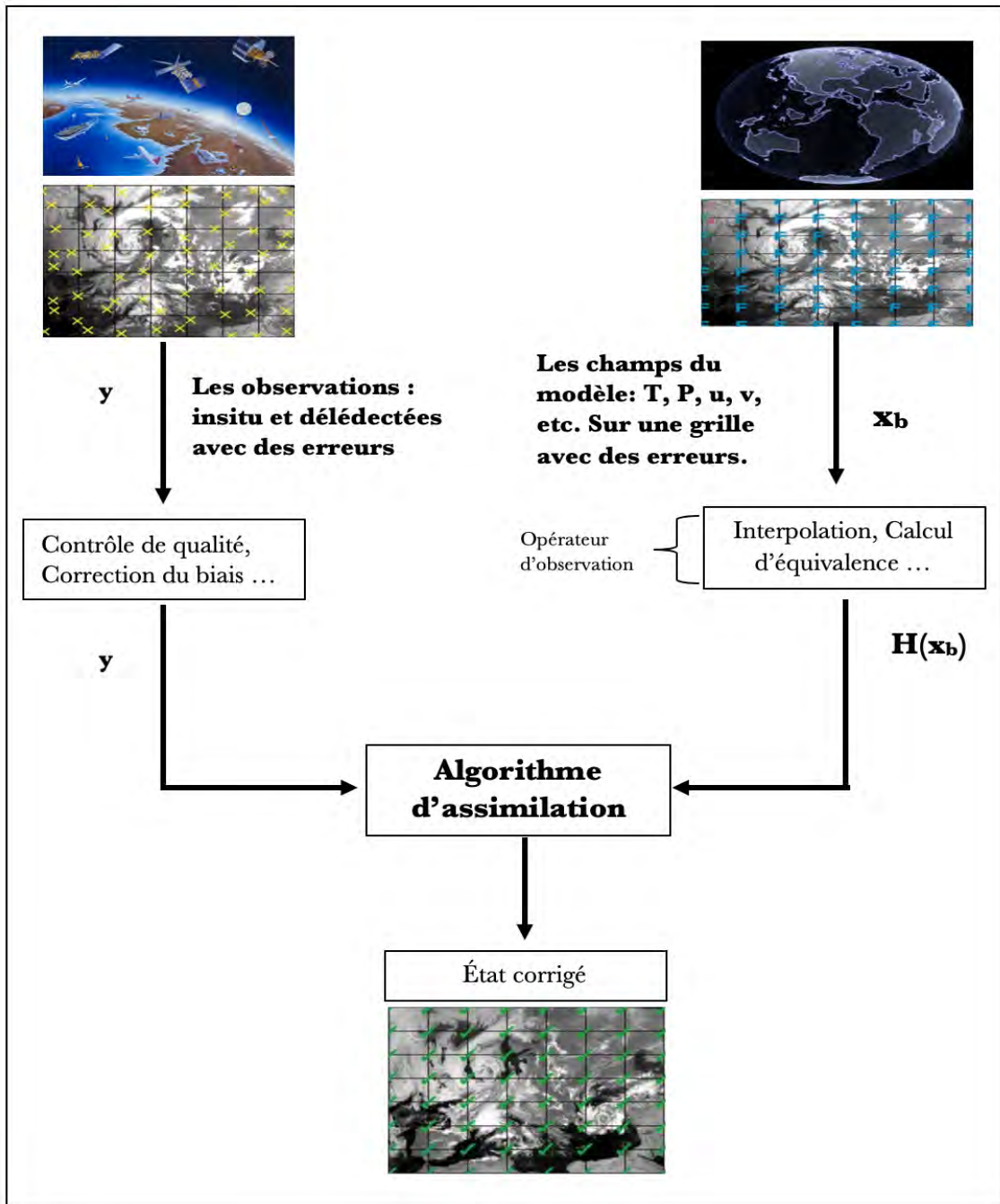


FIGURE 12 – Représentation du processus d'assimilation de données.

4.2 Approche variationnelle : 3D-Var

Dans cette partie nous traiterons la méthode 3D-Var utilisée dans ce travail.

3D-Var (assimilation VARIationnelle 3D) est une méthode d'assimilation variationnelle où l'objectif d'estimer l'état le plus plausible du système est atteint à partir des caractéristiques statistiques connues des erreurs des observations et d'ébauche. A chaque cycle d'assimilation, les observations disponibles dans la fenêtre d'assimilation sont comparées avec le modèle à un instant donné de la fenêtre, généralement au début de la fenêtre.

Les erreurs entre l'état estimé (la prédiction du modèle) et les informations disponibles (les observations) sont réduites par la minimisation de la fonction de coût J :

$$J(\mathbf{x}) = J_b(\mathbf{x}) + J_o(\mathbf{x}) \quad (4.2.1)$$

où $J_b(\mathbf{x})$ est la partie liée à l'ébauche et $J_o(\mathbf{x})$ la partie liée aux observations, exprimées comme suit :

$$J_b(\mathbf{x}) = \frac{1}{2}(\mathbf{x}_b - \mathbf{x})^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x}_b - \mathbf{x}) \quad (4.2.2)$$

$$J_o(\mathbf{x}) = \frac{1}{2} \sum_{i=0}^N (\mathbf{y}^i - \mathcal{H}^i(\mathbf{x}))^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^i - \mathcal{H}^i(\mathbf{x})) \quad (4.2.3)$$

où \mathbf{x} est le vecteur d'état du système, \mathbf{x}_b le vecteur d'ébauche, \mathbf{y}^i est l'observation i , N est le nombre total d'observations, et \mathcal{H}^i est l'opérateur d'observation. Ce dernier permet de passer de l'espace modèle à l'espace des observations. \mathbf{B} est la matrice de covariance des erreurs d'ébauche ; et \mathbf{R}^i est la matrice de covariance des erreurs d'observation. Ces deux matrices déterminent le poids accordé à l'observation et à l'ébauche. Une large erreur d'observation implique une analyse se rapprochant moins des observations et inversement. En plus de la définition du poids accordé à l'ébauche, la matrice \mathbf{B} permet de propager la correction issue des observations aux points de grille et niveaux voisins du modèle.

L'analyse \mathbf{x}_a est trouvée en minimisant la fonction de coût $J(\mathbf{x})$. Il s'agit d'un problème de minimisation à très grande échelle ($dim(\mathbf{x}) \approx 10^8$). La taille du problème limite les algorithmes que nous pouvons utiliser. Des algorithmes pratiques pour minimiser la fonction de coût 3D-Var font appel au calcul du gradient :

$$\nabla J(\mathbf{x}) = \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_b) + \sum_{i=0}^N \mathbf{H}^{Ti} \mathbf{R}^{-1i}(\mathbf{y}^i - \mathcal{H}^i(\mathbf{x})) \quad (4.2.4)$$

où \mathbf{H} est le tangent-linéaire de l'opérateur d'observation \mathcal{H} . Dans le cas où l'opérateur d'observation \mathcal{H} est linéaire, la fonction coût est quadratique et elle a un minimum unique. En plus, le calcul du gradient est possible puisque les opérateurs linéaires sont souvent plus simples à mettre en œuvre. Dans notre cas, l'opérateur d'observation n'est pas linéaire. Pour ramener le problème à un cadre où un opérateur linéarisé peut être utilisé, nous utilisons la forme *incrémentale* du 3D-Var.

L'idée de cet approche est de remplacer le vecteur d'état recherché \mathbf{x} par la différence entre le vecteur d'ébauche et l'état recherché lors de la minimisation de la fonction coût :

$$\delta\mathbf{x} = \mathbf{x} - \mathbf{x}_b \quad (4.2.5)$$

$\delta\mathbf{x}$ est petit et proche de l'état \mathbf{x}_b . Par conséquent, la formulation de l'opérateur tangent-linéaire \mathbf{H} peut être utilisée dans la fonction de coût J .

La fonction coût s'écrit alors sous la forme suivante :

$$J(\delta\mathbf{x}) = J_b(\delta\mathbf{x}) + J_o(\delta\mathbf{x}) \quad (4.2.6)$$

où $J_b(\delta\mathbf{x})$ est la partie liée à l'ébauche et $J_o(\delta\mathbf{x})$ la partie liée aux observations exprimées comme suit :

$$J_b(\delta\mathbf{x}) = (\delta\mathbf{x})^T \mathbf{B}^{-1}(\delta\mathbf{x}) \quad (4.2.7)$$

$$J_o(\delta\mathbf{x}) = \frac{1}{2} \sum_{i=0}^N (\mathbf{d}^i - \mathbf{H}^i \delta\mathbf{x})^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{d}^i - \mathbf{H}^i \delta\mathbf{x}) \quad (4.2.8)$$

où $\mathbf{d}^i = \mathbf{y}^i - \mathcal{H}^i(\mathbf{x}_b)$ est appelé *innovation* et représente la distance de l'observation \mathbf{y}^i à l'ébauche \mathbf{x}_b .

Le gradient de la fonction coût s'écrit comme suit :

$$\nabla J(\delta\mathbf{x}) = \mathbf{B}^{-1}(\delta\mathbf{x}) + \sum_{i=0}^N \mathbf{H}^{iT} \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{d}^i - \mathbf{H}^i \delta\mathbf{x}) \quad (4.2.9)$$

La minimisation de la fonction coût incrémentale permet de trouver l'incrément d'analyse $\delta\mathbf{x}_a$ qui est utilisé pour calculer l'analyse selon la formule suivante :

$$\mathbf{x}_a = \mathbf{x}_b + \delta\mathbf{x}_a \quad (4.2.10)$$

- Résolution

Comme abordé précédemment, la recherche de l'état d'analyse fait appel au calcul du gradient. Les méthodes de Newton sont parmi les méthodes basées sur le gradient pouvant être utilisées pour trouver le minimum de de $J(\mathbf{x})$. Ces méthodes utilisent l'approximation quadratique locale. En d'autres termes, pour une petite variation $\delta\mathbf{x}$:

$$J(\mathbf{x} + \delta\mathbf{x}) \approx J(\mathbf{x}) + \delta\mathbf{x}^T \nabla J(\mathbf{x}) + \frac{1}{2} \delta\mathbf{x}^T \mathbf{J}'' \delta\mathbf{x} \quad (4.2.11)$$

Le gradient dans ce cas s'écrit comme suit :

$$\nabla J(\mathbf{x} + \delta\mathbf{x}) \approx \nabla J(\mathbf{x}) + \mathbf{J}'' \delta\mathbf{x} \quad (4.2.12)$$

Comme le gradient est nul au minimum, la méthode de Newton résout :

$$\mathbf{J}'' \delta\mathbf{x} \approx -\nabla J(\mathbf{x}) \quad (4.2.13)$$

Les méthodes de Newton supposent une première estimation de l'analyse puis résolvent l'équation 4.2.13 pour cette estimation. Une nouvelle estimation est trouvée et utilisée pour une deuxième résolution de l'équation 4.2.13. Ceci est fait plusieurs fois ('itérations') jusqu'à atteindre à un seuil minimal du gradient.

La méthode de Newton requiert le calcul de \mathbf{J}'' à chaque itération. \mathbf{J}'' est d'une dimension de l'ordre de grandeur de 10^8 . La construction de cette matrice et de son inverse est difficile voir impossible. Alternativement, des méthodes appelées *quasi-Newtoniennes* construisent une approximation de \mathbf{J}'' . La méthode quasi-Newtonienne la plus populaire est l'algorithme BFGS nommé d'après ses créateurs Broyden, Fletcher, Goldfarb et Shanno (Liu and Nocedal [1989]). Cet approche est celle qui est utilisée dans ce travail.

4.3 Description du système d'assimilation utilisé dans ce travail

Dans cette partie, nous présenterons une description du système d'assimilation utilisé dans ce travail.

Nous avons utilisé un schéma 3D-Var issu du projet *Assimilation de Données pour les MOdèles de Chimie de l'Atmosphère* (ADOMOCA). Ce projet a été initié en 2005 dans le but d'unifier les efforts de la communauté scientifique française travaillant sur la chimie atmosphérique. Le système **Mocage-Palm** (Massart et al. [2005]) était l'un des outils adopté pour ce projet. Cet outil a été développé conjointement par le CERFACS et Météo-France. Il est utilisé par le CERFACS, le CNRM et le Laboratoire d'Aérodynamique (LA). La première version du système d'assimilation MOCAGE (Massart et al. [2005]) a été utilisée pour l'ozone. Selon Massart et al. [2005], des champs d'ozone de bonne qualité par rapport aux sondes d'ozone et avec des erreurs du même ordre que celles produites par plusieurs autres systèmes d'assimilation ont été produit (e.g. Geer et al. [2006]). Plusieurs efforts ont été menée depuis afin d'améliorer le système MOCAGE-PALM dans ses différents composantes (e.g. Emili et al. [2019, 2014]; Massart et al. [2005]). Il permet aujourd'hui l'assimilation de plusieurs instruments (in-situ et satellitaires) pour corriger multiple espèces chimiques et aérosols. Récemment, la possibilité d'assimiler directement les luminances satellitaires a été introduite (Emili et al. [2019]). Le système d'assimilation MOCAGE a fait partie du premier exercice international d'assimilation d'ozone par satellite (Geer et al. [2006]). Il a fournit des analyses opérationnelles de la qualité de l'air pour le projet européen CAMS Marécal et al. [2015]. Il est utilisé pour la prévision opérationnelle de la qualité de l'air de Météo France.

Le système d'assimilation MOCAGE est l'un des systèmes qui contribue aux efforts de la communauté internationale pour la surveillance de la composition atmosphérique. Plusieurs centres ont et continuent à déployer des efforts pour produire des analyses des différentes espèces chimiques. Le CEPMMT (Centre européen pour les prévisions météorologiques à moyen terme) a produit plusieurs réanalyses de la composition chimique de l'atmosphère. Nous pouvons citer, à titre d'exemple, la réanalyse CAMS (Inness et al. [2019]) consistant à des champs tridimensionnels de composition atmosphérique cohérents dans le temps, y compris les aérosols et les espèces chimiques. La réanalyse MERRA de la NASA (Rienecker et al. [2011]) produit également des réanalyses des gaz et des aérosols.

Pour plus de détails sur le projet ADOMOCA et les différents outils utilisés, le lecteur

est invité a consulter le chapitre 3 de la thèse de Pajot [2012].

- Vecteur de contrôle

Le vecteur de contrôle dans notre travail contient l’ozone O_3 , et la température de surface (SST pour *Skin Surface Temperature* en anglais) pour le chapitre 5 et la première partie du chapitre 6. Pour la deuxième partie du chapitre 6, les poussières désertiques seront incluses dans notre vecteur de contrôle. La SST n’appartient pas aux champs de MOCAGE et n’est pas non plus prescrite sur la grille MOCAGE. Par conséquent, l’analyse SST n’est pas propagée dans le temps et aucun modèle de covariance spatiale n’a été mis en œuvre. L’inclusion de la SST dans le vecteur de contrôle s’est avéré important car de petites erreurs dans la SST se traduisent par des différences significatives entre les luminances modélisées et mesurées.

- Cycle d’assimilation

Dans toutes les parties qui seront discutées dans notre travail, l’implémentation du schéma 3D-Var a été utilisée avec des fenêtres d’assimilation d’une heure. La fonction de coût variationnel est minimisée à l’aide de l’algorithme BFGS. Le système est pré-conditionné avec la racine carrée de la matrice \mathbf{B} .

- Opérateur d’observation

Pour calculer les luminances modélisées, une interpolation horizontale et temporelle des champs du modèle à la position du pixel au sol du satellite est effectuée. Pour l’interpolation verticale, l’interpolateur vertical de RTTOV est utilisé au lieu de celui de MOCAGE. Tous les niveaux de modèle (60) et les niveaux de pression correspondants sont donnés en tant qu’entrées à RTTOV, qui effectue l’interpolation verticale aux niveaux de coefficient IASI en interne. La résolution verticale du modèle étant inférieure à celle disponible en RTTOV pour les coefficients IASI (101 niveaux), nous avons utilisé l’option par défaut basée sur Rochon et al. [2007]. De plus, les profils O_3 au-dessus du sommet du CTM (0,1 hPa) sont complétés à l’aide des profils climatologiques RTTOV. Les entrées auxiliaires pour le calcul de la luminance comprennent les profils de pression, de température et de vapeur d’eau, qui sont interpolés à partir des champs MOCAGE correspondants.

- Spécification des erreurs

La spécification des matrices de covariance d’erreur définies dans la partie précédente est statistiquement difficile. Ceci pour plusieurs raisons, on peut citer parmi elles :

- L’état vrai est inconnu.

- Difficulté de stocker ce type de matrices (10^{11} termes pour une matrice \mathbf{B} pour une grille horizontale T42 et 60 niveau verticaux).

Dans cette partie, nous mettrons en exergue, la définition de la matrice \mathbf{B} dans notre système. La matrice \mathbf{R} sera détaillée dans la section suivante.

Comme le lecteur peut le noter dans l'approche variationnelle présentée précédemment, c'est plutôt l'inverse de la matrice \mathbf{B} qui est utilisé dans la fonction coût. La première étape est donc de modéliser l'opérateur $x \rightarrow \mathbf{B}^{-1}x$ pour ne pas calculer l'inverse directement. Dans notre système, la matrice de covariance d'erreur d'ébauche \mathbf{B} est représentée comme suit :

$$\mathbf{B} = \Sigma \mathbf{C} \Sigma \quad (4.3.1)$$

où Σ est la matrice diagonale de la racine carrée des écarts type et \mathbf{C} est la matrice symétrique définie positive des corrélations horizontales et verticales.

La matrice de corrélation \mathbf{C} contient à la fois des opérateurs horizontaux et verticaux. La corrélation horizontale est modélisée à l'aide d'une fonction gaussienne 2D (Weaver and Courtier [2001], Pannekoucke and Massart [2008], Mirouze [2010]) avec une échelle de longueur homogène à la fois en latitude et en longitude.

La corrélation horizontale ($C_{m,n}^h$) entre deux points (m et n) séparés par une distance ($d_{m,n}$) est :

$$C_{m,n}^h = \exp\left[\frac{-d_{m,n}^2}{2(L_x + L_y)}\right] \quad (4.3.2)$$

où L_x et L_y sont respectivement les échelles de longitude et de latitude en kilomètres exprimées comme suit :

$$L_x = 2R_e \sin\left(\frac{\alpha_x \pi}{360}\right) \text{ et } L_y = 2R_e \sin\left(\frac{\alpha_y \pi}{360}\right) \quad (4.3.3)$$

R_e est le rayon de la Terre (6371.22 km) et α_x et α_y sont les échelles de longitude et de latitude, respectivement, en degrés.

La corrélation verticale est modélisée à l'aide d'une fonction gaussienne en fonction du logarithme de la pression. Entre deux niveaux de pression p_i et p_j la corrélation verticale $C_{i,j}^v$ s'écrit comme suit :

$$C_{i,j}^v = \exp\left[-k \log^2 \frac{p_i}{p_j}\right] \quad (4.3.4)$$

L'estimation du paramètre sans dimension, k , est basée sur la forme de propagation de l'incrément autour du lieu d'observation (e.g. Massart et al. [2009]). Dans l'exemple de El Amraoui et al. [2010] il a été trouvé que $k = 100$ caractérise mieux la corrélation verticale de la matrice \mathbf{B} dans la troposphère.

Pour la matrice Σ , notre système offre différentes possibilités de spécification. Elle peut être lue depuis un fichier donné en entrée. Un exemple de cette possibilité est utilisé dans Massart et al. [2009]. La deuxième possibilité, utilisée dans ce travail, est d'imposer les variances à ce qu'elles soient proportionnels à l'ébauche. Cette approche a été adoptée dans Emili et al. [2014] et Peiro et al. [2018]. Les auteurs ont utilisé des erreurs variant verticalement, exprimées en pourcentages du profil de l'ébauche de l'ozone, avec des erreurs relatives plus importantes dans la troposphère et plus petites dans la stratosphère. Ils ont évalué l'erreur quadratique moyenne (RMSE) de la simulation du modèle sans assimilation (contrôle) par rapport aux sondes d'ozone et aux profils MLS.

Le RMSE du modèle est trouvé avec des erreurs plus petites dans la stratosphère (entre 20 et 50 hPa), des erreurs plus importantes dans la troposphère libre et des erreurs les plus élevées près de la tropopause et dans la couche limite planétaire (Voir la figure 3 de Emili et al. [2019]).

La spécification de la matrice \mathbf{R} est discutée d'une façon détaillée dans la section juste après.

4.4 Erreur d'observation

Dans cette partie nous aborderons les différentes sources des erreurs d'observation et les méthodes d'estimation de la matrice \mathbf{R} . Nous mettrons plus l'accent sur les observations satellitaires puisque elles sont l'objet de ce travail.

4.4.1 Définition et sources

Comme nous l'avions abordé précédemment, les données satellitaires sont parmi les sources d'observations les plus importantes en raison de leur couverture mondiale uniforme. En revanche, les observations conventionnelles sont regroupées sur des zones peuplées mais sont clairsemées ailleurs.

Une bonne compréhension et une spécification précise des erreurs d'observation est essentielle pour que les observations soient convenablement pondérées par rapport à l'ébauche. Les erreurs dans les données satellitaires proviennent des diverses sources, notamment le bruit des instruments, les erreurs de représentativité, les erreurs de modèle de transfert radiatif et d'autres erreurs de pré-traitement ainsi que les erreurs liées au processus de restitution. Les statistiques des erreurs dues au bruit des instruments sont bien connues et généralement fournies par les concepteurs de l'instrument (le CNES dans notre cas).

Chaque observation assimilée dans le modèle a une erreur correspondante. Les deux principaux types d'erreurs d'observation sont les erreurs systématiques et aléatoires. Les erreurs systématiques ou biais ne sont pas traités par les approches classiques en assimilation de données comme le 3D-Var. Généralement, les données satellitaires qui sont assimilées dans le modèle sont soumises à une procédure de correction de biais faite au préalable (e.g. Harris and Kelly [2001]).

En revanche, les erreurs aléatoires sont celles qui sont représentées dans la matrice \mathbf{R} . Une erreur d'observation est définie comme :

$$\epsilon^o = \mathbf{y}^o - \mathcal{H}(\mathbf{x}^t) \quad (4.4.1)$$

où ϵ^o est l'erreur d'observation, \mathbf{y}^o est une observation, \mathcal{H} est l'opérateur d'observation et \mathbf{x}^t représente l'état vrai. Cette expression peut être divisée en deux parties en utilisant le fait que \mathbf{y}^t , l'observation sans erreur, correspond à $\mathcal{H}(\mathbf{x}^t)$ l'opérateur d'observation sans erreur agissant sur l'état vrai dans l'espace modèle, comme suit :

$$\begin{aligned} \epsilon^o &= \mathbf{y}^o - \mathcal{H}(\mathbf{x}^t) \\ &= (\mathbf{y}^o - \mathbf{y}^t) + (\mathbf{y}^t - \mathcal{H}(\mathbf{x}^t)) \\ &= \epsilon^e + \epsilon^f \end{aligned} \quad (4.4.2)$$

où ϵ^e est l'erreur due au bruit de l'instrument et ϵ^f est l'erreur due à l'opérateur d'observation. En supposant qu'il n'y ait pas de corrélation entre le bruit de l'instrument et les erreurs dans l'opérateur d'observation, les matrices de covariance d'erreur correspondantes sont :

$$\begin{aligned}\mathbf{R} &= E[\epsilon^o \epsilon^{oT}] \\ &= E[\epsilon^e \epsilon^{eT}] + E[\epsilon^f \epsilon^{fT}] + E[\epsilon^e \epsilon^{fT}] + E[\epsilon^f \epsilon^{eT}] \\ &= \mathbf{E} + \mathbf{F}\end{aligned}\tag{4.4.3}$$

Les mesures IASI sont apodisées ce qui réduit le bruit mais introduit des corrélations entre canaux voisins (*Laura LE BARBIER, communication personnelle, Conférence IASI 2021*). Dans ce cas, \mathbf{E} est une matrice avec des covariances non nulles entourant la diagonale.

Pour la deuxième partie de la matrice \mathbf{R} , \mathbf{F} , nous citerons ici trois types de sources qui peuvent y contribuer :

- *Les erreurs dans l'opérateur d'observations* : ce sont les erreurs associées au calcul de l'équivalent de l'état du modèle dans l'espace des observations. Dans notre cas (les luminances satellitaires), il s'agit de l'erreur due à des incertitudes ou à des approximations dans le modèle de transfert radiatif Matricardi and Saunders [1999]. D'autres approximations sont également généralement faites, telles que la discrétisation ou la représentation de l'atmosphère sous la forme d'une seule colonne verticale.

- *Les erreurs de pré-traitement ou de contrôle qualité* : ce sont les erreurs associées aux imperfections dans la préparation et la sélection des observations, en termes soit de restitution d'une quantité (par exemple la restitution d'un profil atmosphérique à partir de données satellitaires ; la hauteur pour les vecteurs de mouvement atmosphérique, voir Cordoba et al. [2017]) ou notre capacité à identifier les observations qui ont des contributions non modélisées et devraient donc être rejetées (Waller et al. [2016]). Pour l'assimilation des luminances dans un ciel clair (ce qui est notre cas), cette contribution est principalement le résultat d'échecs dans la détection des nuages, visant à supprimer les observations affectées par les nuages afin qu'un modèle de transfert radiatif dans un ciel clair puisse être utilisé. (par exemple, McNally and Watts [2003]). Un tel contrôle de qualité n'est jamais parfait et cela peut contribuer de manière significative à la marge d'erreur. Pour l'assimilation des luminances dans un ciel clair, on pourrait aussi considérer cette erreur comme une erreur de l'opérateur d'observation, car il s'agit d'un effet de la négligence des nuages dans le modèle de transfert radiatif.

- *Les erreurs de représentativité* : est l'erreur associée aux échelles spatiales et temporelles, ainsi qu'aux caractéristiques et processus représentés dans les observations et non dans le modèle. A titre d'exemple, dans notre cas, la taille des empreintes de l'instrument est de 12 Km, tandis que les échelles spatiales représentées dans les modèles sont d'une résolution d'environ de 220 Km. Ces différences peuvent conduire à une inadéquation entre la représentation des échelles spatiales ou temporelles dans les observations et

les modèles.

Dans notre cas, ces trois catégories d'erreurs contribuent avec un degré variable. Les erreurs de contrôle de qualité et d'observation de l'opérateur sont susceptibles de dominer. Dans la partie qui suit, nous aborderons deux différentes méthodes d'estimations que nous avons employé dans ce travail.

4.4.2 Méthodes d'estimation

La quantification des erreurs d'observation n'est pas un problème simple et ils existent plusieurs méthodes d'estimation. Dans cette section, nous décrivons les deux méthodes utilisées dans ce travail pour estimer les erreurs d'observation et leurs corrélations. Elles sont basées sur les différences entre l'ébauche et/ou l'analyse et les observations. Les covariances d'erreur d'observation sont censées être la somme de toutes les erreurs de type aléatoire introduits auparavant. Ceci inclut les erreurs d'instrument, les erreurs de représentativité, et les erreurs dans l'opérateur d'observation.

Méthode de Hollingsworth-Lönnerberg

Cette méthode est basée sur deux hypothèses : premièrement, les erreurs d'ébauche et d'observation ne sont pas corrélées et, deuxièmement, les erreurs d'ébauche sont spatialement corrélées, tandis que les erreurs d'observation sont spatialement décorréliées.

Dans notre travail, les luminances et les concentrations données par le modèles sont deux processus indépendants. Nous pouvons, par conséquent, supposer que la première hypothèse est bien respectée. Pour la deuxième hypothèse, les erreurs d'ébauche peuvent être spatialement corrélées et nous supposons, par raison de simplification, que les luminances sont spatialement décorréliées.

Cette approche est basée sur le calcul de la différence entre l'observé (O) et le prédit (P). Elle a été appliquée à de nombreuses reprises pour estimer les erreurs d'ébauche pour des réseaux de radiosondes (par exemple, Lönnerberg and Hollingsworth [1986]), ou, plus récemment, les erreurs et les corrélations d'erreurs entre les canaux pour les luminances AIRS (Garand et al. [2007]). Une variante de la méthode a également été utilisée pour estimer les corrélations d'erreur spatiale dans les vecteurs de mouvement atmosphérique (AMV) à partir des différences entre les AMV et les radiosondes (Bormann et al. [2003]).

Le principe de cette méthode est d'ajuster la fonction $V_{i,j,D}$ en fonction de la distance D séparant les composants d'erreur d'ébauche (représenté sur l'axe des abscisses de la figure 13). On effectue l'extrapolation à une distance nulle $D = 0$ à partir de séparations non nulles ($D = 20, D = 40, D = 60, \dots$, etc sur la figure 13) de cette fonction de corrélation pour les séparations non nulles. Une illustration de cette méthode sur la figure 13. La courbe rouge représente la fonction d'ajustement et les points noirs représentent la variance d'ébauche $V_{i,j,D}$.

Dans notre travail, les covariances sont calculées pour toutes les paires de canaux possibles et en fonction de la séparation horizontale d'une distance choisie (20 km par exemple dans la figure 13). Le premier bac est à distance 0 ; les autres bacs sont centrés à

20, 40 km, et ainsi de suite. Les covariances horizontales, attribuées à l'erreur d'ébauche, sont modélisées par la fonction qui suit :

$$V_{i,j,D} = V_{i,j,0} \left(1 + \left(\frac{D}{L_{i,j}}\right)^{b_{i,j}}\right) \exp\left(-\left(\frac{D}{L_{i,j}}\right)^{b_{i,j}}\right) \quad (4.4.4)$$

où i et j sont des indices de canal et D est la distance de séparation. Trois paramètres sont dérivés : l'échelle de longueur $L_{i,j}$, l'exposant $b_{i,j}$ et la valeur à l'origine $V_{i,j,0}$. Après avoir désigné par $T(i, j)$ la covariance totale à distance nulle parmi N observations :

$$T(i, j) = \sum (O - P)_i (O - P)_j \text{ avec } i, j = (1, \dots, N) \quad (4.4.5)$$

La matrice de covariance d'erreur d'observation entre les canaux \mathbf{R} est obtenu en utilisant la formule suivante :

$$R(i, j) = T(i, j) - V_{i,j,0} \quad (4.4.6)$$

Dans les études précédentes telles que celles mentionnées ci-dessus, la valeur de l'exposant b est généralement fixée à l'unité. Il a été constaté que l'utilisation du paramètre b permet un ajustement amélioré (somme des carrés des résidus), notamment lorsque la corrélation chute rapidement avec la distance. La valeur de b est généralement comprise entre 0,5 et 1,0.

Méthode de Desrozier

Une deuxième méthode que nous présentons dans ce travail est celle présentée dans Desrozier et al. [2006]. Ce diagnostic détermine une estimation de la matrice de covariance d'erreur d'observation en prenant l'espérance statistique des résidus d'observation moins l'ébauche et d'observation moins l'analyse. Le résiduel d'ébauche, également connu sous le nom d'innovation présenté comme suit :

$$\mathbf{d}_b^o = \mathbf{y} - \mathcal{H}(\mathbf{x}_b) \quad (4.4.7)$$

\mathbf{d}_b^o est la différence entre l'observation, \mathbf{y} , et l'équivalence du vecteur d'ébauche, \mathbf{x}_b , dans l'espace d'observation par l'opérateur d'observation \mathcal{H} . Si on remplace \mathbf{x}_b par \mathbf{x}_a dans l'équation (4.4.7), le résidu d'analyse s'écrit comme suit :

$$\mathbf{d}_b^a = \mathbf{y} - \mathcal{H}(\mathbf{x}_a) \quad (4.4.8a)$$

$$\approx \mathbf{y} - \mathcal{H}(\mathbf{x}_b) - \mathbf{H}\mathbf{K}\mathbf{d}_b^o \quad (4.4.8b)$$

$$\approx (\mathbf{I} - \mathbf{H}\mathbf{K})\mathbf{d}_b^o \quad (4.4.8c)$$

$$\approx \mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1}\mathbf{d}_b^o \quad (4.4.8d)$$

où $\mathbf{K} = \mathbf{B}\mathbf{H}^T(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1}$ est appelée matrice de gain du filtre de Kalman. En supposant que les erreurs d'ébauche et d'observation ne sont pas corrélées, l'espérance

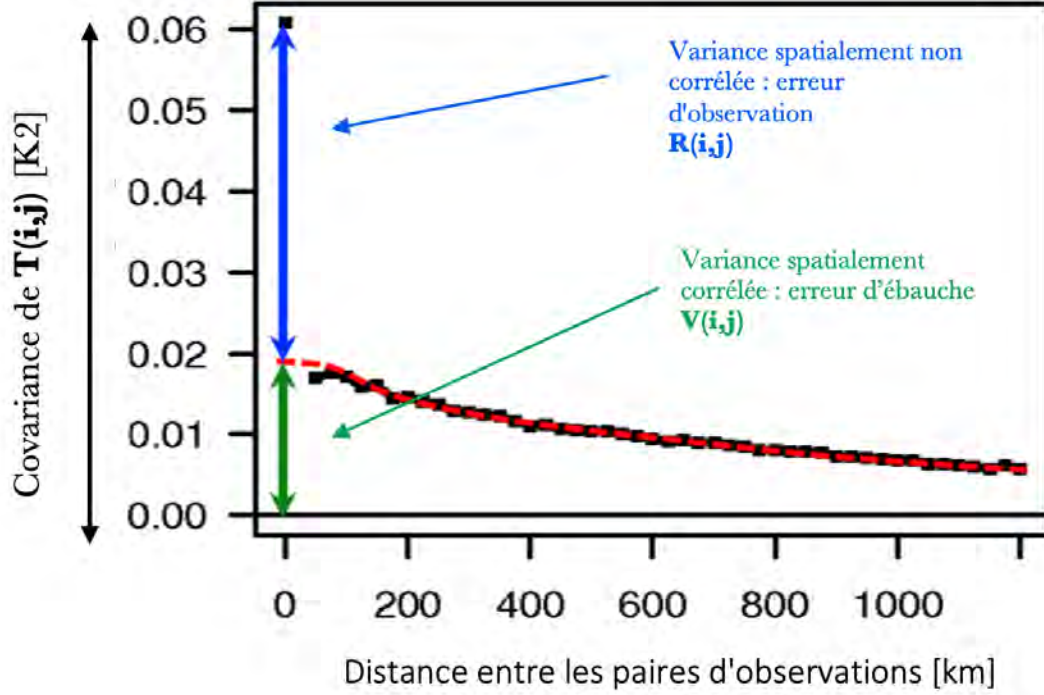


FIGURE 13 – Illustration de la méthode d'estimation d *Hollingsworth/Lönnberg*.

statistique du produit extérieur de l'analyse et des résidus d'ébauche s'écrit comme suit :

$$E[\mathbf{d}_a^o \mathbf{d}_b^{oT}] \approx E[(\mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1})\mathbf{d}_b^o \mathbf{d}_b^{oT}] \quad (4.4.9a)$$

$$\approx \mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1} E[(\mathbf{d}_b^o)(\mathbf{d}_b^{oT})] \quad (4.4.9b)$$

$$\approx \mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1} E[(\epsilon^o + \mathbf{H}\epsilon^b)(\epsilon^o + \mathbf{H}\epsilon^b)^T] \quad (4.4.9c)$$

$$\approx \mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1} (E[(\epsilon^o \epsilon^{oT})] + \mathbf{H}E[(\epsilon^b \epsilon^{bT})]\mathbf{H}^T) \quad (4.4.9d)$$

$$\approx \mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1} \mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R}) \quad (4.4.9e)$$

$$\approx \mathbf{R} \quad (4.4.9f)$$

Cette équation produit la matrice de covariance d'erreur d'observation exacte si les statistiques d'observation et d'erreur d'ébauche utilisées dans l'assimilation sont exactes. L'interprétation des résultats dans le cas où les statistiques d'erreur d'ébauche et d'observation sont incorrectes est détaillée avec des figures dans Desroziers et al. [2006]. Un autre problème avec le diagnostic est qu'il n'est pas garanti de produire une matrice symétrique. Par conséquent, la matrice doit être symétrisée avant de pouvoir être utilisée dans l'assimilation.

Cette méthode a été utilisée pour estimer les erreurs d'observation dans plusieurs études (e.g. Bormann et al. [2016]; Tabcart et al. [2020]). Elle peut potentiellement fournir des informations sur des statistiques d'observation et d'erreur d'ébauche imparfaitement

connues avec un calcul presque gratuit (Desroziers et al. [2006]). En effet, les matrices des covariances d'erreurs d'observation et d'ébauche sont des matrices de très grande dimension (de l'ordre de grandeur de 10^{16}). La spécification de ces matrices requiert la connaissance des caractéristiques d'erreur pour chaque point. Ceci est très difficile voir même impossible. En plus cette spécification doit se faire, dans l'idéal, pour chaque cycle d'assimilation. Une mise à jours donc de ces matrices est nécessaire. Cette méthode permet d'estimer ces matrices à partir des vecteurs d'analyse, d'ébauche et d'observation avec un coût de calcul très petit. Elle permet aussi de mettre à jours ces matrices sans avoir à les transporter. Cependant, cette approche suppose que les matrices \mathbf{R} et \mathbf{B} utilisées pour produire l'analyse sont exactes, ce qui n'est presque jamais le cas en pratique. De plus, les diagnostics de Desroziers calculent les covariances totales, des efforts supplémentaires, alors, sont nécessaires pour comprendre et distinguer les sources de l'erreur.

En résumé, dans cette partie, nous avons décrit les deux méthodes utilisées dans ce travail : le diagnostic de Desroziers et la méthode de Hollingsworth-Lönnberg. Ces deux méthodes permettent d'estimer et de mettre à jours les erreurs d'observation à partir des vecteurs décrivant l'état du système (observation et ébauche pour Hollingsworth-Lönnberg en plus de l'observation pour Desroziers). Le coût de calcul est très petit puisqu'il s'agit des produits simples. La méthode de Hollingsworth-Lönnberg présente l'avantage de ne pas faire appel à une analyse pour estimer les erreurs. La méthode Desroziers, à son tour, nécessite d'effectuer une expérience d'assimilation avant l'estimation. Ceci pourrait impacter le résultat de l'estimation d'erreur. La méthode de Hollingsworth-Lönnberg permet donc une estimation indépendante du processus d'assimilation antérieur. Cependant, les deux méthodes calculent les covariances totales, des efforts supplémentaires sont, donc, nécessaires pour comprendre et distinguer les sources de l'erreur.

Les résultats de ces méthodes seront discutés dans le chapitre 5.

5 Assimilation des luminances IASI pour l’ozone

Jusqu’à maintenant, nous avons introduit notre travail. Puis nous avons abordé l’observation et la modélisation comme approches de surveillance de la composition chimique de l’atmosphère notamment l’ozone et les poussières désertiques. Lors de la discussion de ces deux approches, nous avons décrit notre modèle de chimie transport, le modèle de transfert radiatif, et les observations utilisées dans ce travail. Ensuite, nous avons mis l’accent sur l’assimilation de données et le schéma utilisé dans ce travail. Aussi, nous avons décrit notre système d’assimilation d’une manière succincte et abordé les erreurs d’observations. Ce chapitre constitue, donc, le premier chapitre où les résultats sont discutés en détail.

L’objectif principal de ce chapitre est d’améliorer les analyses d’ozone dans notre système et d’évaluer l’apport des luminances IASI pour la production des réanalyses de l’ozone. A cet égard, nous allons commencer par aborder l’estimation des erreurs d’observations et leur impact sur les résultats de l’analyse de l’ozone dans notre système d’assimilation. Ceci sur une durée d’un mois. Une deuxième partie de ce chapitre discutera les résultats de l’utilisation des luminances IASI pour produire une réanalyse de l’ozone sur une durée d’une année.

Avant d’exposer les deux parties de ce chapitre, il convient de présenter la configuration des simulations adoptées. Nous présentons sur le tableau 3 les différences principales entre les configurations utilisés dans les deux parties de ce chapitre. Une discussion plus détaillée sur les choix adoptés et leurs raisons se trouve à l’intérieur de chaque partie.

	Première partie (section 5.1)	Deuxième partie (section 5.2)
<i>Période d’étude</i>	Juillet 2010	Toute l’année 2010
<i>Instruments assimilés</i>	IASI	IASI et MLS
<i>Écart type d’ébauche (en pourcentage du profil de O₃)</i>	10 % troposphère, 2 % stratosphère	10% troposphère, 2 %–4% stratosphère
<i>Hauteur de la tropopause (pour l’erreur d’ébauche)</i>	Constante (100 hPa)	Dynamique (en fonction du profil de la température)
<i>Forçage météorologique</i>	Prévisions de IFS	ERA-Interim
<i>Schéma chimique</i>	REPROBUS + RACM	CARIOLLE
<i>Vecteur de contrôle</i>	O ₃ et Surface Skin Temperature (SST)	O ₃ et Surface Skin Temperature (SST)

TABLE 3 – Configuration des simulations utilisées dans ce chapitre.

5.1 Erreurs d'observation : Estimation et première évaluation d'impact

Dans cette première partie, nous allons discuter les résultats de l'estimation des covariances d'erreurs d'observations \mathbf{R} . Ensuite, l'impact sur les résultats de l'analyse de l'ozone dans notre système d'assimilation est présenté. Les résultats qui seront abordés s'appuient sur l'article de El Aabaribaoune et al. [2021] publié le 13 avril 2021 dans AMT (Atmospheric Measurement Techniques). Nous présentons donc dans un premier temps un résumé de l'article et le lecteur est prié de consulter l'article pour la discussion des résultats. Cependant, quelques aspects ont été mentionnés dans l'article mais pas présentés de façon détaillée. Nous mettrons, donc, ces aspects en lumière dans la section des résultats supplémentaires.

5.1.1 Résumé de l'article 1

Le poids accordé à l'observation dans le processus d'assimilation est déterminé par sa matrice des covariances d'erreur \mathbf{R} . Par conséquent, son estimation joue un rôle crucial dans les résultats d'assimilation. La spécification correcte de cette matrice est un problème critique pour assimiler efficacement la quantité croissante de données satellitaires disponibles ces dernières années, en particulier pour les sondeurs hyperspectraux infrarouges comme IASI.

Dans cet article, nous avons estimé les erreurs d'observation et leurs corrélations intercanaux pour les luminances IASI sensibles à l'ozone et à la température de surface. Nous avons ensuite évalué l'impact de \mathbf{R} estimée sur l'analyse de l'ozone et la la température de surface (SST) dans notre système d'assimilation 3D-Var.

Pour estimer \mathbf{R} nous avons utilisé le diagnostic de Desroziers : une méthode étant déjà adoptée dans de nombreux centres de prévision numérique du temps. Nous avons utilisé un sous-ensemble de 280 canaux couvrant la bande spectrale entre 980 et 1100 cm^{-1} pour estimer la matrice des covariances d'erreur d'observation. Cette bande spectrale contient des canaux sensibles à l'ozone et des fenêtres atmosphériques (utilisés pour la SST). Le résultat de l'estimation a montré des corrélations élevées entre la majorité des canaux spectraux IASI utilisés, en particulier ceux sensible à la température de surface. L'écart type de l'estimation, à son tour, a montré des valeurs plus élevés par rapport à ce qui a été utilisé dans la littérature.

Cette matrice a été introduite dans le système d'assimilation. Le résultat a été comparé à une expérience d'assimilation où la matrice des covariances d'erreur d'observation est diagonale et l'écart type attribué empiriquement comme dans les études précédentes. Cette introduction a réduit la quantité d'ozone dans la troposphère libre et dans la haute stratosphère tropicale, tandis que de l'ozone a été ajouté au voisinage de la basse stratosphère. Les résultats des expériences ont ensuite été validés par rapport à des données indépendantes : OMI, MLS et les sondes d'ozone. La validation contre les colonnes totales d'ozone mesurées par OMI a montré que les résultats étaient plus proches des observations indépendantes lorsque la matrice estimée a été utilisée. La validation par rapport aux profils d'ozone mesurées par MLS et par les sondes d'ozone a montré que l'utilisa-

tion de la nouvelle matrice \mathbf{R} a globalement amélioré les résultats dans la stratosphère, notamment dans les tropiques. Malgré une légère augmentation de l'erreur au voisinage de l'UTLS, l'amélioration reste toujours avantageuse par rapport à l'assimilation de référence (une simulation de contrôle ou une simulation sans assimilation). Concernant le coût de calcul, l'introduction de \mathbf{R} estimée réduit significativement le nombre d'itérations nécessaires pour que l'algorithme d'assimilation converge.

En résumé, la prise en compte d'une matrice \mathbf{R} estimée par le diagnostic de Desroziers améliore les résultats d'assimilation de l'ozone.

5.1.2 Article 1



Estimation of the error covariance matrix for IASI radiances and its impact on the assimilation of ozone in a chemistry transport model

Mohammad El Aabaribaoune¹, Emanuele Emili¹, and Vincent Guidard²

¹CECI, Université de Toulouse, CERFACS, CNRS, Toulouse, France

²CNRM, Université de Toulouse, Météo France, CNRS, Toulouse, France

Correspondence: Mohammad El Aabaribaoune (elaabaribaoune@cerfacs.fr)

Received: 6 May 2020 – Discussion started: 14 September 2020

Revised: 1 February 2021 – Accepted: 17 February 2021 – Published: 13 April 2021

Abstract. In atmospheric chemistry retrievals and data assimilation systems, observation errors associated with satellite radiances are chosen empirically and generally treated as uncorrelated. In this work, we estimate inter-channel error covariances for the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) and evaluate their impact on ozone assimilation with the chemistry transport model MOCAGE (Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle). The method used to calculate observation errors is a diagnostic based on the observation and analysis residual statistics already adopted in many numerical weather prediction centres. We used a subset of 280 channels covering the spectral range between 980 and 1100 cm⁻¹ to estimate the observation-error covariance matrix. This spectral range includes ozone-sensitive and atmospheric window channels. We computed hourly 3D-Var analyses and compared the resulting O₃ fields against ozonesondes and the measurements provided by the Microwave Limb Sounder (MLS) and by the Ozone Monitoring Instrument (OMI).

The results show significant differences between using the estimated error covariance matrix with respect to the empirical diagonal matrix employed in previous studies. The validation of the analyses against independent data reports a significant improvement, especially in the tropical stratosphere. The computational cost has also been reduced when the estimated covariance matrix is employed in the assimilation system, by reducing the number of iterations needed for the minimizer to converge.

1 Introduction

Ozone is an important trace gas that plays a key role in the Earth's radiative budget (Iglesias-Suarez et al., 2018), in the chemical processes occurring in the atmosphere, and in climate change (United Nations Environment Programme (UNEP) 2015). Tropospheric ozone also behaves as a pollutant with negative effects on vegetation and human health (UNEP2015, 2015). The stratospheric ozone is, nevertheless, a vital component of life on the Earth since it protects the biosphere from harmful ultraviolet solar radiation (WMO, 2014). Therefore, monitoring the atmospheric ozone has been a subject of numerous research studies and projects (e.g. Monitoring Atmospheric Composition and Climate (MACC) project (Inness et al., 2013)). O₃ surveillance is carried out through numerical forecast models and observational systems. The information arising from these two sources is, thereafter, combined with the data assimilation techniques to improve the system state and forecasts.

Remote soundings from satellites are an essential component of an observational network (Clerbaux et al., 2009). Several remote sensors relying on thermal emission of the Earth and the atmosphere have demonstrated their ability to provide appropriate information for total columns or vertical profiles of atmospheric gases such as water vapour, carbon dioxide, and ozone (Clarisse et al., 2008; Clerbaux et al., 2009; Irion et al., 2018). Furthermore, the role of thermal infrared sounders does not typically end at the monitoring of atmospheric gases. A large number of applications have taken advantage of these measurements: the estimation of meteorological parameters (clouds, temperature, and humidity) and climate change studies (e.g. MacKenzie et al., 2012). The In-

61

frared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) is one of these thermal infrared sounders on board Metop-A which provides global-scale observations for a series of key atmospheric species (Clerbaux et al., 2009).

Data assimilation has been introduced relatively recently in atmospheric chemistry, in the stratosphere (Fisher and Lary, 1995) and for the troposphere (Elbern et al., 1997). Chemical fields estimated by chemistry transport models (CTMs) are combined with observations to construct a more accurate description of the atmospheric composition evolution (Lahoz et al., 2007). Numerous studies have been conducted assimilating satellite retrievals of ozone (Emili et al., 2014; Massart et al., 2009). However, the quality of analyses might be influenced by the prior information used for the retrievals. A recent study (Emili et al., 2019) attempted to assimilate satellite radiances directly in a CTM to overcome this issue. In chemical assimilation systems that assimilate radiances directly, but also in most of the current satellite retrieval algorithms (Dufour et al., 2012), the observation errors are empirically adapted from the nominal instrumental noise and assumed to be uncorrelated. This assumption is questionable since we use a radiative transfer model that may introduce similar errors among different spectral channels (Bormann et al., 2010). In other words, an error dependency between channels of the band used is likely to be introduced. The inter-channel error correlations might originate from observation operator errors. They can also arise from the instrument calibration and some practices of quality control (Bormann et al., 2010; Waller et al., 2016; Geer, 2019). The representation errors (Janjić et al., 2018) may also introduce correlations. Liu and Rabier (2003) have shown that the assimilation can lead to sub-optimal analysis errors when observation-error correlations are neglected.

The weight given to the observation in the assimilation process is determined by its error covariance matrix \mathbf{R} . Therefore, its estimation plays a crucial role in the assimilation results. While most chemical assimilation systems assume the observation error to be uncorrelated, many numerical weather prediction (NWP) centres have estimated non-diagonal observation-error covariances for satellite instruments such as the Atmospheric Infrared Sounder (Garand et al., 2007; Bormann et al., 2010), IASI (Stewart et al., 2009; Bormann et al., 2010; Weston et al., 2014; Campbell et al., 2017; Bathmann et al., 2020), and the Spinning Enhanced Visible and Infrared Imager (Waller et al., 2016). The results found in the literature for the meteorological applications incite us to account for a correlated observation error for the chemical assimilation system as well. Indeed, the studies mentioned above show that the inter-channel observation errors are correlated and taking such correlated errors into account in the assimilation leads to improved analysis accuracy. Additionally, Emili et al. (2019) have highlighted some issues when assimilating radiances in a chemistry transport model (increase in the ozone analysis errors compared to the control simulation at some specific altitudes), which might be

due to too simplistic observation errors. The main objective of this study is, thus, to improve the ozone analysis accuracy within a chemistry transport model, by means of using more realistic observation-error covariances for IASI ozone-sensitive channels.

The estimation of \mathbf{R} is not straightforward, but a number of statistical methods are already evaluated in the literature. Desroziers et al. (2005) have proposed an estimation based on the observation and analysis residual statistics. By assuming Gaussian errors and no correlations between observation and background errors, the error covariance matrix is provided by the statistical average of observation-minus-background times the observation-minus-analysis residuals. This method has been used in many studies to estimate the observation errors and inter-channel error correlations (Garand et al., 2007; Weston et al., 2014; Bormann et al., 2016; Tabcart et al., 2020; Coopmann et al., 2020).

In the present work, we estimate observation errors and their inter-channel correlations for IASI using the Desroziers method. We evaluate, then, their impact on ozone assimilation in a CTM (MOCAGE). The paper is organized as follows. The CTM, the radiative transfer model, the assimilation algorithm, the data, and the experimental framework are described in Sect. 2. The estimation of \mathbf{R} is discussed in Sect. 3. Then, the impact on data assimilation is reported in Sect. 4, and validation against independent data is discussed in Sect. 5. Finally, the summary and conclusions are given in the last section.

2 Methods and data

2.1 Methods

2.1.1 Chemistry transport model

MOCAGE (Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle) is the CTM used in this study. It is a three-dimensional CTM providing the space and time evolution of the chemical composition of the troposphere and the stratosphere. Developed by Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) at Météo France (Josse et al., 2004), it was used for a large number of applications such as satellite ozone assimilation (Massart et al., 2009; Emili et al., 2014), climate (Teyssède et al., 2007), and air quality (Martet et al., 2009). MOCAGE provides a number of optional configurations with varying domains, geometries, and resolutions, as well as multiple chemical and physical parametrization packages.

A global configuration with a horizontal resolution of 2° and 60 hybrid levels from the surface to 0.1 hPa was used. The vertical resolution goes from about 100 m in the boundary layer to about 500 m in the free troposphere and to almost 2 km in the upper stratosphere. MOCAGE is forced by meteorological fields from numerical weather prediction mod-

els such as the Météo France global model ARPEGE (Action de Recherche Petite Echelle Grande Echelle, (Courtier et al., 1991)), limited-area model AROME (Application de la Recherche à l'Opérationnel à Méso-Echelle), and ECMWF NWP model and assimilation system (Integrated Forecast System, IFS) for air quality predictions and ARPEGE-Climat (Déqué et al., 1994) for climate simulations. In our study, the ECMWF IFS meteorological forecasts fields are used. For the chemical scheme, we adopted RACMOBUS, which bundles the stratospheric scheme (Lefèvre et al., 1994) and the tropospheric scheme (Stockwell et al., 1997), including about 100 species and 300 chemical reactions.

2.1.2 Radiative transfer model

Remote sensing instruments measure, within a certain wavelength range, the intensity of electromagnetic radiation passing through the atmosphere (radiances). Radiative transfer models are used to simulate the radiation measured by the satellite as a function of atmospheric state, to be able to compare the model state to the observed radiances.

In our study, IASI radiances are simulated using the radiative transfer model RTTOV (Radiative Transfer for TOVS), which was initially developed for TOVS instruments (Saunders et al., 2018). Giving an atmospheric profile of temperature, water vapour, and, optionally, trace gases, aerosols, and hydrometeors, together with surface parameters and a viewing geometry, RTTOV simulates radiances in the infrared and microwave spectrum. For IASI, it can reproduce radiances with an accuracy of less than 0.1 K (Matricardi, 2009). In this paper, we use the same version used by Emili et al. (2019), i.e. version 11.3 (Saunders et al., 2013). The radiative transfer computations are performed in clear-sky conditions and aerosols are neglected. The surface skin temperature, 2 m temperature, 2 m pressure, and 10 m wind vector are taken from IFS forecasts. The land surface emissivity is based on the RTTOV monthly thermal infrared (TIR) emissivity atlas (Borbas and Ruston, 2010), and the Infrared Surface Emissivity Model (ISEM) (Sherlock, 1999) is used over the sea. Other chemical variables (CO_2 , CH_4 , CO , N_2O) were set to the reference profiles of RTTOV.

2.1.3 Assimilation algorithm

The variational data assimilation system of MOCAGE was developed jointly by CERFACS and Météo France in the framework of the European project ASSET (Assimilation for Envisat data) (Lahoz et al., 2007). It has been used in several studies such as chemical data assimilation research (Emili et al., 2014; Massart et al., 2009), aerosol data assimilation (Sič et al., 2015), and tropospheric–stratospheric exchange using data assimilation (El Amraoui et al., 2010). The MOCAGE data assimilation system is flexible and allows multiple assimilation options, for example, the choice of the variational method (3D-Var, 4D-Var), the representa-

tion of the background-error covariance, and the type of observation assimilated. It is also used to produce operational air quality analyses for the European project CAMS (Marécal et al., 2015).

The background-error covariance matrix is divided into two distinct parts, the diagonal matrix of the standard deviations and the correlation matrix. The latter, allowing the spatial smoothing of the assimilation increments, is modelled through a diffusion operator (Weaver and Courtier, 2001).

The 3D-Var implementation has been used with hourly assimilation windows. The variational cost function is minimized using the BFGS (Broyden–Fletcher–Goldfarb–Shanno) algorithm (Liu and Nocedal, 1989). The system is preconditioned with the square root of the **B** matrix. The control vector includes only skin surface temperature (SST) and ozone.

As we mentioned before, the aim of this work is to evaluate the impact of the estimated observation-error covariances on the ozone analysis. Hence, in order to be able to compare our results to those that have already been discussed and validated, we kept exactly the same configurations as those used in Emili et al. (2019) in terms of model, radiative transfer, and assimilation algorithm parameters. The summary of these configurations is given in Table 1.

2.2 Data

2.2.1 IASI

IASI is one of the instruments operating on board the polar-orbiting satellite Metop-A, B, and C launched by the European organization for the Exploitation of Meteorological Satellites (EUMETSAT). It is based on a Fourier transform spectrometer (FTS) and measures the spectrum emitted by the Earth atmosphere system in the spectral range between 645 and 2760 cm^{-1} (3.62 and $15.5\text{ }\mu\text{m}$) with a resolution of 0.5 cm^{-1} after apodization, with a spectral sampling of 0.25 cm^{-1} . IASI scans the Earth up to an angle of 48.3° on both sides of the satellite track. The cross-track is observed in 30 successive elementary fields of view, each composed of four instantaneous fields of view corresponding to a 12 km diameter footprint on the ground (Clerbaux et al., 2009). The swath width on the ground is 2200 km, which provides global Earth coverage twice a day. The measurements provide information on atmospheric chemistry compounds such as O_3 , surface properties (skin surface temperature, SST), and meteorological profiles (humidity and temperature).

For this study, a subset of 280 channels covering the spectral range between 980 and 1100 cm^{-1} was used. The channel selection is inherited from IASI Level 2 O_3 retrievals (Dufour et al., 2012; Emili et al., 2019). L1c data have been downloaded from the EUMETSAT Earth Observation data portal (<https://eoportal.eumetsat.int>, last access: 1 May 2020) in NetCDF format. Data files also contain the co-located land–sea mask and cloud fraction values, obtained from the

Advanced Very High Resolution Radiometer (AVHRR) measurements, also on board Metop-A.

2.2.2 MLS

The Microwave Limb Sounder (MLS) provides vertical profiles of several chemical components, by measuring the microwave thermal emission from the limb of Earth's atmosphere (Waters et al., 2006). More than 2500 vertical profiles are observed daily, including trace gases with a vertical resolution of approximately 3 km. Several studies benefited from MLS products, notably the ozone profiles in assimilation experiments (Emili et al., 2014; Massart et al., 2009), thanks to its low bias in the stratosphere (< 5 %) (Froidevaux et al., 2008).

In our study, we use the ozone profiles retrieved from MLS (V4.2 Products) as independent data to validate our results. The data have been downloaded from the Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center (GES DISC) web portal (<https://disc.gsfc.nasa.gov>, last access: 1 May 2020).

2.2.3 OMI

The Ozone Monitoring Instrument (OMI) is a nadir-viewing, ultraviolet–visible (UV-VIS) spectrometer (Levelt et al., 2018). It provides complete global maps of total column ozone on a daily basis. The OMI ozone data record starts in October 2004, shortly after the launch of Aura (McPeters et al., 2015). The total column averaged over the month of the study (July 2010), resulting from the OMI-TOMS version 8 algorithm (Bhartia, 2002), is used here to validate the results of the assimilation experiments.

2.2.4 Ozonesondes

Ozonesondes are in situ instruments carried by a radiosonde continuously transmitting the measurements as it ascends. The profiles of O₃ are provided up to an altitude that often exceeds 30 km (Jiang et al., 2007) with a vertical resolution of 150–200 m. They have been used for several applications such as validating satellite products (Jiang et al., 2007). In our study, vertical profiles of ozone, collected and distributed by the World Ozone Ultraviolet Radiation Data Centre (<http://www.woudc.org>, last access: 1 May 2020), are used to validate the model simulations.

2.3 Setup of the numerical experiments

The main purpose of this study is to estimate the IASI observation-error covariances and verify their impact on the quality of the ozone assimilation results. The setup of the experiment in terms of the period of the study, the model configuration, the choice of assimilated observations, and the background-error covariance matrix is reported in Table 1.

The observation-error covariance matrix will be discussed in the results section (Sect. 3).

The model was initialized with a zonal climatology, and the spin-up time used is 1 month (June 2010). Then, our simulations were performed for the month of July 2010. The ozone forecast-error standard deviation was assumed to be proportional to the ozone concentration. In fact, Emili et al. (2019) have evaluated the standard deviation of the free model simulation against independent data (profiles from ozonesondes and MLS), and they found a small free forecast error in the stratosphere, larger error in the free troposphere, and the highest error close to the tropopause. This strategy was adopted previously by many studies (Emili et al., 2014; Peiro et al., 2018; Emili et al., 2019). Emili et al. (2014) and Peiro et al. (2018) have used a percentage of 15 % in the troposphere and 5 % in the stratosphere. In this study, we have adopted a detailed chemical scheme (discussed in Sect. 2.1.1). This scheme was shown to reduce the model bias compared to the scheme used in Emili et al. (2014) and Peiro et al. (2018) (see Fig. 4 in Emili et al., 2019). Hence, we chose the same background error as in Emili et al. (2019): 2 % of the O₃ profile above 50 hPa and 10 % below. An important reason to keep the background errors similar to the setup of Emili et al. (2019) is also that we wanted to exclusively examine the impact of **R**, as mentioned in the introduction.

The ozone background-error covariance matrix is split into a diagonal matrix filled with the standard deviation and a correlation matrix modelled using a diffusion operator. The correlation, characterized by the length scale, spreads the assimilation increments in space. The configurations of horizontal and vertical length scales are described in Table 1.

The same preprocessing described in Emili et al. (2019) has been applied to our data before their use in the assimilation system. In order to avoid any contamination from clouds, data were filtered using a cloud mask, and only pixels with cloud fraction less than or equal to 1 % were kept. The cloud fraction values are obtained from the AVHRR measurements on board Metop-A. Since the spatial resolution of MOCAGE is coarser than the pixel size, the number of ground pixels was reduced by thinning the data using a grid of 1° × 1° resolution and only keeping the first pixel that falls in every two grid boxes. A dynamical rejection of observations – with a threshold of 12 % – based on the relative differences between simulated and measured values with respect to simulated values was considered. Some channels affected by H₂O absorption (1008–1019, 1028–1030, 1064–1067, 1072–1076, 1089–1092 cm⁻¹) were removed. Pixels affected by aerosols are detected and then removed using the index based on V-shaped sand signature as discussed in Emili et al. (2019).

Table 1. Summary of the configuration of the MOCAGE assimilation system.

Parameter	Configuration in the assimilation system
Period of the study	July 2010
Assimilation algorithm	Hourly 3D-Var
Radiative transfer model	RTTOV v11.3
Spectral window	980–1100 cm ⁻¹ of IASI from Metop-A
Ozone background	Hourly 3D forecasts of MOCAGE
SST prior information	ECMWF IFS forecasts
Control vector	O ₃ and SST
T, H ₂ O fields	ECMWF IFS forecasts
IR emissivity	TIR atlas emissivity over land and ISEM model over sea
Observation-error covariance	Both Desroziers method and the setup of Emili et al. (2019)
SST background-error standard deviation	4 °C
O ₃ background error	Vertically variable and computed as percent of the background profile (using a value of 2 % above 50 hPa and 10 % below)
O ₃ background-error zonal correlation	Exponential with a length scale set to 200 km and reduced towards the pole to account for the increasing zonal resolution of the regular latitude–longitude grid
O ₃ background meridional error correlation	Exponential with a length scale set to 200 Km
O ₃ background-error vertical correlation	Exponential with a length scale set to one grid point (vertical level)

3 R estimation

3.1 Desroziers diagnostics

The observations used in the assimilation system could have a margin of error. We can identify two types of errors, systematic and random errors. The systematic error is ordinarily corrected before the data assimilation process. In NWP, these types of errors in satellite observations are in general corrected before assimilating the observations or within the data assimilation process by the VarBC scheme (Auligné et al., 2007). The key assumption is that the background state provided by the NWP system is unbiased. This assumption is not valid in atmospheric chemistry applications, where models might have significant biases, which is the case in our study (see Fig. 4 in Emili et al., 2019). In such a case, VarBC requires some independent data (anchor) to prevent the drift of the analyses to unrealistic values that might be introduced by the model bias. In our case, we control tropospheric and stratospheric ozone. Identifying an anchor needs to be investigated carefully. Ozonesondes might be used as an anchor in the troposphere and low stratosphere, but the number of profiles provided is limited spatially and temporally. This might

have an impact on the capacity of ozonesonde measurements to prevent the drift of the analyses due to the model bias. Han and McNally (2010) used IASI channel 1585 as an anchor in the assimilation of ozone for NWP. Dragani and McNally (2013) have used the same uncorrected channel as an anchor, and they showed that its impact was not sufficient to stabilize the bias correction process for a long period. This aspect needs to be explored carefully in a separate study. On the other side, a good understanding of sources of the measurement bias is a prerequisite to implement a bias correction scheme. VarBC in NWP applications, for instance, needs to define a linear model with some predictors (Auligné et al., 2007). Before adapting this approach in an atmospheric chemistry framework, the possible sources of systematic errors in the IASI ozone window need to be assessed.

In atmospheric chemistry, we used to assimilate level 2 products of ozone (Massart et al., 2012; Emili et al., 2014; Peiro et al., 2018). Only recently has the direct assimilation of IASI radiances been introduced in our chemistry transport model (Emili et al., 2019). Implementing a bias correction scheme requires careful diagnosis of the bias from observation monitoring. On the other hand, choosing an anchor de-

mands particular care, and the choice depends on the full set of assimilated instruments. In this work, which is not based on a preexisting operational setup, we do not assimilate other ozone instruments. Thus, we had to assume that our observations are unbiased and we did not perform any bias correction. This assumption has been adopted in many chemical analysis studies (e.g. Massart et al., 2012; Peiro et al., 2018; Emili et al., 2019).

Random errors can arise from the measurements (e.g. instrumental error), forward model, representativeness error (e.g. difference between point measurements and model representation), or quality control error (e.g. error due to the cloud detection scheme missing some clouds within clear-sky-only assimilation). These types of errors should be accounted for by the observation-error covariance matrix \mathbf{R} . According to Weston et al. (2014), the instrument noise could be assumed to be uncorrelated. However, the IASI measurements are apodized, which may introduce correlations between neighbouring channels, particularly in our case where we are assimilating a subset of adjacent channels. The radiative transfer model may also introduce correlations between channels. The error statistics from the instrument noise are known, while the characteristics of other sources of error are not yet well understood.

In this paper, we estimate the total error using the statistical approach introduced by Desroziers et al. (2005).

$$\mathbf{R} = \mathbf{E}[(\mathbf{y} - \mathbf{H}(\mathbf{x}_a))(\mathbf{y} - \mathbf{H}(\mathbf{x}_b))^T] \quad (1)$$

Here \mathbf{x}_a is the analysis state vector, \mathbf{x}_b is the background state vector, \mathbf{y} is the vector of observations, and \mathbf{H} is the observation operator that computes model counterpart in the observation space.

This method has been used to estimate observation errors and inter-channel error correlations (Stewart et al., 2009; Bormann et al., 2016; Tabcart et al., 2020; Coopmann et al., 2020). It can potentially provide information on imperfectly known observation and background-error statistics with a nearly cost-free computation (Desroziers et al., 2005). However, this approach assumes that the \mathbf{R} and \mathbf{B} matrices used to produce the analysis are exactly correct, which is almost never the case in practice. Furthermore, Desroziers diagnostics compute the total covariances, but more efforts are needed to understand and distinguish the sources of the error.

3.2 Error results

The Desroziers method was computed on the output of a 3D-Var experiment using a diagonal matrix \mathbf{R} (with a standard deviation of $0.7 \text{ mW m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ cm}$ as in Emili et al. (2019)). The diagnosed \mathbf{R} could not be used directly in the assimilation system. In fact, the estimated matrix was asymmetric and not positive definite. Similar unrealistic features in the diagnosed covariance matrices were encountered in Stewart et al. (2014) and Weston et al. (2014), where an arti-

cial inflation of observation errors was applied. \mathbf{R} needs to be a valid covariance matrix before being used in the 3D-Var assimilation system. Therefore, we first symmetrize the estimated matrix by taking the mean of the original matrix and its transpose. Then we impose the negative eigenvalues to be equal to the smallest positive eigenvalue as in Weston et al. (2014) and Tabcart et al. (2020). Another method which consists of increasing all eigenvalues of \mathbf{R} by the same amount was tested here to recondition the estimated matrix. We favoured the first method since the standard deviation and the correlation values remain closer to the initially estimated quantities.

Using outputs (analyses and forecasts) derived from a 3D-Var experiment that used a diagonal \mathbf{R} matrix (hereafter called the first 3D-Var experiment) in the estimation process might have an impact on the diagnosed \mathbf{R} matrix. The matrix derived using these outputs is hereafter called the first estimation. We performed another 3D-Var experiment (second 3D-Var experiment) using the first estimation. The outputs (analyses and forecasts) of this experiment (second 3D-Var experiment) were used to estimate another \mathbf{R} matrix called the second estimation. The standard deviation of the second estimation is larger than that of the first estimation (not shown). The same goes for correlations (not shown). It should be noted that the second estimation was positive definite, unlike the first estimation where some unrealistic features were encountered. We have followed the same process to further estimate two other matrices (third and fourth estimations). The differences of the estimations in terms of standard deviation and correlations became smaller as we reestimated the matrices, suggesting a sort of convergence of the estimation. We have adopted the second estimation for the results shown in this work. The reason for this choice will be discussed later (Sect. 5.2).

Figure 1 presents the standard deviation diagnosed using the Desroziers approach (solid black line) and that used in Emili et al. (2019) (dotted blue line). The latter was set equal to $0.7 \text{ mW m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ cm}$ for all channels, which is a common setting for most IASI O_3 retrievals (Dufour et al., 2012). At first glance, we note that the standard deviation used in previous studies is highly underestimated for the SST-sensitive channels and overestimated for some ozone-sensitive channels (around 1040 and 1050 cm^{-1}). The diagnosed standard deviation increases to reach $2 \text{ mW m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ cm}$ for SST-sensitive channels (the first and the last 20 channels of the band ($980\text{--}1000 \text{ cm}^{-1}$ and $1080\text{--}1100 \text{ cm}^{-1}$) and the channels between 1040 and 1045 cm^{-1}) and varies from 0.2 to $1.4 \text{ mW m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ cm}$ for the ozone-sensitive channels. The radiance values for the observations are greater for the SST channels than those of the ozone. The same goes for the corresponding background and the analysis values. Since these diagnostics are based on observation, background and analysis residuals, a larger standard deviation for the SST channels than for ozone channels might be expected. We have plotted the \mathbf{R} standard deviation, the average of observations, and the

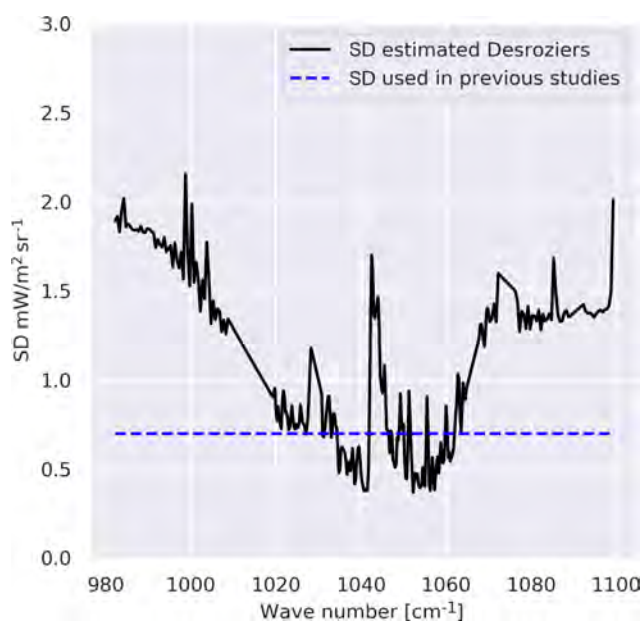


Figure 1. Standard deviation estimated using the Desroziers method (solid black line) and that used in the previous studies (blue dotted line) (Emili et al., 2019).

average of the background in the observation space on the same figure (not shown). We have noticed that the estimated standard deviation has a very similar shape to that of the observed radiances or the equivalent of the background in the observation space. This may suggest that the larger absolute error in the SST band compared to the ozone channels might be explained by the large values of the observation and the background for the SST channels in comparison with respect to the ozone channels. It could also be attributed to greater sensitivity to emissivity and representativity error.

The IASI instrumental error is provided by the CNES (Centre National d'Etudes Spatiales), taking into account different known effects such as flight homogeneity and apodization effect (Le Barbier Laura, personal communication). The instrumental error covariance matrix is computed as described in Serio et al. (2020). This error remains smaller (about $0.2 \text{ mW m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ cm}$) than that used in the previous studies ($0.7 \text{ mW m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ cm}$). Then, the large estimated standard deviation noticed in our estimation might be due to the radiative transfer input error.

To investigate the off-diagonal part of \mathbf{R} , we present the diagnosed correlation matrix in Fig. 2. The results show high correlations between the majority of the channels (larger than 0.4). In particular, a very high correlation is observed among SST-sensitive channels (around 0.9 to 1). The regions of, relatively, lower correlation (around 0.4 to 0.7) represent the ozone channel correlations and cross correlation between ozone- and SST-sensitive channels.

The high correlation found here was expected since previous studies have highlighted the same behaviour in this

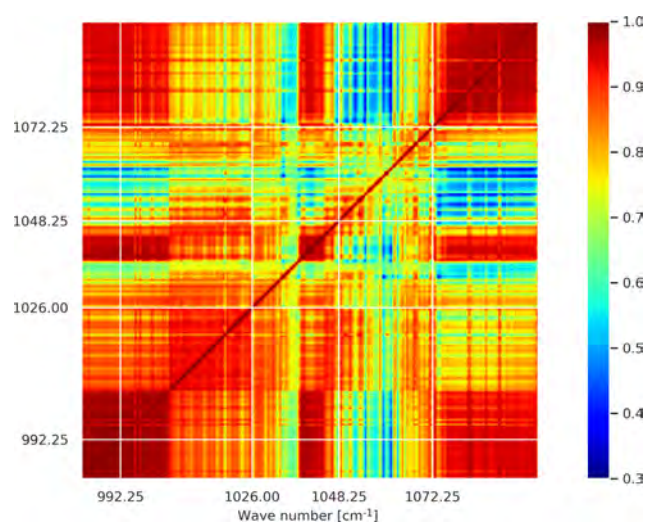


Figure 2. Correlation matrix estimated using the Desroziers method.

spectral region (Bormann et al., 2010; Stewart et al., 2014; Bormann et al., 2016). In fact, the use of the same radiative transfer model for all channels may introduce similar errors among these channels.

The diagnostic discussed above is based on a global estimation, without any distinction between the type of the surface (land or sea) or the time of the observation (day or night). Since the emissivity varies according to the type of the surface, and the skin temperature is strongly driven by the sun radiation, we evaluated \mathbf{R} taking these differences into account. In terms of standard deviation, the error over land reveals large values for the SST-sensitive channels in comparison with that estimated over the sea which, in turn, reproduces a slightly different error in comparison with the global estimation (not shown). The two surfaces also introduce a slightly different error regarding the ozone band. The same behaviour as the global estimation is reproduced when the statistics were performed from the data measured separately from the day and from the night. The variability in terms of correlations is more pronounced when the surface type is considered than in the case of the observation time. The difference between the correlations estimated using all observations and pixels over the sea surface varies between 0% and 40% for the majority of the channels with values that can reach 60%. These differences are located around 1035 and 1060 cm^{-1} , which correspond to the regions of low correlations (not shown).

The separate treatment of land–sea covariance matrices did not yield significant differences in terms of assimilation results compared with the use of global estimation. Hence, we have adopted the global estimation in our study. The rationale for this choice will be given during the discussion of the validation results (Sect. 5.2).

4 Assimilation results

4.1 Ozone fields

In this section, we discuss the impact of the observation-error covariances estimated previously on the ozone analysis. To this end, three experiments for the month of July 2010 were carried out:

- (i.) model run without data assimilation hereafter called the free run (or Control), and denoted in the rest of this paper as ControlExp;
- (ii.) 3D-Var assimilation of IASI radiances using a diagonal observation-error covariance matrix (as in Emili et al. (2019)), referred to here as RdiagExp;
- (iii.) 3D-Var assimilation of IASI radiances using a full matrix estimated with the Desroziers diagnostic denoted hereafter as RfullExp.

The first experiment (ControlExp) was run to evaluate the benefit of the assimilation experiments and to quantify the improvements of each of the two analyses when they are validated against independent data. The same setup of Emili et al. (2019) was adopted for RdiagExp, which was taken as a reference to characterize the impact of accounting for the estimated \mathbf{R} in the third simulation (RfullExp).

Figure 3 shows the difference between the zonal average of the ozone analysis from the two assimilation experiments in units of parts per billion volume (ppbv). The zonal values were averaged over the month of the study before performing the difference. The impact of the estimated \mathbf{R} varies with latitude. It also varies with the height, adding or reducing the amount of ozone. Overall, the estimated \mathbf{R} reduces the amount of ozone in the high latitudes of the free troposphere and the tropical high stratosphere, whereas the amount is increased in the vicinity of the lower stratosphere. The maximum reduction of ozone is larger than the amount added. The amount of ozone reduction reaches 600 ppbv, whereas the increase does not exceed 300 ppbv. In high northern latitudes (30–90° N), a significant addition is found (300 ppbv) covering almost the whole stratosphere, in opposition to the other latitudes where the difference changes sign with altitude. On the other hand, a large reduction of ozone is observed in the tropics at 20 hPa (more than 600 ppbv). We have performed a t test to evaluate the significance of these differences between the two experiments in terms of zonal averages. These were obtained by averaging the analysis over the month of the study and over longitudes. We have used the standard deviation computed for each average to perform our test. We have noticed that the majority of regions, especially where the differences are large (between 300 and 10 hPa), are statistically significant (not shown). To better understand the impact of the estimated \mathbf{R} , we validate the results with independent data in the section of validation (Sect. 5).

4.2 Surface skin temperature

The assimilated spectra include channels sensitive to both ozone and surface skin temperature. The IFS skin temperature was taken as a background in the assimilation process. We have computed the difference between the SST analysis and the background at the end of each assimilation experiment (RdiagExp and RfullExp). The skin temperature is physically linked to the ozone measured. In fact, the skin temperature interacts with the ambient atmosphere. An increase in SST can for example create a convective movement impacting the transport of the ozone. However, the skin temperature is given only at the observation location in this study, and it is specified with values interpolated from NWP forecasts (IFS), whereas ozone is a 3D field issued from the chemistry transport model. Hence, the estimation and potential account of error correlations between the two variables seem challenging in our system. In this work, we did not consider the background-error correlation that might exist between O_3 and SST.

Figure 4a shows the difference between the analysis of the SST given by RdiagExp and the IFS SST forecast, whereas Fig. 4b shows the difference between the analysis of the SST given by RfullExp and the IFS SST forecast. In terms of geographical distribution, we notice that the differences are smaller through the tropics and mid-latitudes, especially over sea, when the estimated \mathbf{R} was adopted. Looking at the average values, RdiagExp decreases the surface skin temperature by about 0.55 °C with respect to the background. The introduction of the estimated \mathbf{R} decreases the difference between the SST analysis and that of IFS to almost –0.18 °C instead of –0.55 °C. The standard deviation was also reduced from 1.39 to 1.05 °C. Thus, the use of the estimated \mathbf{R} lets the SST analysis stay closer to the IFS forecasts. However, there is an increase in difference on land using RdiagExp, mainly in Africa and South America. This increase in difference over the land seems related to the dependence of observation errors on the surface. In fact, the number of observations over the sea represents almost 70 % of the total observations we have used in this study. Consequently, our SST analysis stays closer to background values (IFS forecasts) over the sea than over the land.

4.3 Computational cost

In our assimilation setup, the cost function is minimized hourly. For each window, the minimizer needs to converge after a certain number of iterations. The cost of each iteration is dominated by the cost of the radiative transfer operators (tangent linear, the adjoint model) and of the background-error covariance operators. When the observation error was assumed to be uncorrelated (RdiagExp), the number of iterations needed for each hourly cycle is significantly higher than when the estimated observation-error covariance matrix is used. In fact, the introduction of the estimated \mathbf{R} reduces

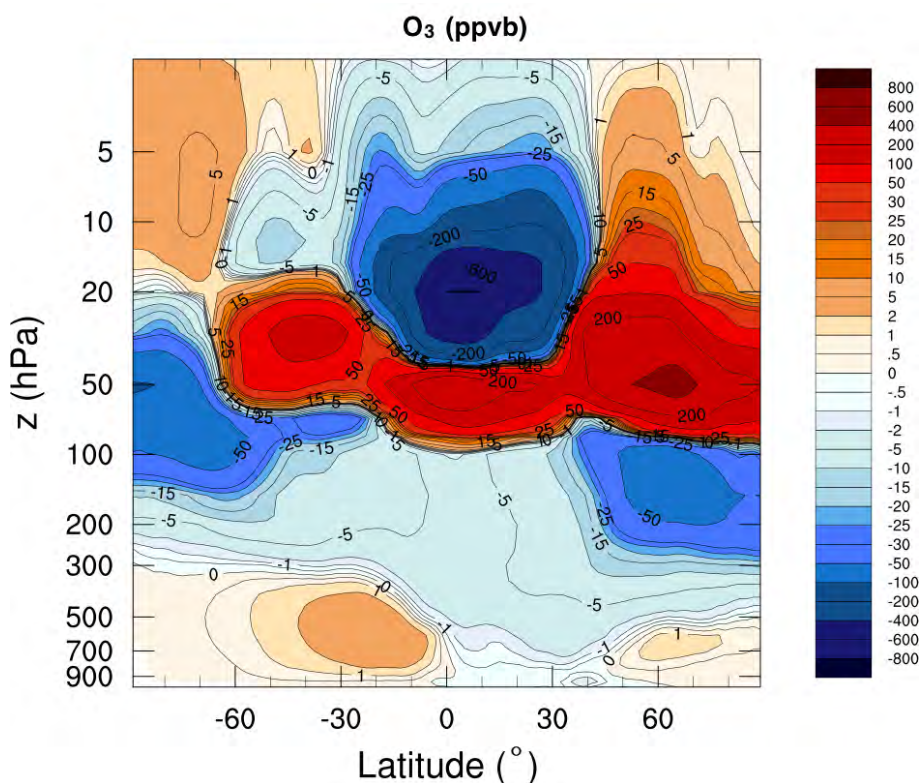


Figure 3. The difference between the zonal average of the analysis (ppvb) from the two assimilation experiments, averaged over the month of the study (nonlinear colour map).

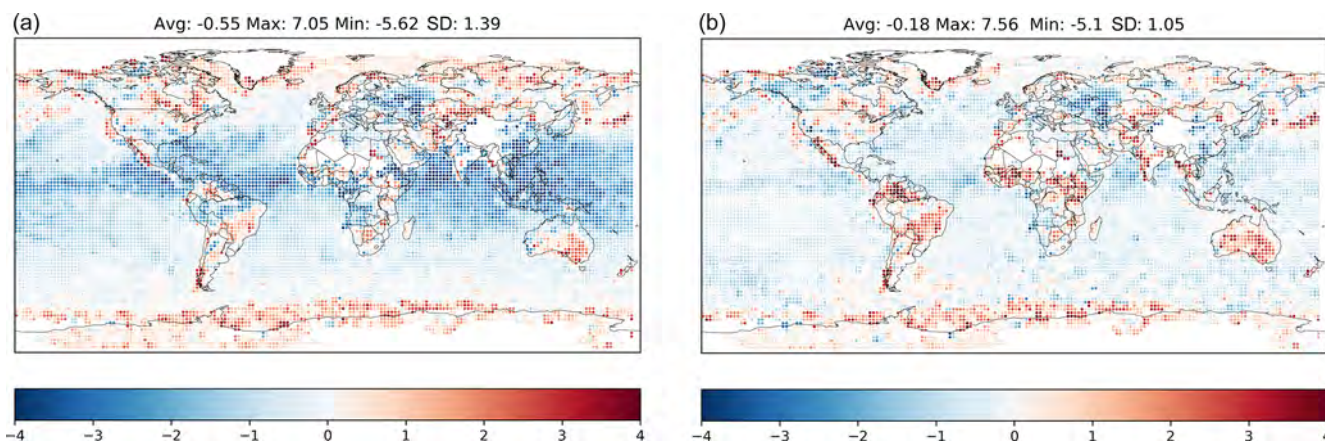


Figure 4. Difference ($^{\circ}\text{C}$) between the IFS SST forecast and the analysis of the SST given by RdiagExp (with a diagonal matrix) (a) and that given by RfullExp (with a correlated matrix) (b) averaged by a box of 2° .

the number of iterations from 150 (a fixed value to stop iterations if the convergence criteria were not attained to save computational time) to 89 iterations on average. This means that the CPU time is reduced by more than 150 % for each assimilation cycle. The convergence criteria of the BFGS algorithm are based on either the reduction of the cost function or the norm of its gradient below some given small thresholds. For the RfullExp, the convergence is achieved due to the sta-

tionarity of the cost function (first criterion). The widespread correlations (high condition number) and larger variance of the estimated \mathbf{R} matrix lead to a downweight of the observations and are likely the reason for the improved convergence in RfullExp. This increase in the convergence speed was encountered in the Met Office 1D-Var system (Tabcart et al., 2020) where a correlated observation matrix was introduced in the system. Moreover, in Tabcart et al. (2018) the matrix

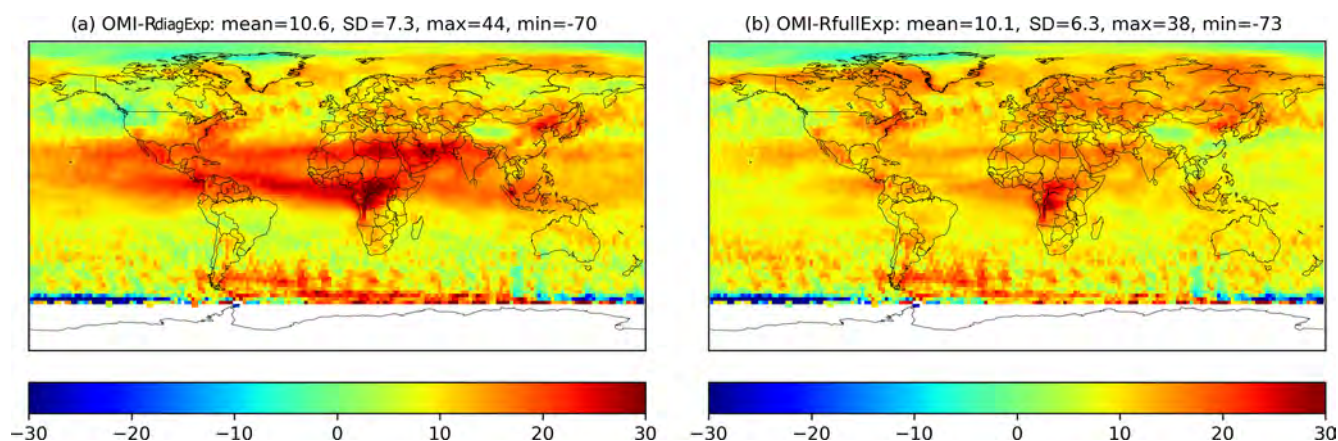


Figure 5. (a) Difference of the ozone total column (DU) provided by OMI and that of the assimilation experiment RdiagExp (b) and that of RfullExp, averaged over the month of the study.

\mathbf{R} and the observation-error variance appear in the expression of the condition number of the Hessian of the variational assimilation problem, indicating that these terms are important for convergence of the minimization function.

In an attempt to distinguish the impact of the variance on the convergence speed from that of the correlations, we have performed three assimilation experiments using different \mathbf{R} matrices. The first experiment (first experiment) employed \mathbf{R} that was estimated from the analysis computed using a diagonal \mathbf{R} matrix. The minimizer takes 149 iterations on average to converge (average computed for all the assimilation cycles of the month). We used the analysis given by the first experiment to estimate another \mathbf{R} matrix. We have used this estimation to run another assimilation cycle (second experiment). We have noticed that the minimizer needs about 89 iterations on average. We have modified the \mathbf{R} matrix of the first experiment by keeping its correlations and replacing its standard deviation with that of \mathbf{R} used in the second experiment. The resulting matrix was used to run a third assimilation experiment. The minimizer needs about 90 iterations to converge. The results of the third experiment seem to suggest that updating the variance has a larger impact on the convergence speed.

5 Validation of O_3 analyses

5.1 Total column

Figure 5 shows the difference of the ozone total column (in Dobson units (DU)) provided by OMI and that of RdiagExp (a) and that of RfullExp (b). At first sight, we note smaller differences over the tropics between the OMI total column and the total column given by RfullExp in comparison with that given by RdiagExp. This behaviour was expected since a large reduction of the amount of ozone was observed in these regions (see Fig. 3). In the high northern latitudes, the differ-

ences were slightly increased when the estimated matrix was adopted. This is a consequence of the increase in the amount of ozone encountered in these regions in the stratosphere, compared to the amount reduced in the same region in the troposphere (Fig. 3). On the other hand, the global mean and the standard deviation of these differences are lower in the case of using the new estimated matrix (10.1 DU as a mean and 6.3 as a standard deviation when the new estimated matrix was used instead of 10.6 DU as a mean and 7.3 as a standard deviation when a diagonal matrix was used). Hence, we conclude that the estimated matrix \mathbf{R} has slightly improved the results in terms of ozone total columns.

5.2 Vertical validation

In this section, we validate the two simulations against radiosoundings and MLS data. We use the root-mean-square error (RMSE) as the main statistical indicator to quantify the accuracy of the experiments.

We compute the relative (to the control simulation) difference of RMSE with respect to radiosoundings and MLS averages globally and for five different latitude bands. The difference is computed by subtracting the RMSE of each experiment from that of the control simulation. Negative values indicate an improvement of the O_3 profiles. It should be noted that the representativeness of the statistics given by the MLS in the stratosphere is better than that of the radiosoundings because the number of profiles provided by MLS is much higher compared to the radiosounding ones. Consequently, higher confidence is given to the validation using the MLS data in the stratosphere.

Figure 6 reports the RMSE differences with respect to the radiosoundings. Considering the global RMSE (ALL), we notice that the experiment with the estimated matrix improves the results above 150 hPa, around 400 hPa, and near the surface. However, it also reduces the improvement from 30 % (the case of using a diagonal matrix) to 15 % in the

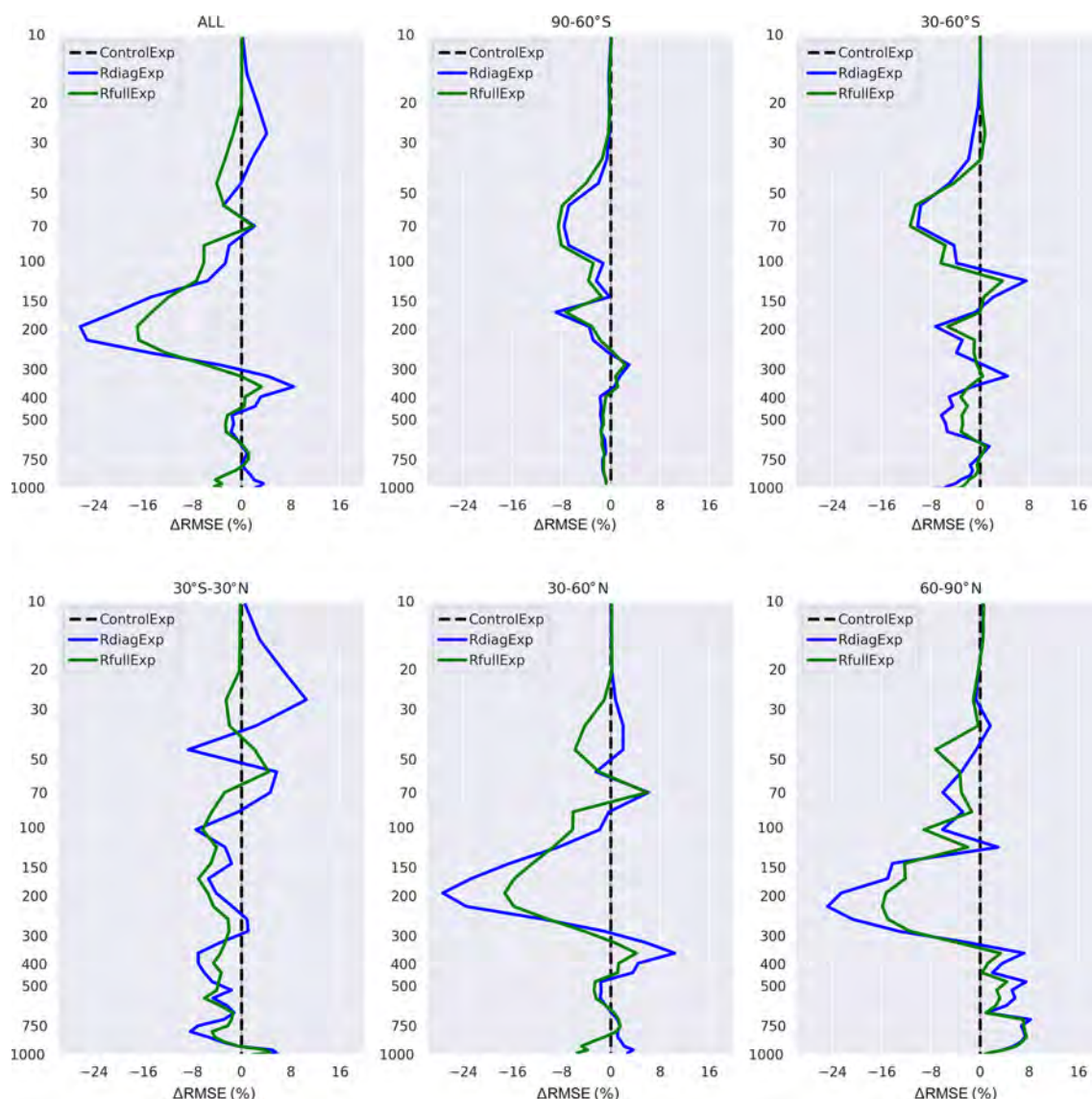


Figure 6. Normalized difference of the RMSE with respect to the ozonesondes for the \mathbf{R} estimated (green) and \mathbf{R} diagonal (blue). The difference of the RMSE was computed by subtracting the RMSE of the analysis from the RMSE of the control for each experiment, divided by the average profile of the ozonesondes. Negative values mean that the assimilation improved (decreased) the RMSE of the control simulation, and positive values indicate degradation (increase) of the RMSE (vertical levels are in hectopascals).

vicinity of the upper troposphere–lower stratosphere (UTLS, 100–300 hPa).

The issue of increasing the ozone analysis errors compared to the control simulation encountered in Emili et al. (2019) is especially severe in the tropics (30° S–30° N). The use of the estimated \mathbf{R} has substantially enhanced the results in this latitude band, bringing the error from +15 % to –2 %. Apart from the vicinity of 50 and 400 hPa, the results in the tropics were improved over the entire vertical profile. Regarding other latitude bands, almost the same feature of the global validation is found in the Northern Hemisphere. The two experiments show almost the same behaviour in the south-

ern latitudes, with a slight improvement for RfullExp in the southern high latitudes (60–90° S).

The MLS validation in Fig. 7 shows almost the same behaviour reported by radiosounding validation in the tropical stratosphere, where the reduction of error is remarkable. In the other latitude bands, MLS reports a similar behaviour of the two experiments, with some small differences in the Northern Hemisphere.

To evaluate the significance of the differences between the analyses of the two experiments with respect to MLS and ozonesounding measurements, we have performed the t test of the differences between analyses and observations (ozonesondes then MLS). We have noticed that for the

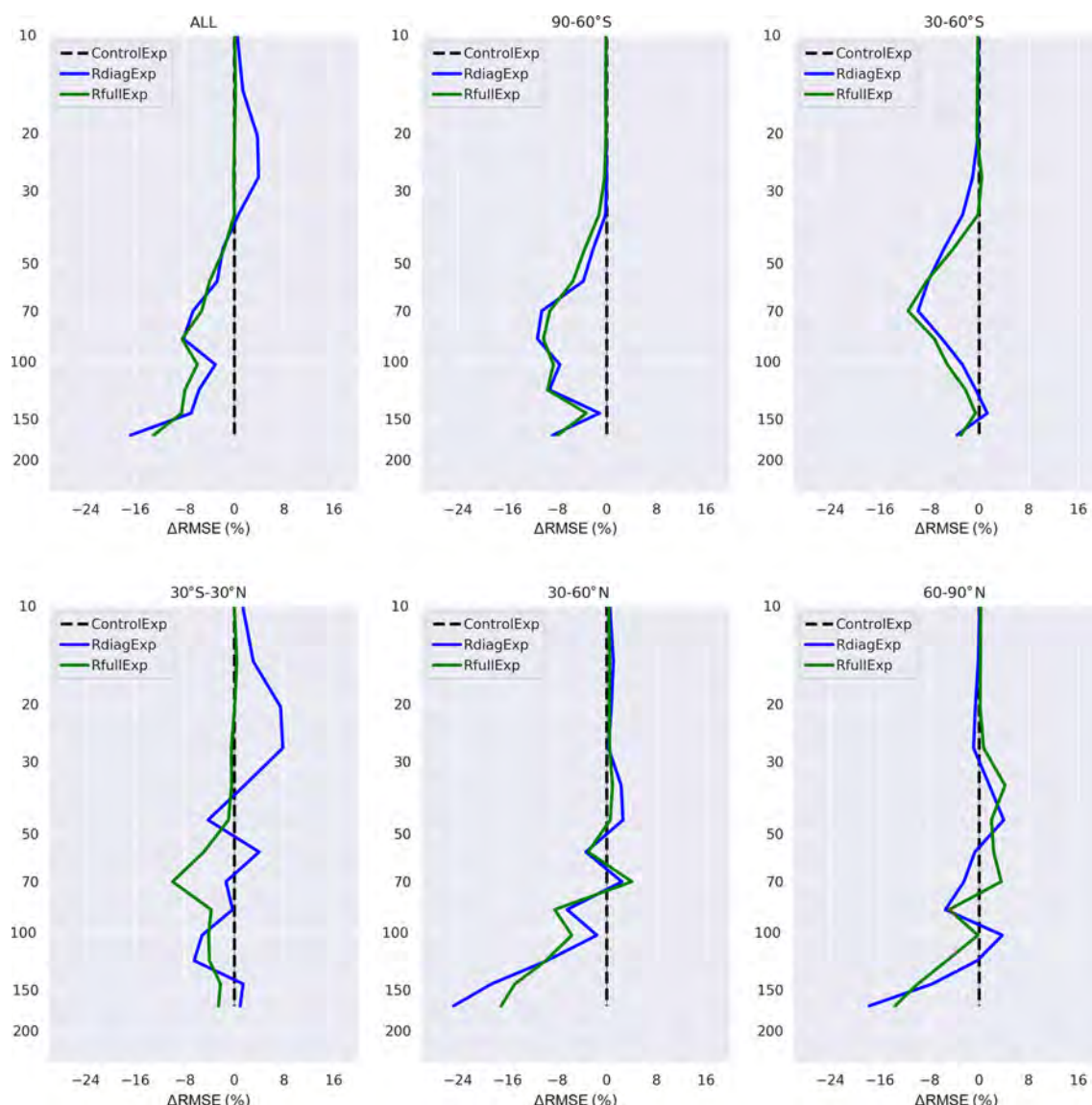


Figure 7. Normalized difference of the RMSE with respect to the MLS for the R estimated (green) and R diagonal (blue). The difference of the RMSE was computed by subtracting the RMSE of the analysis from the RMSE of the control of each experiment, divided by the average profile of the MLS. Negative values mean that the assimilation improved (decreased) the RMSE of the control simulation, and positive values indicate degradation (increase) of the RMSE. (Vertical levels are in hectopascals.)

ozonesoundings, the significance differs among vertical levels. The reduction of the error between 20 and 50 hPa and between 300 and 400 hPa reported in Fig. 6 is statistically significant. For the low troposphere the differences are not significant. Unlike the ozonesounding results, the differences with respect to the MLS measurements are statistically significant for all levels discussed in MLS validation.

All things considered, the introduction of the estimated R has globally improved the O_3 profiles in the stratosphere and in the free troposphere, especially in the tropics. In spite of its degradation in the vicinity of the UTLS, the improvement always remains advantageous with respect to the control run.

The matrix used for this study (see Sect. 3.2) will now be discussed in this section since the decision was also based on the outcome of the assimilation experiments presented in this section. We sequentially performed three assimilation experiments using the first, second, and third estimations of R (Sect. 3.2). The results of validation against radiosoundings and MLS showed small differences (not shown). Therefore, to avoid the initial impact of using a diagonal matrix, we have adopted the second estimation (which uses the analyses derived from the experiment using the first estimation). In an operational framework, we may estimate the matrix daily (weekly or monthly if the period of the study is considerably

long) using the analyses of the previous day (using the analysis of the previous week or month respectively). In other words, we may use a diagonal matrix to produce analyses for the first day or spin-up period, these analyses will be used to estimate the matrix that will be used for the second day, and so on throughout the period of the study.

We have also discussed the type (sea or land) and the time (day or night) of the observations while estimating the matrices. To check the impact of these differences on the assimilation results, we ran an additional assimilation experiment using the matrix estimated considering the type of the surface of each observation (since the differences were more important than if the time of the observation was considered). Only slight differences among the results have been noticed (not shown). This behaviour might be explained by the number of observations over the sea and over the land. In fact, the observations over the sea represent more than 70 % of the total observations. The differences, in terms of standard deviation, of the global estimation and that using pixels over the sea is very small in comparison with that using pixels over the land (not shown). The differences are also small in terms of correlations in the case of the sea surface in comparison with the land surface (not shown). Hence, we consider that the predominance of observations over sea averages out the potential differences caused by a separate land–sea specification of \mathbf{R} . Thus, for simplicity, it seems reasonable to adopt the global estimation of the matrix and neglect the effect of the time and the type of the surface of the observations.

6 Conclusions

The correct specification of the observation error becomes a critical issue to efficiently assimilate the increasing amount of satellite data available in recent years. We have estimated the observation errors and their inter-channel correlations for clear-sky radiances from IASI ozone-sensitive channels. We have evaluated, then, the impact of the estimated \mathbf{R} on the SST and ozone analysis within our 3D-Var assimilation system. The outcome has been compared with an assimilation experiment where the observation-error covariance matrix was assumed to be diagonal and the standard deviation assigned empirically like in previous studies. The results of the experiments were, then, validated against independent data: OMI, MLS, and ozonesondes.

The Desroziers diagnostics were adopted here to estimate \mathbf{R} . The diagnostics used the analyses derived from a variational data assimilation experiment. The results have shown high correlations between the majority of the IASI spectral channels, particularly among the SST sensitive channels.

Significant differences between the results of the experiments were encountered. The introduction of the estimated \mathbf{R} reduces the amount of ozone in the free troposphere and in the high tropical stratosphere, whereas ozone is added in the vicinity of the lower stratosphere. A validation against OMI

has shown that the results were closer to the observations when the estimated matrix was adopted.

The validation against MLS and ozonesondes showed that the introduction of the estimated \mathbf{R} has globally improved the results in the stratosphere, especially in the tropics. In spite of a slight reduction in accuracy in the vicinity of the UTLS, the improvement always remains advantageous with respect to the reference assimilation. Concerning the computational cost, the introduction of the estimated \mathbf{R} significantly reduces the number of iterations needed for the minimizer to converge.

In summary, accounting for an estimated \mathbf{R} significantly improves the ozone assimilation results. This approach might be adopted in the assimilation of other chemical species and also in level 2 O_3 retrievals.

In this study, the estimation was computed without taking into account any distinction of the error sources and assuming that the observation error was unbiased. More efforts will be needed to tackle these points. It should also be noted that we kept the same experiment setup of Emili et al. (2019) in order to be able to exclusively quantify the impact of the \mathbf{R} . The background-error matrix was still defined using a relatively simple and empirical method. Further research might be needed to perform a better estimation of the background error. A new channel selection might also be performed to reduce the computational cost and the information redundancy of the IASI spectrum. On the other hand, all the experiments are performed in the context where aerosols are neglected and over 1 month. Including modelled aerosols within the radiative transfer may bring some improvements to the analyses. These aspects will be covered in future research.

Code availability. The code used to generate the analysis (MOCAGE and its variational assimilation suite) is a research-operational code property of Météo France and CERFACS and is not publicly available. The readers interested in obtaining parts of the code for research purposes can contact the authors of this study directly.

Data availability. The input data used in this study are freely accessible through the web pages reported in the paper. All results are available upon request to the author.

Author contributions. MEA developed the code to compute the IASI error covariance matrix, carried out the experiments, analysed the results, and wrote the manuscript. EE provided the data needed to run the experiments and revised the paper. VG revised the paper.

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

73

Acknowledgements. We acknowledge EUMETSAT for providing IASI L1C data, WOUDC for providing ozonesonde data, and the NASA Jet Propulsion Laboratory for the availability of Aura MLS Level 2 O₃. We also thank the MOCAGE team at Météo France for providing the chemistry transport model, the RTTOV team for the radiative transfer model, and Gabriel Jonville for the help on technical developments of the assimilation code. This work has been possible thanks to the financial support from the Région Occitanie.

Financial support. This research has been supported by the Région Occitanie and CNES (Centre National d'Etudes Spatiales), through the IASI program.

Review statement. This paper was edited by Alyn Lambert and reviewed by two anonymous referees.

References

- Auligné, T., McNally, A. P., and Dee, D. P.: Adaptive bias correction for satellite data in a numerical weather prediction system, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 133, 631–642, <https://doi.org/10.1002/qj.56>, 2007.
- Bathmann, K. and Collard, A.: Surface-dependent correlated infrared observation errors and quality control in the FV3 framework, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 147, 408–424, <https://doi.org/10.1002/qj.3925>, 2020.
- Bhartia, P. K.: OMI Algorithm Theoretical Basis Document, ATBD-OMI-02, version 2.0, II, 1–91, NASA-OMI, Washington, DC, 2002.
- Borbas, E. E. and Ruston, B. C.: The RTTOV UWiremis IR land surface emissivity module, Mission Report, EUMETSAT, 0–24, 2010.
- Bormann, N., Collard, A., and Bauer, P.: Estimates of spatial and interchannel observation-error characteristics for current sounder radiances for numerical weather prediction. II: Application to AIRS and IASI data, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 136, 1051–1063, <https://doi.org/10.1002/qj.615>, 2010.
- Bormann, N., Bonavita, M., Dragani, R., Eresmaa, R., Maticardi, M., and McNally, A.: Enhancing the impact of IASI observations through an updated observation-error covariance matrix, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 142, 1767–1780, <https://doi.org/10.1002/qj.2774>, 2016.
- Campbell, W. F., Satterfield, E. A., Ruston, B., and Baker, N. L.: Accounting for correlated observation error in a dual-formulation 4D variational data assimilation system, *Mon. Weather Rev.*, 145, 1019–1032, <https://doi.org/10.1175/MWR-D-16-0240.1>, 2017.
- Clarisse, L., Coheur, P. F., Prata, A. J., Hurtmans, D., Razavi, A., Phulpin, T., Hadji-Lazaro, J., and Clerbaux, C.: Tracking and quantifying volcanic SO₂ with IASI, the September 2007 eruption at Jebel at Tair, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 7723–7734, <https://doi.org/10.5194/acp-8-7723-2008>, 2008.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F.: Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6041–6054, <https://doi.org/10.5194/acp-9-6041-2009>, 2009.
- Coopmann, O., Guidard, V., Fourrié, N., Josse, B., and Marécal, V.: Update of Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) channel selection with correlated observation errors for numerical weather prediction (NWP), *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 2659–2680, <https://doi.org/10.5194/amt-13-2659-2020>, 2020.
- Courtier, P., Freydier, C., Geleyn, J.-F., Rabier, F., and Rochas, M.: The Arpege project at Météo-France, available at: <https://www.ecmwf.int/node/8798> (last access: 1 May 2020), 1991.
- Déqué, M., Drevet, C., Braun, A., and Cariolle, D.: The ARPEGE/IFS atmosphere model: a contribution to the French community climate modelling, *Clim. Dyn.*, 10, 249–266, <https://doi.org/10.1007/BF00208992>, 1994.
- Desroziers, G., Berre, L., Chapnik, B., and Poli, P.: Diagnosis of observation, background and analysis-error statistics in observation space, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 131, 3385–3396, <https://doi.org/10.1256/qj.05.108>, 2005.
- Dragani, R. and McNally, A. P.: Operational assimilation of ozone-sensitive infrared radiances at ECMWF, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 139, 2068–2080, <https://doi.org/10.1002/qj.2106>, 2013.
- Dufour, G., Eremenko, M., Griesfeller, A., Barret, B., LeFlochmoën, E., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., and Hurtmans, D.: Validation of three different scientific ozone products retrieved from IASI spectra using ozonesondes, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 611–630, <https://doi.org/10.5194/amt-5-611-2012>, 2012.
- El Amraoui, L., Attié, J.-L., Semane, N., Claeysman, M., Peuch, V.-H., Warner, J., Ricaud, P., Cammas, J.-P., Piacentini, A., Josse, B., Cariolle, D., Massart, S., and Bencherif, H.: Midlatitude stratosphere – troposphere exchange as diagnosed by MLS O₃ and MOPITT CO assimilated fields, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 2175–2194, <https://doi.org/10.5194/acp-10-2175-2010>, 2010.
- Elbern, H., Schmidt, H., and Ebel, A.: Variational data assimilation for tropospheric chemistry modeling, *J. Geophys. Res.*, 102, 15967–15985, <https://doi.org/10.1029/97JD01213>, 1997.
- Emili, E., Barret, B., Massart, S., Le Flochmoen, E., Piacentini, A., El Amraoui, L., Pannekoucke, O., and Cariolle, D.: Combined assimilation of IASI and MLS observations to constrain tropospheric and stratospheric ozone in a global chemical transport model, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 177–198, <https://doi.org/10.5194/acp-14-177-2014>, 2014.
- Emili, E., Barret, B., Le Flochmoën, E., and Cariolle, D.: Comparison between the assimilation of IASI Level 2 ozone retrievals and Level 1 radiances in a chemical transport model, *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 3963–3984, <https://doi.org/10.5194/amt-12-3963-2019>, 2019.
- Fisher, M. and Lary, D. J.: Lagrangian four-dimensional variational data assimilation of chemical species, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 121, 1681–1704, <https://doi.org/10.1002/qj.49712152709>, 1995.
- Froidevaux, L., Jiang, Y. B., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Browell, E. V., Hair, J. W., Avery, M. A., McGee, T. J., Twigg, L. W., Sumnicht, G. K., Jucks, K. W., Margitan, J. J., Sen, B., Stachnik, R. A., Toon, G. C., Bernath, P. F., Boone, C. D., Walker, K. A., Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Fuller, R. A., Manney, G. L., Schwartz, M. J., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Perun, V. S., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., and Wagner, P. A.: Validation of Aura Microwave Limb

- Sounder stratospheric ozone measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S20, <https://doi.org/10.1029/2007jd008771>, 2008.
- Garand, L., Heillette, S., and Buehner, M.: Interchannel error correlation associated with AIRS radiance observations: Inference and impact in data assimilation, *J. Appl. Meteorol. Climatol.*, 46, 714–725, <https://doi.org/10.1175/JAM2496.1>, 2007.
- Geer, A. J.: Correlated observation error models for assimilating all-sky infrared radiances, *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 3629–3657, <https://doi.org/10.5194/amt-12-3629-2019>, 2019.
- Han, W. and McNally, A. P.: The 4D-Var assimilation of ozone-sensitive infrared radiances measured by IASI, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 136, 2025–2037, <https://doi.org/10.1002/qj.708>, 2010.
- Iglesias-Suarez, F., Kinnison, D. E., Rap, A., Maycock, A. C., Wild, O., and Young, P. J.: Key drivers of ozone change and its radiative forcing over the 21st century, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 6121–6139, <https://doi.org/10.5194/acp-18-6121-2018>, 2018.
- Inness, A., Baier, F., Benedetti, A., Bouarar, I., Chabrillat, S., Clark, H., Clerbaux, C., Coheur, P., Engelen, R. J., Errera, Q., Flemming, J., George, M., Granier, C., Hadji-Lazaro, J., Huijnen, V., Hurtmans, D., Jones, L., Kaiser, J. W., Kapsomenakis, J., Lefever, K., Leitão, J., Razinger, M., Richter, A., Schultz, M. G., Simmons, A. J., Suttie, M., Stein, O., Thépaut, J.-N., Thouret, V., Vrekoussis, M., Zerefos, C., and the MACC team: The MACC reanalysis: an 8 yr data set of atmospheric composition, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 4073–4109, <https://doi.org/10.5194/acp-13-4073-2013>, 2013.
- Irion, F. W., Kahn, B. H., Schreier, M. M., Fetzer, E. J., Fishbein, E., Fu, D., Kalmus, P., Wilson, R. C., Wong, S., and Yue, Q.: Single-footprint retrievals of temperature, water vapor and cloud properties from AIRS, *Atmos. Meas. Tech.*, 11, 971–995, <https://doi.org/10.5194/amt-11-971-2018>, 2018.
- Janjić, T., Bormann, N., Bocquet, M., Carton, J. A., Cohn, S. E., Dance, S. L., Losa, S. N., Nichols, N. K., Potthast, R., Waller, J. A., and Weston, P.: On the representation error in data assimilation, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 144, 1257–1278, <https://doi.org/10.1002/qj.3130>, 2018.
- Jiang, Y. B., Froidevaux, L., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Bojkov, B., Leblanc, T., McDermid, I. S., Godin-Beekmann, S., Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Fuller, R. A., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Perun, V. S., Schwartz, M. J., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., Wagner, P. A., Allaart, M., Andersen, S. B., Bodeker, G., Calpini, B., Claude, H., Coetzee, G., Davies, J., De Backer, H., Dier, H., Fujiwara, M., Johnson, B., Kelder, H., Leme, N. P., König-Langlo, G., Kyro, E., Laneve, G., Fook, L. S., Merrill, J., Morris, G., Newchurch, M., Oltmans, S., Parrondos, M. C., Posny, F., Schmidlin, F., Skrivankova, P., Stubi, R., Tarasick, D., Thompson, A., Thouret, V., Viatte, P., Vömel, H., von Der Gathen, P., Yela, M., and Zablocki, G.: Validation of Aura Microwave Limb Sounder Ozone by ozonesonde and lidar measurements, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 112, 1–20, <https://doi.org/10.1029/2007JD008776>, 2007.
- Josse, B., Simon, P., and Peuch, V. H.: Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE, *Tellus B*, 56, 339–356, <https://doi.org/10.3402/tellusb.v56i4.16448>, 2004.
- Lahoz, W. A., Errera, Q., Swinbank, R., and Fonteyn, D.: Data assimilation of stratospheric constituents: a review, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5745–5773, <https://doi.org/10.5194/acp-7-5745-2007>, 2007.
- Lefèvre, F., Brasseur, G. P., Folkins, I., Smith, A. K., and Simon, P.: Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter: Three-dimensional model simulations, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 99, 8183–8195, <https://doi.org/10.1029/93JD03476>, 1994.
- Levelt, P. F., Joiner, J., Tamminen, J., Veefkind, J. P., Bhartia, P. K., Stein Zweers, D. C., Duncan, B. N., Streets, D. G., Eskes, H., van der A, R., McLinden, C., Fioletov, V., Carn, S., de Laat, J., DeLand, M., Marchenko, S., McPeters, R., Ziemke, J., Fu, D., Liu, X., Pickering, K., Apituley, A., González Abad, G., Arola, A., Boersma, F., Chan Miller, C., Chance, K., de Graaf, M., Hakkarainen, J., Hassinen, S., Ialongo, I., Kleipool, Q., Krotkov, N., Li, C., Lamsal, L., Newman, P., Nowlan, C., Suleiman, R., Tilstra, L. G., Torres, O., Wang, H., and Wargan, K.: The Ozone Monitoring Instrument: overview of 14 years in space, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 5699–5745, <https://doi.org/10.5194/acp-18-5699-2018>, 2018.
- Liu, D. C. and Nocedal, J.: On the limited memory BFGS method for large scale optimization, *Mathematical Programming*, 45, 503–528, <https://doi.org/10.1007/BF01589116>, 1989.
- Liu, Z.-Q. and Rabier, F.: The potential of high-density observations for numerical weather prediction: A study with simulated observations, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 129, 3013–3035, <https://doi.org/10.1256/qj.02.170>, 2003.
- MacKenzie, I. A., Tett, S. F., and Lindfors, A. V.: Climate model-simulated diurnal cycles in HIRS clear-sky brightness temperatures, *J. Climate*, 25, 5845–5863, <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-11-00552.1>, 2012.
- Marécal, V., Peuch, V.-H., Andersson, C., Andersson, S., Arteta, J., Beekmann, M., Benedictow, A., Bergström, R., Bessagnet, B., Cansado, A., Chéroux, F., Colette, A., Coman, A., Curier, R. L., Denier van der Gon, H. A. C., Drouin, A., Elbern, H., Emili, E., Engelen, R. J., Eskes, H. J., Foret, G., Friese, E., Gauss, M., Giannaros, C., Guth, J., Joly, M., Jaumouillé, E., Josse, B., Kadyrov, N., Kaiser, J. W., Krajsek, K., Kuenen, J., Kumar, U., Liora, N., Lopez, E., Malherbe, L., Martinez, I., Melas, D., Meleux, F., Menut, L., Moinat, P., Morales, T., Parmentier, J., Piacentini, A., Plu, M., Poupkou, A., Queguiner, S., Robertson, L., Rouil, L., Schaap, M., Segers, A., Sofiev, M., Tarasson, L., Thomas, M., Timmermans, R., Valdebenito, Á., van Velthoven, P., van Versendaal, R., Vira, J., and Ung, A.: A regional air quality forecasting system over Europe: the MACC-II daily ensemble production, *Geosci. Model Dev.*, 8, 2777–2813, <https://doi.org/10.5194/gmd-8-2777-2015>, 2015.
- Martet, M., Peuch, V. H., Laurent, B., Marticorena, B., and Bergametti, G.: Evaluation of long-range transport and deposition of desert dust with the CTM MOCAGE, *Tellus, Series B*, 61 B, 449–463, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2008.00413.x>, 2009.
- Massart, S., Clerbaux, C., Cariolle, D., Piacentini, A., Turquety, S., and Hadji-Lazaro, J.: First steps towards the assimilation of IASI ozone data into the MOCAGE-PALM system, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5073–5091, <https://doi.org/10.5194/acp-9-5073-2009>, 2009.
- Massart, S., Piacentini, A., and Pannekoucke, O.: Importance of using ensemble estimated background error covariances for the quality of atmospheric ozone analyses, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 138, 889–905, <https://doi.org/10.1002/qj.971>, 2012.

- Matricardi, M.: Technical Note: An assessment of the accuracy of the RTTOV fast radiative transfer model using IASI data, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6899–6913, <https://doi.org/10.5194/acp-9-6899-2009>, 2009.
- McPeters, R. D., Frith, S., and Labow, G. J.: OMI total column ozone: extending the long-term data record, *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 4845–4850, <https://doi.org/10.5194/amt-8-4845-2015>, 2015.
- Peiro, H., Emili, E., Cariolle, D., Barret, B., and Le Flochmoën, E.: Multi-year assimilation of IASI and MLS ozone retrievals: variability of tropospheric ozone over the tropics in response to ENSO, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 6939–6958, <https://doi.org/10.5194/acp-18-6939-2018>, 2018.
- Saunders, R., Hocking, J., Rundle, D., Rayer, P., Matricardi, M., Geer, A., Lupu, C., Brunel, P., and Vidot, J.: Rttov-11 Science and Validation Report, EUMETSAT Satellite Application Facility on Numerical Weather Prediction, 1–62, available at: https://www.nwpsaf.eu/site/download/documentation/rtm/docs_rttov11/rttov11_svr.pdf (last access: 12 April 2021), 2013.
- Saunders, R., Hocking, J., Turner, E., Rayer, P., Rundle, D., Brunel, P., Vidot, J., Roquet, P., Matricardi, M., Geer, A., Bormann, N., and Lupu, C.: An update on the RTTOV fast radiative transfer model (currently at version 12), *Geosci. Model Dev.*, 11, 2717–2737, <https://doi.org/10.5194/gmd-11-2717-2018>, 2018.
- Serio, C., Guido Masiello, P. M., and Tobin, D. C.: Characterization of the Observational Covariance Matrix of Hyper-Spectral Infrared Satellite Sensors Directly from Measured Earth Views *Carmine, Sensors*, 20, 1492, <https://doi.org/10.3390/s20051492>, 2020.
- Sherlock, V.: ISEM-6: Infrared Surface Emissivity Model for RTTOV-6 for the EUMETSAT NWP SAF, (Report for the EUMETSAT NWP SAF), available at: <https://nwpsaf.eu/site/download/documentation/rtm/papers/ism6.pdf> (last access: 1 May 2020), 1999.
- Sič, B., El Amraoui, L., Marécal, V., Josse, B., Arteta, J., Guth, J., Joly, M., and Hamer, P. D.: Modelling of primary aerosols in the chemical transport model MOCAGE: development and evaluation of aerosol physical parameterizations, *Geosci. Model Dev.*, 8, 381–408, <https://doi.org/10.5194/gmd-8-381-2015>, 2015.
- Stewart, L. M., Cameron, J., Dance, S. L., English, S., Eyre, J., and Nichols, N. K.: Observation error correlations in IASI radiance data, *Mathematics report series*, 1, 1–26, available at: http://www.reading.ac.uk/web/files/math/obs_error_IASI_radiance.pdf (last access: 1 May 2020), 2009.
- Stewart, L. M., Dance, S. L., Nichols, N. K., Eyre, J. R., and Cameron, J.: Estimating interchannel observation-error correlations for IASI radiance data in the Met Office system, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 140, 1236–1244, <https://doi.org/10.1002/qj.2211>, 2014.
- Stockwell, W. R., Kirchner, F., Kuhn, M., and Seefeld, S.: A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 102, 25847–25879, <https://doi.org/10.1029/97JD00849>, 1997.
- Tabeart, J. M., Dance, S. L., Haben, S. A., Lawless, A. S., Nichols, N. K., and Waller, J. A.: The conditioning of least-squares problems in variational data assimilation, *Numer. Linear Algebr.*, 25, 1–22, <https://doi.org/10.1002/nla.2165>, 2018.
- Tabeart, J. M., Dance, S. L., Lawless, A. S., Migliorini, S., Nichols, N. K., Smith, F., and Waller, J. A.: The impact of using reconditioned correlated observation-error covariance matrices in the Met Office 1D-Var system, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 146, 1372–1390, <https://doi.org/10.1002/qj.3741>, 2020.
- Teyssède, H., Michou, M., Clark, H. L., Josse, B., Karcher, F., Olivié, D., Peuch, V.-H., Saint-Martin, D., Cariolle, D., Attié, J.-L., Nédélec, P., Ricaud, P., Thouret, V., van der A, R. J., Volz-Thomas, A., and Chéroux, F.: A new tropospheric and stratospheric Chemistry and Transport Model MOCAGE-Climat for multi-year studies: evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5815–5860, <https://doi.org/10.5194/acp-7-5815-2007>, 2007.
- UNEP2015: Environmental effects of ozone depletion and its interactions with climate change: 2014 Assessment, United Nations Environment Program, 1–52, <https://doi.org/10.1039/c4pp90040e>, 2015.
- Waller, J. A., Ballard, S. P., Dance, S. L., Kelly, G., Nichols, N. K., and Simonin, D.: Diagnosing horizontal and inter-channel observation error correlations for SEVIRI observations using observation-minus-background and observation-minus-analysis statistics, *Remote Sens.*, 8, 581, <https://doi.org/10.3390/rs8070581>, 2016.
- Waters, J. W., Froidevaux, L., Harwood, R. S., Jarnot, R. F., Pickett, H. M., Read, W. G., Siegel, P. H., Cofield, R. E., Filipiak, M. J., Flower, D. A., Holden, J. R., Lau, G. K., Livesey, N. J., Manney, G. L., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., Wu, D. L., Cuddy, D. T., Lay, R. R., Loo, M. S., Perun, V. S., Schwartz, M. J., Stek, P. C., Thurstans, R. P., Boyles, M. A., Chandra, K. M., Chavez, M. C., Chen, G.-S., Chudasama, B. V., Dodge, R., Fuller, R. A., Girard, M. A., Jiang, J. H., Jiang, Y., Knosp, B. W., LaBelle, R. C., Lam, J. C., Lee, K. A., Miller, D., Oswald, J. E., Patel, N. C., Pukala, D. M., Quintero, O., Scaff, D. M., Van Snyder, W., Tope, M. C., Wagner, P. A., and Walch, M. J.: The Earth Observing System Microwave Limb Sounder (EOS MLS) on the Aura Satellite, available at: https://mls.jpl.nasa.gov/joe/EOS-MLS_Overview_IEEE_GRS_submitted.pdf (last access: 12 April 2021), 2006.
- Weaver, A. and Courtier, P.: Correlation modelling on the sphere using a generalized diffusion equation, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 127, 1815–1846, <https://doi.org/10.1256/smsqj.57517>, 2001.
- Weston, P. P., Bell, W., and Eyre, J. R.: Accounting for correlated error in the assimilation of high-resolution sounder data, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 140, 2420–2429, <https://doi.org/10.1002/qj.2306>, 2014.
- WMO: WMO (World Meteorological Organization), Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2014, Global Ozone Research and Monitoring Project – Report No. 55, Geneva, Switzerland, 416 pp., 2014.

5.1.3 Résultats supplémentaires

Dans l'article, nous avons discuté l'estimation globale de la matrice des covariances d'erreur d'observation et l'impact sur les analyses. Cependant, quelques résultats supplémentaires ont été mentionnés mais pas présentés dans l'article de façon détaillée. Dans cette partie nous aborderons ces aspects en détail. Nous commencerons par une autre approche d'estimation que nous avons testée en la comparant à l'estimation de Desroziers. Ensuite, nous discuterons l'estimation de la matrice \mathbf{R} en faisant la distinction entre terre et mer d'une part et de jour et nuit d'autre part. Nous finirons cette partie par la discussion de la vitesse de convergence de l'algorithme d'assimilation.

a) Autre approche d'estimation : Diagnostic de Hollingsworth-Lönnberg

Dans l'article nous avons utilisé la méthode de Desroziers pour estimer la matrice de covariance d'erreur d'observation. Néanmoins, nous avons testé une autre méthode pour l'estimation de \mathbf{R} appelé *méthode de Hollingsworth-Lönnberg*. Cette méthode repose, comme elle a été introduite dans la section 5, sur la différence entre l'observation et l'état du modèle. En comparaison avec la méthode de Desroziers, la méthode Hollingsworth-Lönnberg ne fait pas appel à une analyse pour estimer les erreurs. En effet, la méthode Desroziers nécessite d'effectuer une expérience d'assimilation avant l'estimation. Ceci pourrait impacter le résultat de l'estimation d'erreur. La méthode de Hollingsworth-Lönnberg présente donc l'avantage de ne pas dépendre d'un processus d'assimilation antérieur. Dans cette partie, nous présenterons les résultats de cette estimation en la comparant à la méthode de Desroziers et nous aborderons ensuite le problème du conditionnement des estimations.

- Résultats de l'estimation

Nous présentons sur la figure 14 un exemple des fonctions de covariance empiriques ainsi que les courbes analytiques correspondants pour les couples des canaux : (a) 992.25 et 992.25 cm^{-1} , (b) 992.25 et 1026.0 cm^{-1} , (c) 992.25 et 1048.25 cm^{-1} , et (d) 992.25 et 1072.25 cm^{-1} . Nous avons choisi de montrer ces 4 couples comme exemples qui représentent quatre différentes régions de la matrice estimée (Figure 15(c)). L'estimation d'une courbe analytique a été effectuée pour tous les canaux. L'ajustement permet donc de trouver la covariance notée V pour une distance nulle (voir chapitre 4). Cette matrice est soustraite de la matrice totale notée T pour trouver la matrice \mathbf{R} . Nous présentons sur la figure 15(a) les contributions à l'écart type V_{ii} (en bleu) et la covariance totale T_{ii} (en noir). La différence de ces deux dernières contributions donne l'écart type de la matrice \mathbf{R} . La figure 15(b) présente l'écart type diagnostiqué à l'aide de l'approche de Hollingsworth-Lönnberg (ligne rouge), de Desroziers (ligne verte) et celle utilisée dans Emili et al. [2019] (ligne noire pointillée). Ce dernier a été fixé à une valeur égale à 0.7 $\text{mWm}^{-2}\text{sr}^{-1}\text{cm}$ pour tous les canaux, ce qui est un réglage commun pour la plupart des restituions de l'ozone depuis IASI. Le comportement reproduit ici par l'écart type estimé présente des similitudes avec l'estimation de Desroziers. L'écart type utilisé dans les études précédentes a été sous-estimé pour les canaux sensibles à la SST et la majorité

de ceux sensible à l’ozone. L’écart type diagnostiqué atteint $1.7 \text{ mWm}^{-2}\text{sr}^{-1}\text{cm}$ et varie de 0.65 à $1.2 \text{ mWm}^{-2}\text{sr}^{-1}\text{cm}$ pour les canaux sensibles à l’ozone. Le comportement montrant des valeurs importantes pour les canaux sensibles à la SST et des valeurs moins importantes pour l’ozone est rencontré aussi dans l’estimation de Desroziers mais avec des valeurs plus grandes pour les deux régions de sensibilité (SST et O3), comme le montre la figure 15(b). Comme déjà discuté dans l’article, les valeurs des luminances pour les observations sont plus grandes pour les canaux SST que celles de l’ozone. Il en va de même pour les luminances simulés à partir de l’ébauche. Étant donné que ces diagnostics sont basés sur des résidus entre l’observation et l’ébauche, un écart type plus important pour les canaux SST que pour les canaux d’ozone peut être attendu. La matrice de corrélation estimée par la méthode Hollingsworth-Lönnberg est présentée sur la figure 15(c). Les résultats montrent des corrélations élevées entre la majorité des canaux (supérieures à 0,7). En particulier, une corrélation très élevée est observée entre les canaux sensibles à la SST (environ 0,9 à 1). Les régions de corrélation relativement plus faible (environ 0,4 à 0,7) représentent les corrélations des canaux d’ozone et la corrélation croisée entre les canaux sensibles à l’ozone et à la SST. Une comparaison à l’estimation de Desroziers, présentée sur la figure 15(d), confirme la forte corrélation pour les canaux sensible à la SST. Par contre, une corrélation beaucoup plus prononcée pour les canaux de l’ozone est rencontrée.

- *Conditionnement*

La matrice estimée par les deux approches (Hollingsworth-Lönnberg et Desroziers) est asymétrique. Après l’avoir symétrisé, la matrice qui en résulte est non définie positive. Comme nous l’avons décrit dans l’article, des caractéristiques similaires dans les matrices de covariance diagnostiquées dans des études précédentes ont été rencontrées. Toutefois, le système d’assimilation requiert une matrice de covariance valide (symétrique définie positive). Par conséquent, nous avons symétrisé la matrice estimée en prenant la moyenne de la matrice d’origine et sa transposée. Ensuite, nous avons imposé les valeurs propres négatives à une valeur égale à la plus petite valeur propre positive. Nous avons procédé ce conditionnement pour les deux approches (Hollingsworth-Lönnberg et Desroziers). Pour l’estimation de Desroziers, le nombre de valeurs propres négatives est de 18 valeurs. Ce nombre augmente pour dépasser 70 valeurs pour Hollingsworth-Lönnberg. En plus, la différence entre la plus grande valeur négative et la plus petite valeur positive est petite en cas de Desroziers. Par conséquent, la matrice corrigée après le processus de conditionnement reste proche de celle estimée directement en cas de Desroziers en terme d’écart type et des corrélations. Par contre, dans le cas de l’estimation Hollingsworth-Lönnberg le processus de conditionnement modifie davantage la matrice trouvée directement après l’estimation. Nous avons, donc, opté pour l’estimation de Desroziers pour notre système d’assimilation. Néanmoins, l’estimation de Hollingsworth-Lönnberg représente un sort de confirmation à propos des structures spectrales (écart type et corrélations) trouvées avec l’approche de Desroziers.

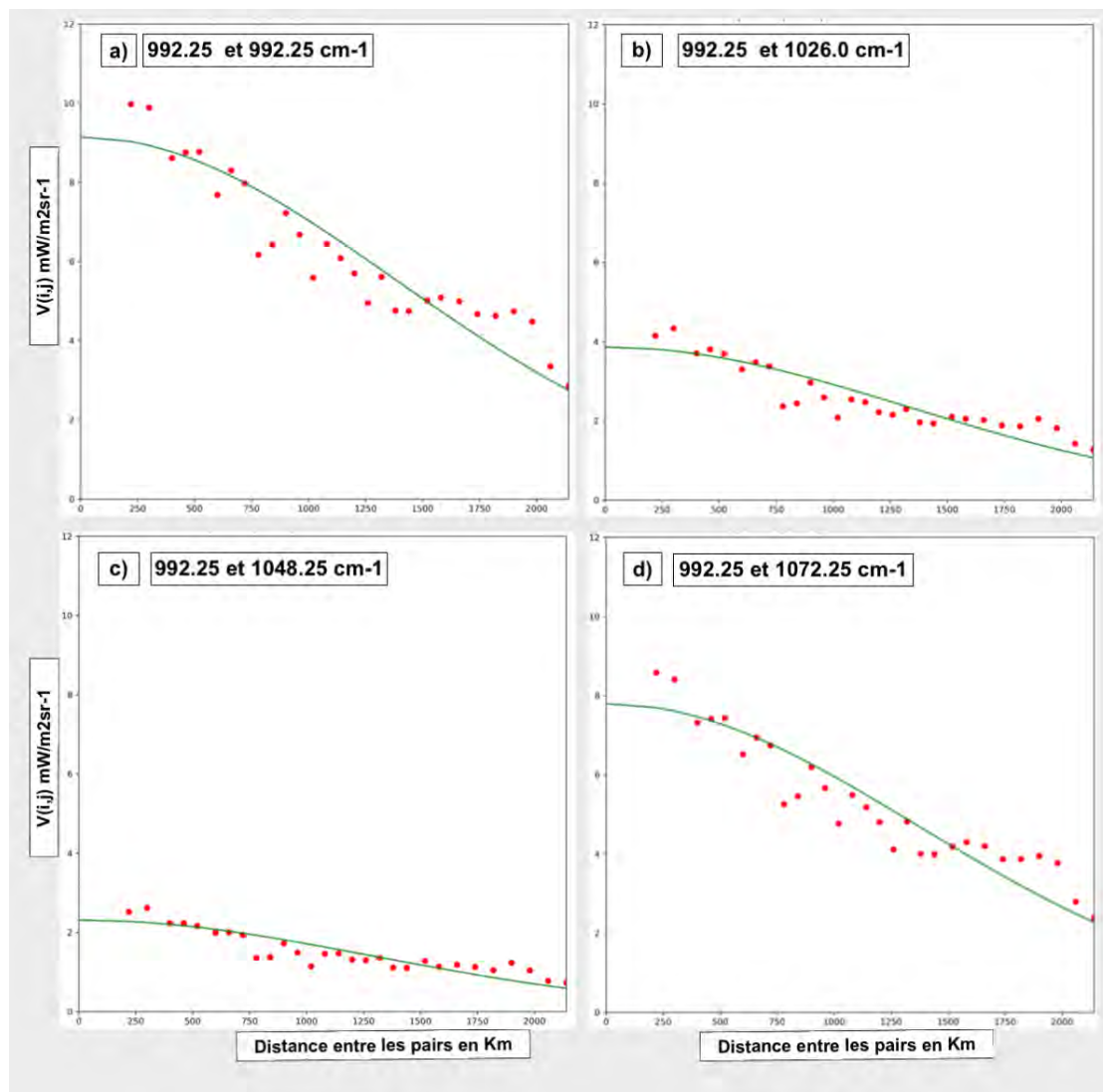


FIGURE 14 – Exemples de l'ajustement pour les couples des canaux : (a) 992.25 et 992.25 cm^{-1} , (b) 992.25 et 1026.0 cm^{-1} , (c) 992.25 et 1048.25 cm^{-1} , et (d) 992.25 et 1072.25 cm^{-1} .

b) Estimation selon le type de surface (terre/mer) et heure d'observation (jour/nuit)

Le diagnostic discuté dans le papier repose sur une estimation globale, sans distinction entre le type de surface (terre ou mer) ou le moment de l'observation (jour ou nuit). Toutes les observations disponibles sont donc prises lors du calcul de l'estimation. Étant donné que l'émissivité varie selon le type de surface et que la température de la surface est fortement influencée par le rayonnement solaire, nous avons évalué \mathbf{R} en tenant compte

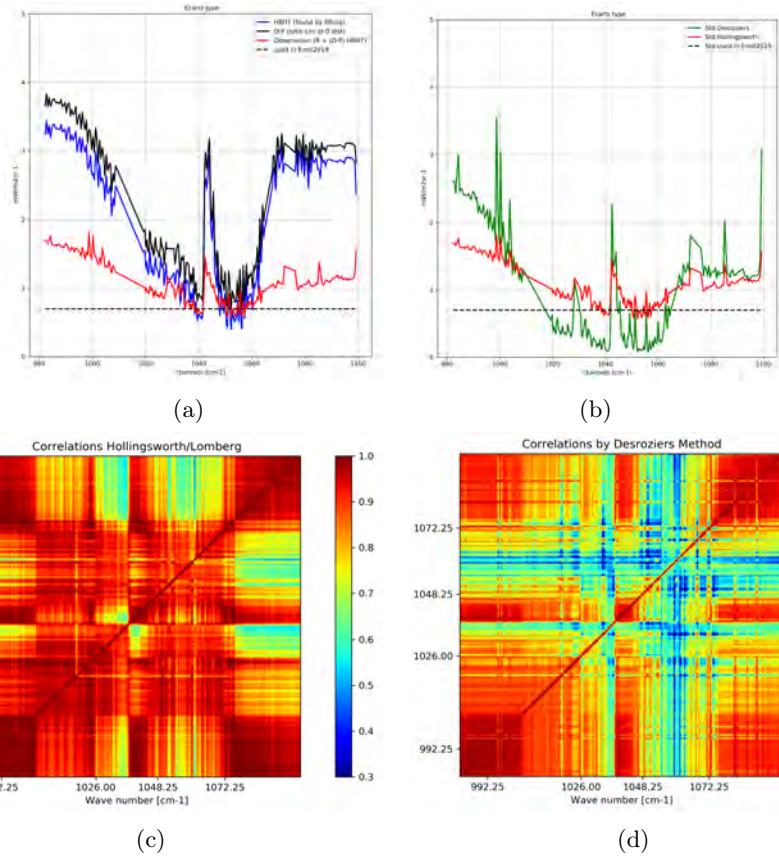


FIGURE 15 – (a) Les contributions à l'écart type de la partie trouvée par l'ajustement (en bleu), l'écart type de la matrice de covariance totale (en noir), l'écart type de \mathbf{R} (rouge) ; (b) l'écart type estimé par l'approche de Hollingsworth (rouge) comparé à celui de Desroziers (rouge) et celui utilisé dans les études précédentes (noir tireté), (c) la matrice des corrélations estimée par l'approche Hollingsworth et (d) celle estimée par l'approche de Desroziers.

de ces différences. La figure 16(a) montre la différence entre l'écart type estimé à l'aide de données localisées au-dessus de la mer, de la terre et l'estimation globale (terre et mer). L'erreur sur la terre révèle des valeurs importantes pour les canaux sensibles à la SST par rapport à celle estimée sur la mer qui, à son tour, reproduit une erreur légèrement différente par rapport à l'estimation globale. Les deux approches reproduisent une erreur plus similaire concernant la bande d'ozone.

Comme le nombre d'observations au-dessus de la mer est plus grand que sur la terre, la moyenne (l'estimation globale) s'approche de l'estimation sur la mer.

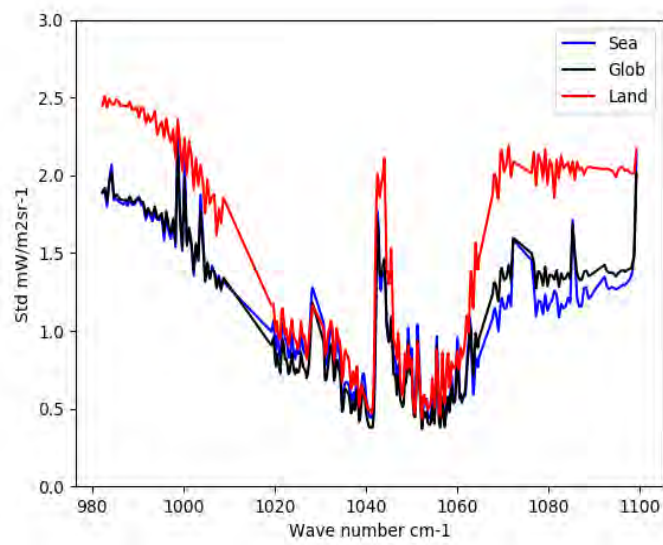
Pour expliquer la grande différence dans le domaine des canaux sensibles à la SST sur la terre, les propriétés de surface sont discutées.

L'émissivité de surface varie avec la végétation, l'humidité du sol, la composition et la rugosité (Nerry et al. [1988]) avec des valeurs comprises entre 0,65 et 1 dans la bande de l'infrarouge thermique, des valeurs plus faibles dans les déserts et des valeurs élevées dans la végétation dense et les surfaces aquatiques (Capelle et al. [2012]). L'hétérogénéité de des surface terrestres en termes d'émissivité rend la modélisation dans le transfert radiatif complexe en comparaison avec la mer. Ceci, peut conduire à un écart type important sur la terre par rapport à la mer.

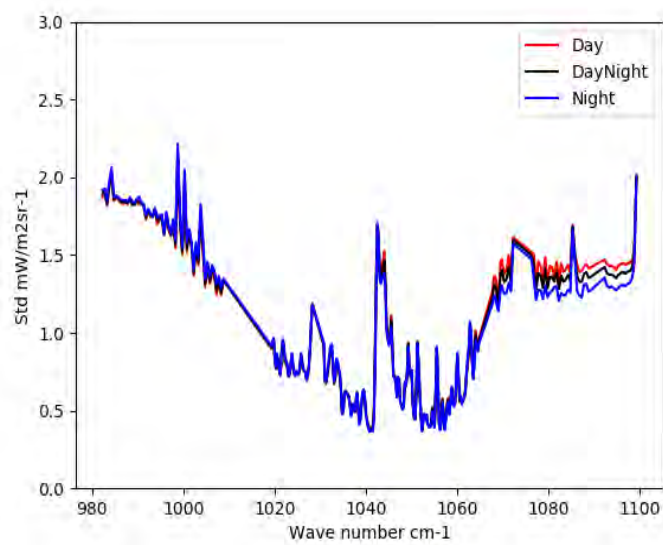
Le deuxième paramètre qui impacte le spectre électromagnétique mesuré par capteur est la température de surface. Comme pour l'émissivité, la température de surface sur terre est plus variable par rapport à la mer rendant sa modélisation dans le transfert radiatif plus complexe. Ceci pourrait être une explication de la différence de l'écart type constaté auparavant entre la terre et la mer.

Le même comportement que l'estimation globale est reproduit lorsque les statistiques ont été réalisées à partir des données mesurées séparément du jour et de la nuit. La figure 16(b) montre des petites différences dans la bande des canaux sensible à la SST (entre 1080 et 1100 cm^{-1}), alors que les courbes reprennent approximativement les mêmes caractéristiques pour le reste des canaux.

La figure 17 montre la différence (en %) entre la matrice globale et la matrice estimée sur mer (divisée par la matrice globale) 17(a) et la différence (en %) entre la matrice globale et la matrice estimée sur terre (divisée par la matrice globale) 17(b). La différence entre les corrélations estimées à partir de l'ensemble des observations et des pixels sur la surface de la mer varie entre 0 % et 40 % pour la majorité des canaux avec des valeurs atteignant 60 % . Ces différences se situent autour de 1060 et 1035 cm^{-1} qui correspondent aux régions de faibles corrélations (observées dans la matrice). Nous avons inclus ces matrices dans notre système. Nous avons effectué deux simulations : une simulation utilisant une matrice estimée en séparant les pixels issus de terre/mer et une autre simulation utilisant une estimation globale. Les différences ont été trouvées très petites. Ce comportement pourrait s'expliquer par le nombre d'observations au-dessus de la mer et au-dessus de la terre. En effet, les observations au-dessus de la mer représentent plus de 70% du total des observations. La même comparaison a été effectuée en séparant les observations du jour et de la nuit, de petites différences (par rapport à la séparation de la terre et de la mer) ont été remarquées (Les figures ne sont présentés dans le manuscrit).

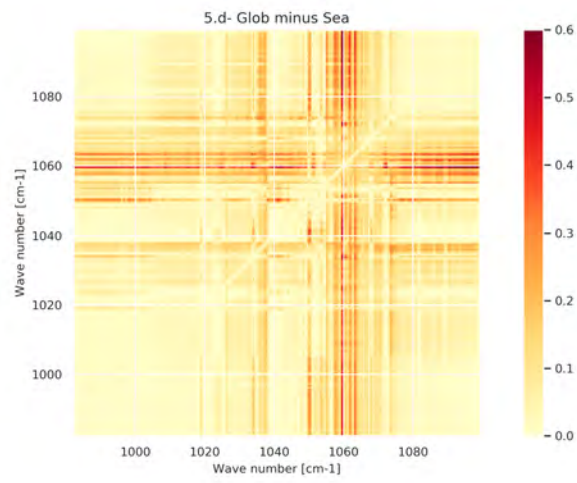


(a)

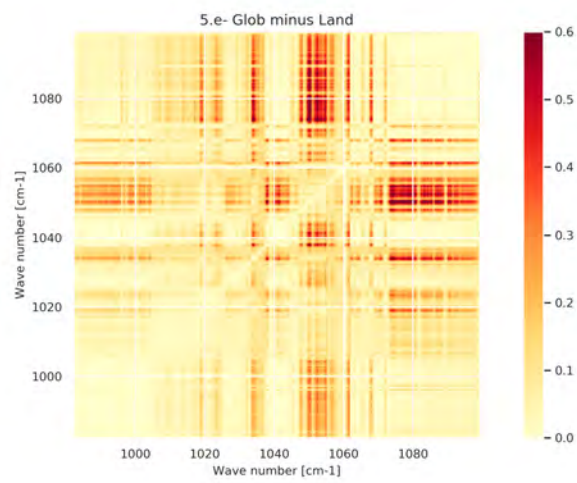


(b)

FIGURE 16 – Écart type estimé à l'aide des diagnostics Desroziers selon le type de surface (mer, terre et global) (a). Écart type estimé à l'aide du diagnostic Desroziers en fonction de l'heure de l'observation (jour, nuit et global) (b).



(a)



(b)

FIGURE 17 – La différence (en %) entre la matrice globale et la matrice estimée sur mer (divisée par la matrice globale) (a) et la différence (en %) entre la matrice globale et la matrice estimée sur terre (divisée par la matrice globale) (b).

c) Réduction du nombre d'itérations nécessaire pour la convergence du minimiseur

Comme nous l'avons introduit dans le chapitre d'assimilation de données (chapitre 3), le processus de minimisation de la fonction coût nécessite le calcul du gradient s'écrivant en fonction de l'inverse des matrices d'erreur d'observation et de l'ébauche. La valeur de la fonction coût dépend, donc, étroitement des matrices de covariances. Pour comparer le comportement de la fonction coût dans l'expérience qui utilise la matrice estimée par la méthode de Desroziers (*RfullExp*) à celui dans l'expérience qui utilise une matrice diagonale (*RdiagExp*), nous présentons dans cette partie le cycle d'assimilation correspondant à 15/07/2010 12-13h UTC choisi arbitrairement après 15 jours d'assimilation pour les deux expériences.

Dans le cas *RfullExp* (19), le minimiseur converge après presque 90 itérations (89 itérations en moyenne sur tout le mois), alors qu'il dépasse le seuil maximum imposé de 150 itérations dans le cas de *RdiagExp* (18). Les deux critères de convergence utilisés dans le minimiseur LBFGS sont basés sur la réduction de la fonction de coût et de la norme du gradient à des valeurs inférieures à des seuils typiquement petits ($1.e^{-9}$ pour la précision de la réduction de la fonction de coût entre deux itérations et $1.e^{-3}$ pour le gradient). Rappelons que la limite de 150 itérations a été fixée pour maîtriser le temps de calcul. Par conséquent, dans le *RdiagExp*, la minimisation n'atteint pas une convergence complète. Cependant, la réduction supplémentaire de la fonction coût lors des dernières itérations est assez faible par rapport à la réduction dans les premiers 150 itérations. En conséquence, laisser le minimiseur atteindre la convergence complète (après environ 200 itérations) n'affecte pas l'analyse O_3 de manière significative. Pour le *RfullExp*, la convergence est obtenue grâce à la stationnarité de la fonction de coût (1^{er} critère). Le fait que les observations soient pondérées dans *RfullExp* est probablement la raison de la convergence plus rapide. En effet, le poids de l'observation n'est pas le même entre *RfullExp* et *RdiagExp*. Cette dernière affecte une erreur nulle pour les éléments off-diagonaux, ce qui résulte en un poids égal pour chaque canal spectral. Ce poids a été diminué dans la matrice de *RfullExp* comme conséquence des corrélations intra-canaux significatives.

Il est à noter que nous avons sélectionné plusieurs dates et des heures différentes pour montrer que le comportement des itérations du minimiseur est systématique et non dépendant de la scène. Ce comportement est reproduit pour tous les cycles sélectionnés. Cet apport serait donc beaucoup plus important d'autant plus que la durée d'étude augmente.

5.2 Utilisation des luminances IASI pour des réanalyses d'ozone

L'introduction de la nouvelle estimation des erreurs d'observation fait partie de la continuité des développements menés pour améliorer notre système d'assimilation de données au Cerfacs. Jusqu'à présent, les résultats que nous avons présentés dans ce manuscrit sont obtenus sur un mois. Cependant, la production des réanalyses des espèces chimiques est l'une parmi les activités menées au Cerfacs en utilisant ce système d'assimilation. En effet, Massart et al. [2009] ont été les premiers à assimiler les colonnes totales d'ozone issues de l'instrument IASI dans un modèle de transport chimique (CTM). Les travaux

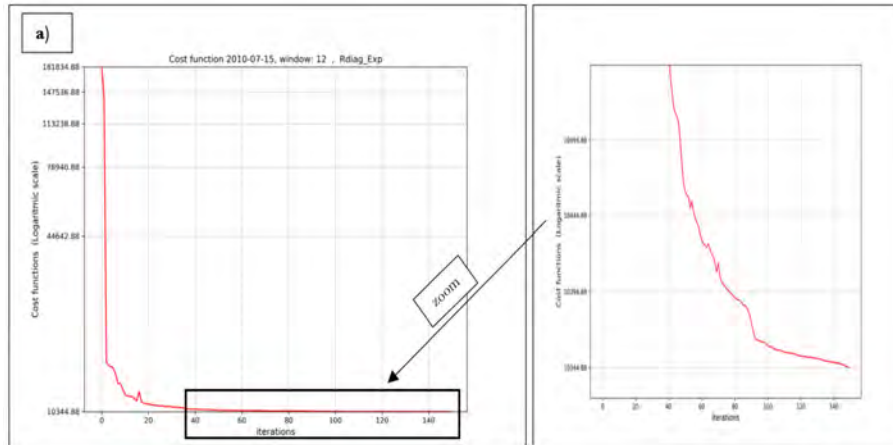


FIGURE 18 – Le cycle d’assimilation correspondant à 15/07/2010 12-13h UTC pour l’expérience qui utilise une matrice diagonale

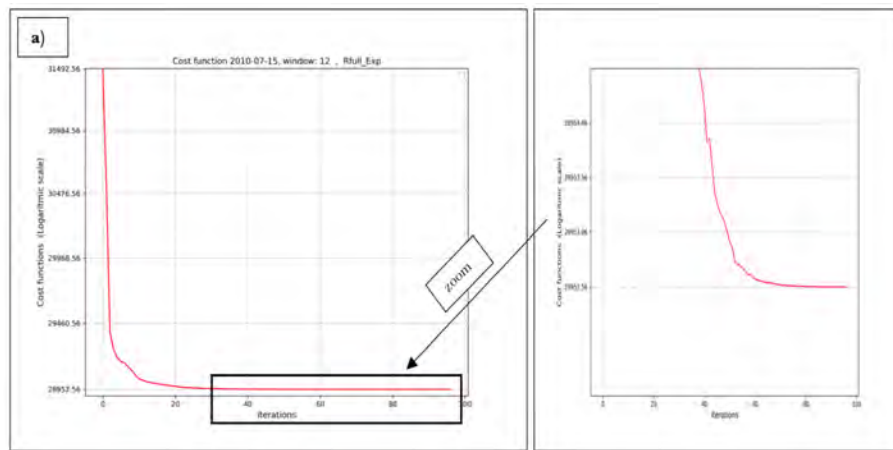


FIGURE 19 – Le cycle d’assimilation correspondant à 15/07/2010 12-13h UTC pour l’expérience qui utilise une matrice estimée par la méthode de Desroziers

se sont succédés, ensuite, visant l’amélioration de la prise en compte des observations infrarouge pour l’ozone (Emili et al. [2014] et Peiro et al. [2018]) pour arriver à l’utilisation directe des luminances dans notre modèle (Emili et al. [2019]). Nous présentons, par conséquent dans cette partie, une nouvelle réanalyse bénéficiant des développements menés récemment dans notre système incluant la prise en compte des erreurs d’observation estimées par la méthode de Desroziers.

Nous rappelons ici le contexte de cette étude. Nous présenterons par la suite un résumé de l’article et le lecteur est prié de consulter l’article pour les détails des résultats.

Comme nous l’avons abordé, les résultats que nous avons discutés jusqu’à présent dans ce manuscrit sont calculés sur un mois. Dans la première partie, notre objectif principal

était de vérifier si une mise à jour de l'erreur d'observation peut avoir un impact sur la précision de l'analyse de l'ozone, et notre analyse de référence est l'expérience d'un mois déjà discutée dans Emili et al. [2019]. Nous avons montré que l'impact est statistiquement significatif. Les scores sont globalement améliorés par rapport à trois ensembles d'observations de validation indépendantes (sondes d'ozone, MLS et OMI). Cependant, plus la période d'étude est longue, plus les résultats sont significatifs. Dans ce travail, une intégration du modèle sur une période d'une année est effectuée en utilisant les derniers développements menés dans notre système y compris la mise à jours des erreurs d'observations. La section 6.1 et 6.2 ont plusieurs paramètres communs comme la résolution du modèle, le système d'assimilation, et le pré-traitement des données. Un schéma chimique linéaire a été utilisé pour réduire le temps de calcul et pour évaluer les améliorations du schéma d'assimilation par rapport à l'étude de Peiro et al. [2018]. Le résumé de la configuration est présenté dans le tableau 3.

5.2.1 Résumé de l'article 2

Dans ce travail nous avons utilisé les luminances IASI pour calculer une réanalyse d'ozone pour une durée d'une année. Ceci en tirant profit des derniers développements apportés à notre système notamment l'utilisation directe des luminances (Emili et al. [2019]) et la mise à jours des erreurs d'observations (El Aabaribaoune et al. [2021]). La réanalyse de Peiro et al. [2018], nommée IASI-a, est le point de départ de cet étude. Cette réanalyse a été effectuée sur l'année 2010. Le schéma chimique linéaire a été utilisé. Des produits de niveau 2 de MLS et IASI ont été assimilés et une matrice d'observation diagonale a été adoptée. La nouvelle réanalyse nommée IASI-r a gardé les mêmes aspects de la configuration de IASI-a à l'exception des données IASI assimilées et de la matrice de covariance d'erreur d'observation associée à IASI. En effet, les luminances IASI ont été utilisées à la place des produits de niveau 2 et la matrice estimée par la méthode de Desroziers a été utilisée.

La validation des deux réanalyses contre les sondes d'ozone montre un comportement similaires aux latitudes tropicales mais des résultats significativement meilleurs pour IASI-r dans les zones extra-tropicales. L'assimilation de IASI dans cette étude améliore la RMSE de la simulation de contrôle à la fois dans les latitudes moyennes et dans la région polaire, alors que dans IASI-a la RMSE subissait une dégradation à ces latitudes. La variabilité mensuelle des colonnes d'O₃ troposphérique confirme ces résultats et démontre qu'un signal saisonnier réaliste peut clairement être reproduit par IASI-r à la plupart des latitudes. La seule région où l'impact est encore neutre se situe entre 60 et 90 S, probablement en raison des difficultés liées à la détection des nuages et à la restitution de l'ozone sur des surfaces élevées et couvertes de glace. La variabilité mensuelle des profils des deux réanalyses a été comparée à la réanalyse issue de CAMS (Copernicus Atmospheric Monitoring Service) appelée CAMSRA. Les profils O₃ mensuels de IASI-r sont les plus proches de CAMSRA. Nos résultats ont été aussi comparés à GEOS-CCM (Goddard Earth Observing System with a coupled Chemistry–Climate Model) qui utilise un schéma chimique détaillé et il s'est avéré que l'assimilation des mesures IR de IASI pourrait également être bénéfique pour les modèles basés sur une chimie plus détaillée de

l'ozone. Ainsi, la validation avec CAMSRA et GEOS-CCM confirme qu'un mécanisme chimique simple en combinaison avec l'assimilation des sondeurs O₃ stratosphériques et troposphériques peut fournir des performances similaires à des configurations plus complexes.

5.2.2 Article 2



Impact of Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) thermal infrared measurements on global ozone reanalyses

Emanuele Emili and Mohammad El Aabaribaoune

CECI, Université de Toulouse–Cerfacs–CNRS, Toulouse, France

Correspondence: Emanuele Emili (emili@cerfacs.fr)

Received: 21 September 2020 – Discussion started: 12 February 2021

Revised: 9 July 2021 – Accepted: 13 September 2021 – Published: 20 October 2021

Abstract. The information content of thermal infrared measurements for tropospheric ozone (O_3) estimation has already been well demonstrated. However, the impact of such measurements to constrain modelled O_3 distributions within global assimilation systems is not yet unequivocal. A new tropospheric O_3 reanalysis is computed for the year 2010 by means of assimilating measurements from the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) within the *Modèle pour la Chimie À Grande Echelle* (MOCAGE) chemical transport model. The objective is to evaluate the impact of recent methodological improvements of the data assimilation scheme on the O_3 distribution. The new O_3 reanalysis (named IASI-r) and its precursor (IASI-a) have been validated against ozonesondes, and compared to independent estimations of tropospheric O_3 and to results from two state-of-the-art products based on detailed tropospheric chemistry (the Goddard Earth Observing System with a coupled chemistry–climate model, GEOS-CCM, and the Copernicus Atmosphere Monitoring Service, CAMS, reanalysis). The main difference between IASI-r and IASI-a concerns the treatment of IASI observations, with radiances being assimilated directly in IASI-r instead of intermediate Level 2 O_3 retrievals. IASI-r is found to correct major issues with IASI-a, such as the neutral or negative impact of IASI assimilation in the extra-tropics and the presence of residual biases in the tropics. IASI-r also compares relatively well to the CAMS reanalysis, which is based on a more comprehensive chemical mechanism and the assimilation of several ultraviolet (UV) and microwave measurements.

1 Introduction

Tropospheric ozone (O_3) contributes to global warming with a net positive effect in the upper troposphere–lower stratosphere (UTLS) at tropical and subtropical latitudes (Stevenson et al., 2013). Tropospheric O_3 evolution is driven by both natural and anthropogenic processes, such as photochemical production from primary pollutants, convection, long-range transport, and stratosphere–troposphere exchanges (Young et al., 2013). Furthermore, natural atmospheric oscillations like the El Niño–Southern Oscillation (ENSO) can contribute significantly to the variability in the O_3 concentration in the tropical UTLS (Ziemke et al., 2015).

The complexity of O_3 processes (sources, sinks, and transport patterns) and the scarcity of direct O_3 measurements in the UTLS (Cooper et al., 2014) make the use of atmospheric composition models necessary for the estimation of the O_3 radiative forcing (Gauss et al., 2006). Recent model intercomparison exercises such as the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP; Lamarque et al., 2013) estimated the present-day O_3 radiative forcing uncertainty to be 30 % (Stevenson et al., 2013), due to uncertainties in O_3 modelling.

Satellite measurements provide global and independent estimates of O_3 , although with limited vertical information. An estimation of tropospheric O_3 columns can be obtained by combining stratospheric profiles from microwave limb sounders with total O_3 columns from ultraviolet (UV) nadir sounders. For example, Ziemke et al. (2006) combined retrievals from the Ozone Monitoring Instrument (OMI) and from the Microwave Limb Sounder (MLS) on board the 88 Aura satellite to provide a tropospheric ozone column (TOC) product, which will hereafter be called “OMI-MLS”. Thermal sounders like the Tropospheric Emission Spectrometer

(TES; Bowman et al., 2006) or the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI; Clerbaux et al., 2009; Hilton et al., 2012) add complementary information to UV and limb sounders due to a peak of sensitivity in the UTLS region within the 10 μm spectral region. Another advantage of thermal sounders is the possibility to retrieve O_3 during nighttime, thereby providing observations during the polar nights. Recently, there have been growing efforts to comparatively evaluate tropospheric O_3 retrievals from UV and IR measurements (Gaudel et al., 2018) in the perspective of present O_3 variability and trends. These studies have highlighted some inconsistencies between UV and infrared (IR) retrievals, in terms of O_3 columns and observed trends, that are currently being addressed.

Satellite measurements are also assimilated routinely in global chemistry models (Bocquet et al., 2015) to either improve chemical forecasts (Flemming et al., 2015) or to produce more accurate reanalyses of the past atmospheric composition (Inness et al., 2019). However, due to the difficulties involved in harmonizing more recent IR products with well-established UV products, chemical assimilation systems still rely mostly on UV or limb O_3 measurements (Van Peet et al., 2018; Inness et al., 2019). Because of the weak sensitivity of UV measurements to the troposphere, tropospheric O_3 is thus constrained indirectly through the simultaneous fit to total and stratospheric columns. An exception is represented by the reanalysis of Miyazaki et al. (2015), which assimilated tropospheric TES O_3 profiles. However, the reduced availability of TES data after 2010 impeded the production of an O_3 reanalysis constrained by IR measurements for the entire period. Huijnen et al. (2020) compared the accuracy of the tropospheric O_3 reanalyses of Inness et al. (2019) and Miyazaki et al. (2015) against radio soundings and found similar accuracies for both. The IASI mission provides uninterrupted measurements from 2008, with three sensors flying today (Metop A, B, and C) and plans for long-term continuation of operations in the next decade (IASI-NG). Although IASI O_3 observations might be very valuable for long reanalyses, they have not yet been assimilated within any of the currently available chemical reanalyses.

Global assimilation of IASI O_3 products have been examined in a number of previous studies. Massart et al. (2009) were the first to assimilate IASI total O_3 columns in a chemical transport model (CTM), and the authors highlighted the need to employ averaging kernels to correctly weight the instrument sensitivity. Emili et al. (2014) examined the assimilation of tropospheric columns (240–1000 hPa) using retrievals kernels and found a positive impact at tropical latitudes but a slightly negative impact at mid-latitudes and high latitudes. Peiro et al. (2018) used the same methodology as Emili et al. (2014) to compute tropospheric O_3 analyses in the tropics to study the O_3 ENSO signal. All of these studies performed a bias correction prior to the assimilation of retrieved quantities (also named Level 2 or L2 products) to avoid increased biases in the O_3 reanalyses. The empirical

nature of the bias correction procedure could not ensure a positive (or neutral) impact of IR assimilation at all latitudes and vertical levels. More recently, Emili et al. (2019) evaluated the direct assimilation of Level 1 (L1) radiances from IASI to overcome some of the previous difficulties encountered and found that more variability can be extracted from IASI spectra when directly assimilating the radiances. Barret et al. (2020) confirmed that the use of a dynamical a priori based on the tropopause height significantly improved O_3 retrievals at southern mid-latitudes. Finally El Aabaribaoune et al. (2021) improved the L1 assimilation scheme by employing a more realistic observation error covariance for the L1 radiances, which reduced residual stratospheric biases. However, both the analyses of Emili et al. (2019) and El Aabaribaoune et al. (2021) were limited to a single summer month in 2010 and could not draw conclusions on the capacity of IR assimilation to reproduce the seasonal O_3 variability or trends in the extra-tropics. Note that the assimilation of IASI radiances sensitive to O_3 was also investigated in the framework of numerical weather prediction (NWP) by Dragani and McNally (2013) and, more recently, Coopmann et al. (2018). O_3 information from IR sounders could in fact improve NWP through the tracer effect (Dragani and McNally, 2013) or due to increased temperature and humidity information content (Coopmann et al., 2020). However, some difficulties still persist with respect to the correction of biases and the appearance of drifts related to the variational bias correction (Dragani and McNally, 2013). To conclude, there is a strong need to further assess the benefits of IASI IR observations for UTLS O_3 analyses both for chemical and meteorological applications.

The objective of this paper is to evaluate a new O_3 reanalysis during a full year (2010), based on the assimilation of IASI measurements within the MOdèle pour la Chimie Á Grande Echelle (MOCAGE) CTM (Josse et al., 2004). This new reanalysis profits from all methodological improvements achieved in the recent years concerning IASI O_3 assimilation. In particular, the major difference with the multi-year O_3 reanalysis of Peiro et al. (2018) (hereafter called IASI-a) is that the IASI L1 spectrum is now assimilated directly and without performing any empirical bias correction. In this study, we keep the simpler description of O_3 based on linearized chemistry (Cariolle and Teyssedre, 2007) already used in previous global reanalyses (Massart et al., 2009; Emili et al., 2014; Peiro et al., 2018) to assess the improvements in the assimilation scheme alone. On top of the usual validation against ozonesonde measurements, the obtained O_3 fields will be compared to IASI-a, to output from a chemistry–climate model used in ACCMIP (the Goddard Earth Observing System model with a coupled chemistry–climate module, GEOS-CCM), and to the Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) atmospheric composition reanalysis (CAMSR; Inness et al., 2019). Thus, we will verify the added value of IR assimilation to map the O_3 3D distribution with respect to existent state-of-the-art tech-

niques based either on full-chemistry modelling or a combination of modelling and satellite data assimilation (non IR). Results with the tested configuration might also be of interest for NWP models, which are generally based on O₃ linearized schemes (Han and McNally, 2010) for reasons of computational efficiency. Hence, in the context of ongoing efforts to include more detailed chemical modelling within NWP, this study can provide further insights into the trade-off between adding more complexity to the model and better exploiting current and future satellite measurements.

The paper is structured as follows. Section 2 summarizes the O₃ modelling and reanalysis datasets that were already publicly available prior to this work and that are used here for comparison. The measurements that are assimilated to produce the new reanalysis and those that are used for independent validation are detailed in Sect. 3. The configuration of the chemistry transport model and the set-up of the assimilation experiment are described in Sect. 4. The results section (Sect. 5) is split into four subsections: the first subsection (Sect. 5.1) is focused on the validation of the new reanalysis against ozonesondes, specifically with respect to IASI-a; the second, third, and fourth subsections (Sects. 5.2, 5.3, and 5.4 respectively) provide some further comparisons with tropospheric O₃ retrievals and the modelling and assimilation datasets of ACCMIP and CAMSRA. Conclusions and perspectives of this work are summarized in the last section.

2 Previous modelling and assimilation experiments

2.1 GEOS-CCM

The Goddard Earth Observing System (GEOS) version 5.0 is a general circulation model developed by the National Aeronautics and Space Administration (NASA) that includes an interactive chemistry module for coupled chemistry–climate modelling (CCM). It is one of the models with detailed stratospheric and tropospheric chemistry schemes that took part in the ACCMIP exercise (Lamarque et al., 2013) and was used to estimate present and future O₃ radiative forcing (Stevenson et al., 2013). It also has one of the lowest tropospheric O₃ bias amongst the ACCMIP historical simulations (Young et al., 2013), and Oman et al. (2011) showed that it skilfully reproduces the tropospheric O₃ variability linked to ENSO. In the context of this study, we consider GEOS-CCM as representing state-of-the-art chemistry–climate simulations (without data assimilation). We downloaded monthly O₃ fields for 2010 from the historical climate ACCMIP simulation that is publicly available on the Centre for Environmental Data Analysis (CEDA) archive (<http://archive.ceda.ac.uk>, last access: 15 June 2020). Details on the set-up used for this simulation can be found in Lamarque et al. (2013).

2.2 CAMSRA

The chemical reanalysis provided by the Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) is based on the Integrated Forecast System (IFS) general circulation model developed at ECMWF, which integrates detailed tropospheric chemistry and aerosol schemes (Flemming et al., 2015). Within IFS, the NWP data assimilation scheme was extended to assimilate satellite measurements of trace gases and aerosols. In the latest version of the CAMS reanalysis of the atmospheric composition (CAMSRA; Inness et al., 2019), measurements of O₃, CO, NO₂, and aerosol optical depth (AOD) are assimilated from a variety of satellites. Concerning O₃, no tropospheric measurements are currently assimilated in CAMSRA. Thus, tropospheric O₃ is constrained indirectly, either through the combination of total and stratospheric O₃ observations or through the assimilation of its chemical precursors (e.g. NO₂). Extensive validation (Inness et al., 2019; Huijnen et al., 2020) showed that biases of the CAMSRA O₃ reanalysis with respect to ozonesondes are generally lower than 10% in the troposphere, compared with values of about 15% for the ACCMIP free model simulations. Hence, CAMSRA represents a state-of-the-art O₃ reanalysis based on both comprehensive chemical modelling and most available satellite observations (except for IR sounders). CAMSRA monthly O₃ fields were downloaded from the CAMS data store (<https://ads.atmosphere.copernicus.eu>, last access: 16 June 2020).

2.3 IASI-a

The IASI-a global O₃ reanalysis (Peiro et al., 2018) is the outcome of several projects focused on the exploitation of satellite data for atmospheric analyses, which began with the Assimilation of Envisat Data (ASSET) project (Lahoz et al., 2007; Geer et al., 2006). In recent years, particular effort has been dedicated to hyperspectral IR measurements from IASI, which provide a wealth of information for tropospheric chemistry but are not yet assimilated in most operational centres. The IASI-a O₃ analysis discussed by Peiro et al. (2018) is based on a linearized O₃ chemistry configuration of the *MODéle pour la Chimie Á Grande Echelle* (MOCAGE; Josse et al., 2004; Cariolle and Teysse, 2007) and on the joint assimilation of IASI tropospheric columns and stratospheric profiles from the Microwave Limb Sounder (Emili et al., 2014). Software for a Fast Retrieval of IASI Data (SOFRID) O₃ retrievals (Barret et al., 2011), which are based on a variational retrieval scheme and the RTTOV v9 radiative transfer model (Matricardi, 2009), have been assimilated within IASI-a. The biases of the IASI-a analysis are found to be smaller than 15% in the tropical free troposphere (Peiro et al., 2018), suggesting that dense and frequent satellite observations such as IASI observations can partially make up for missing tropospheric chemistry in the model. However, no added value of IASI assimilation was found in the extra-

tropics, and a degradation was even observed in the Southern Hemisphere (SH) mid-latitudes (Emili et al., 2014). Nevertheless, the IASI-a reanalysis represents a reference to evaluate potential improvements with respect to the assimilation of IASI measurements.

3 Measurements

In this study, we assimilate infrared spectra from the IASI sensor on board the Metop-A satellite (Clerbaux et al., 2009) and stratospheric O₃ profiles retrieved from MLS limb measurements (Froidevaux et al., 2008).

IASI spectral measurements (L1c data) contain calibrated and geolocalized spectra at 0.5 cm⁻¹ spectral resolution, i.e. 8461 radiance values for each ground pixel and a footprint of 12 km. Historical L1c data granules have been downloaded from the European Organisation for the Exploitation of Meteorological Satellites (EUMETSAT) Earth Observation data portal (<https://eoportal.eumetsat.int>, last access: 17 June 2020) in NETCDF (network Common Data Form) format. Data files contain also co-located land mask and cloud fraction values, obtained from Advanced Very High Resolution Radiometer (AVHRR) measurements, also on board Metop. As the AVHRR cloud mask is not available before 20 May 2010 we also downloaded the IASI L2 cloud products provided by EUMETSAT, which are based on a combination of multiple cloud detection algorithms (EUMETSAT, 2017).

The MLS V4.2 product (Livesey et al., 2020) contains retrieved O₃ profiles on 55 pressure levels ranging from 316 to 0.001 hPa with corresponding retrieval errors. Data have been downloaded from the Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center (GES DISC) web portal (<https://disc.gsfc.nasa.gov>, last access: 17 June 2020). For a more detailed discussion on the accuracy of MLS retrievals for O₃ analyses, the reader is referred to Emili et al. (2019) or Errera et al. (2019).

Ozonesonde profiles and tropospheric columns derived from OMI-MLS observations (Ziemke et al., 2006) are used to compare the O₃ simulations to independent measurements. OMI-MLS tropospheric O₃ columns have already been used in the past to evaluate the tropical O₃ variability and have been compared to atmospheric chemistry models (Young et al., 2018; Ziemke et al., 2019). Ozonesonde data have been downloaded from the World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre (WUOUDC; <http://www.woudc.org>, last access: 17 June 2020), and OMI-MLS tropospheric O₃ have been downloaded from the GODDARD tropospheric ozone archive (<https://acd-ext.gsfc.nasa.gov>, last access: 18 June 2020). To compute model tropospheric O₃ columns that are coherent with the OMI-MLS estimation, we used the National Centers for Environmental Prediction (NCEP) tropopause monthly climatology, also available from the GODDARD archive.

4 Method

The new O₃ reanalysis (hereafter called IASI-r) fundamentally inherits the methodology from IASI-a (Emili et al., 2014; Peiro et al., 2018) but also includes the recent developments discussed by Emili et al. (2019) and El Aabaribaoune et al. (2021) concerning the direct assimilation of IASI L1 radiances. Therefore, we detail the novelties/changes introduced for this study and address the reader to the previous studies for a more detailed description on the aspects of the methodology that did not change. The reanalysis set-up and the differences between IASI-a and IASI-r are also summarized in Table 1.

4.1 Model and data assimilation scheme

The CTM MOCAGE is configured on a 2° × 2° global grid, with 60 vertical levels up to 0.1 hPa. It is forced by ERA-Interim meteorological fields (Dee et al., 2011) and employs a linearized O₃ chemistry scheme (Cariolle and Teysseire, 2007). The CTM configuration is identical to the IASI-a reanalysis (Peiro et al., 2018). As discussed by Emili et al. (2014), the main limitation of this configuration is the missing tropospheric O₃ chemistry and the main advantage is the reduced computational cost. However, it represents a good choice to implement and evaluate the assimilation of new satellite retrievals. Indeed, a similar set-up has been used to compute the 4-year-long O₃ reanalysis of Van Peet et al. (2018).

The employed assimilation algorithm is an hourly 3D-Var, as in Emili et al. (2019), which differs from the 4D-Var used by Peiro et al. (2018) and Emili et al. (2014). Due to recent optimizations of the MOCAGE code, the former implementation of the linearized and adjoint CTM codes are not yet available within the latest versions of the assimilation suite, which determined the switch to 3D-Var. However, assimilation experiments conducted with MLS observations revealed that O₃ differences between a 3D-Var and 4D-Var algorithm are very small within the adopted model configuration (less than 1 % difference on global averages, not shown).

The assimilation of IASI L1c spectra is performed through the radiative transfer model (RTM) RTTOV V11.3 (Saunders et al., 2013). The treatment of surface emissivity, skin temperature, and all other variables related to the radiative transfer follows the method described in Emili et al. (2019). The assimilation of MLS O₃ profiles is performed as described either in Peiro et al. (2018) or Emili et al. (2019). To summarize, the CTM is kept identical to IASI-a, and the data assimilation is changed only in terms of the 4D-Var (IASI-a) versus 3D-Var (IASI-r), the treatment of IASI data (L1 radiances assimilated in IASI-r instead of L2 columns in IASI-a), and the version of the radiative transfer model used (RTTOV11 for radiance assimilation instead of RTTOV9 for the L2 retrievals' assimilation).

Table 1. Configuration of the IASI-r and IASI-a (Peiro et al., 2018) experiments. The dash symbol indicates that the configuration is the same.

	IASI-a	IASI-r
CTM resolution	2° × 2°, 60 levels (surface–0.1 hPa)	–
Meteorological forcing	ERA-Interim	–
Chemical scheme	Linear O ₃ chemistry	–
Assimilation algorithm	4D-Var (12 h window)	3D-Var (1 h window)
IASI assimilation	L2 columns (1000–345 hPa) with AK*	L1 radiances (980–1100 cm ⁻¹)
IASI measurements errors	15 % and an empirical bias correction of –10 %	Estimated covariance matrix
MLS assimilation	MLS v4.2 O ₃ profiles	–
Background standard deviation	15 % troposphere, 5 % stratosphere	10 % troposphere, 2 %–4 % stratosphere
Tropopause height (for background error)	Constant (100 hPa)	Local (based on <i>T</i> profile)
Horizontal error correlation scale	500 km	200 km
Vertical error correlation scale	Zero (no correlation)	One grid point

* AK stands for averaging kernels.

4.2 Observations

We assimilate only clear-sky IASI L1c radiances in the main O₃ window (980–1100 cm⁻¹) using the same channel selection as described in Emili et al. (2019). A slightly different clear-sky selection procedure than in Emili et al. (2019) has been employed here, as the availability of cloud retrievals from AVHRR and IASI is not homogeneous during 2010: the AVHRR cloud mask is not available before May 2010 in the EUMETSAT L1c data, and the EUMETSAT L2 cloud retrievals are flawed from September to December 2010. Therefore, we used the EUMETSAT L2 cloud mask until September 2010 and the AVHRR cloud mask afterward. In both cases, the same strict threshold of 1 % is imposed on the cloud fraction to reduce possible cloud contamination as much as possible (Emili et al., 2019). Pixels affected by a strong dust spectral signature are also filtered out (Emili et al., 2019) as well as those with a surface emissivity smaller than 0.95 (mostly deserts), to avoid potential issues with O₃ inversion. Data thinning is performed using a regular grid of 1° × 1° resolution and selecting the first pixel that falls in every two grid boxes. This ensures a minimum distance of 1° among assimilated observations. Finally, a dynamical filter is used to reject pixels that differ from modelled radiances by more than 12 %. This is done to avoid assimilating observations that, for some undetected reason (e.g. erroneous surface properties or poor model representativity), differ significantly from their model counterparts. The value of the threshold is about twice the standard deviation of the observation minus background values and allows one to reject a relatively small number of potential outliers (< 5 %; see also Emili et al., 2019) that might have passed the previous filters. After the selection, the number of assimilated IASI observations varies between 6000 and about 8000 d⁻¹.

The single and most significant difference in the assimilation of IASI radiances with respect to Emili et al. (2019) is that we employed a diagnosed observation error covari-

ance (**R**) instead of the prescribed and diagonal one used previously. This choice is motivated by the results of El Aabaribaoune et al. (2021), who found that a diagnosed **R** with non-zero inter-channel error correlations can reduce stratospheric biases otherwise introduced by IASI assimilation. The diagnostic of **R** is based on innovation statistics (Desroziers et al., 2005), and we followed the procedure suggested by El Aabaribaoune et al. (2021): (i) we first ran an assimilation experiment using the same **R** as in Emili et al. (2019) (diagonal with a standard deviation of 0.7 mW m⁻² sr⁻¹ cm), (ii) we diagnosed **R** on an average period of 1 month, (iii) we used the obtained **R** to run a second assimilation experiment for a longer period, (12 months) and we again estimated **R**. The latter **R** estimation is the one that is used to compute IASI-r because it provides slightly superior results with respect to the first estimation (not shown; see also the discussion in El Aabaribaoune et al., 2021). The employed **R** (Fig. 1) is found to be similar to the error covariance matrices estimated by El Aabaribaoune et al. (2021), i.e. it presents significant inter-channel error correlations and an error standard deviation matching the typical spectral signature of O₃ absorption in the IR.

Concerning the MLS, we assimilated only O₃ concentrations above 170 hPa and made use of retrieval errors to prescribe **R** (Emili et al., 2019).

4.3 Background error covariance

The background error covariance **B** has been slightly improved with respect to previous studies, which prescribed O₃ error profiles based on a single and fixed tropopause height (Emili et al., 2014; Peiro et al., 2018; Emili et al., 2019; El Aabaribaoune et al., 2021). For this study, the tropopause height is computed every 3 h based on the model temperature profiles (ERA-Interim) and using the 2 K m⁻¹ lapse rate definition of the World Meteorological Organization (WMO). The background error standard deviation is prescribed as a

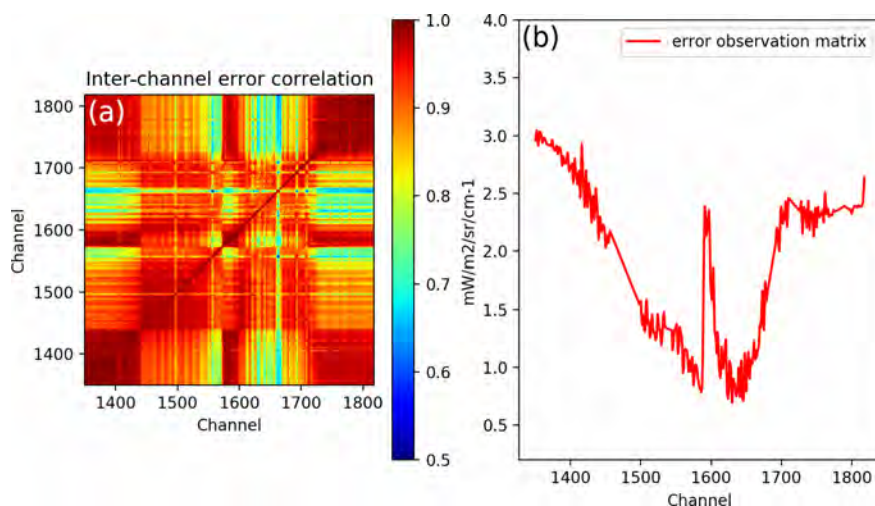


Figure 1. Observation error covariance used to assimilate IASI L1 radiances in this study: correlation matrix (a) and error standard deviation (squared diagonal of the covariance matrix, b). The x and y axes in panel (a) and the x axis in panel (b) report the IASI spectral channel's number within the $980\text{--}1100\text{ cm}^{-1}$ window.

percentage of the background O_3 profile but with refined values depending on the layer (10 % in the troposphere, 1 % close to the tropopause, 4 % in the lower stratosphere, and 2 % in the upper stratosphere) and with a correct definition of the tropopause that depends now on the hour and the geographical position. The smaller errors in correspondence of the tropopause layer reduce the spread of large stratospheric increments into the troposphere. Horizontal and vertical error correlations have been kept the same as in Emili et al. (2019).

Using the new dynamical parameterization of the background standard deviation instead of the one described by Peiro et al. (2018) mostly provided a reduction in the bias of about 10 % around the tropopause (not shown).

5 Results

We examine O_3 simulations for the full year for 2010, which is characterized by a sharp transition from positive (El Niño) to negative (La Niña) ENSO conditions (Peiro et al., 2018). The corresponding large departure from climatological O_3 in the tropics represents an ideal condition for evaluating chemical simulations. Looking at a full year also allows for the evaluation of a complete O_3 seasonal cycle in the extratropics, which is missing in recent studies (Emili et al., 2019; El Aabaribaoune et al., 2021).

The IASI-r analysis was initialized with the output of a free MOCAGE simulation on 1 January 2010 and run until 31 December 2010, assimilating IASI and MLS observations. In parallel, a free model simulation without data assimilation was computed for the same period and named “Control”. Note that the control simulation is identical to the one

First, IASI-r is validated against ozonesondes and compared to IASI-a (Sect. 5.1) in order to quantify the improvements with respect to the previous reanalysis. A multi-model intercomparison is then presented (Sect. 5.2, 5.3, and 5.4) to evaluate IASI-r against existing state-of-the-art chemistry models, reanalyses, and OMI-MLS retrievals. All reported statistics represent either yearly or monthly data averages.

5.1 Validation against ozonesondes

Matches between IASI-r and ozonesondes profiles were computed online during the simulation, through a linear interpolation of hourly O_3 fields at the time and location of each ozonesonde measurement. Original ozonesonde profiles were interpolated to a coarser vertical grid, representative of MOCAGE vertical resolution prior to this matching. Thus, all pairs of matched profiles are defined over the same pressure grid (using missing values when necessary), which allows a straightforward computation of average statistics. The same strategy has been used to compute matches between ozonesondes and IASI-a, except for the temporal interpolation, which is done using 6-hourly model outputs instead of hourly ones, due to the limited availability of archived IASI-a data. The impact of the different temporal interpolation on the validation statistics has been found to be non-significant.

The gain in the root-mean-square error (RMSE) with respect to ozonesondes for the full year is depicted in Fig. 2 for IASI-r and IASI-a (as a percentage of the ozonesondes concentration). The gain is computed by means of subtracting the RMSE of IASI-r and IASI-a from that of the control simulation, as in Emili et al. (2019). Negative values in Fig. 2 mean that the O_3 RMSE is improved with respect to the control simulation, whereas positive values mean degradation. This type of statistical indicator is commonly used to

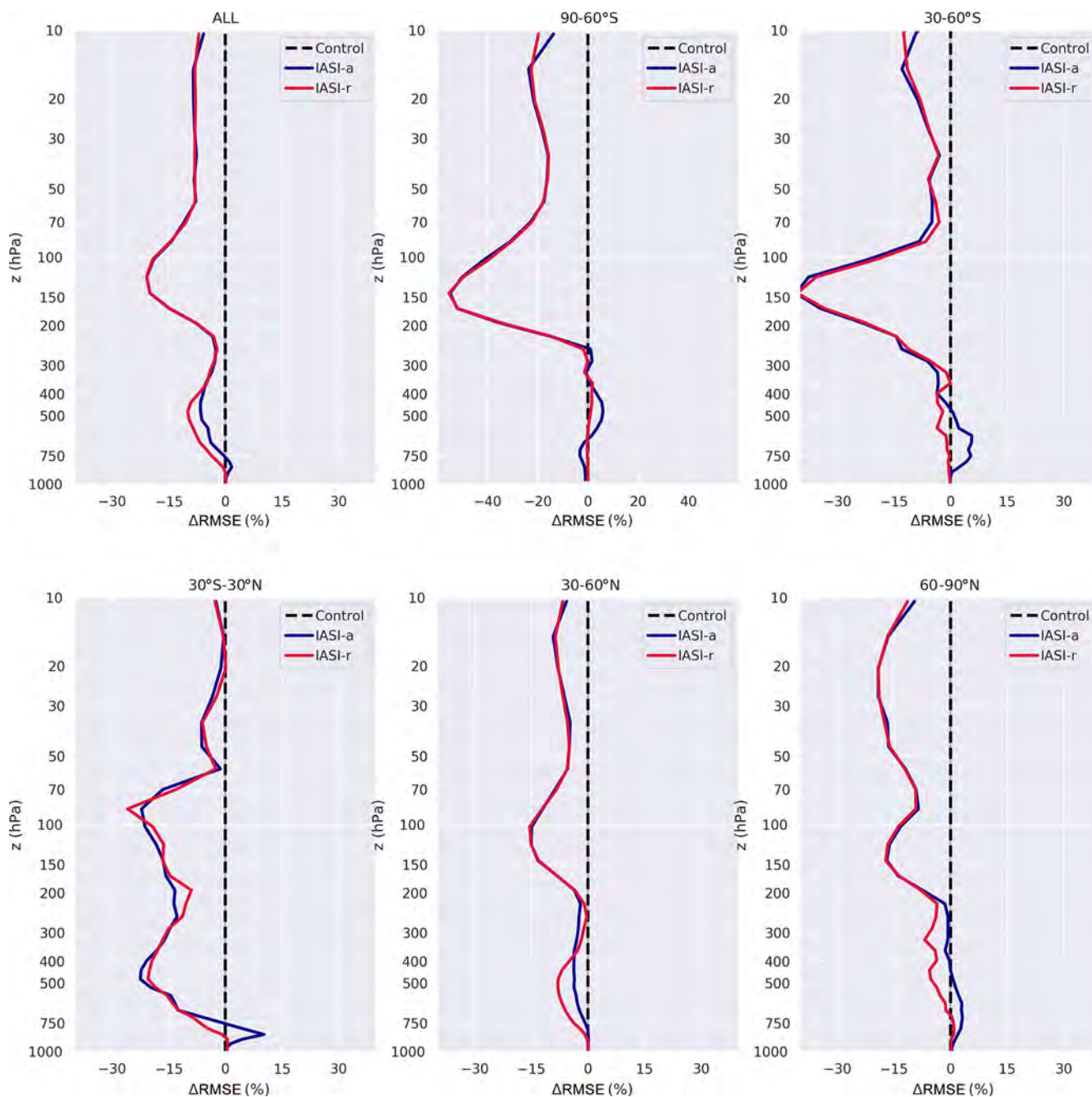


Figure 2. Relative gain in the root-mean-square error (RMSE) with respect to radio soundings averaged globally (top-left plot) and for five respective latitude bands: 90–60° S, 30–60° S, 30° S–30° N, 30–60° N, and 60–90° N (see panel headings). IASI-a is depicted in blue, and IASI-r is shown in red. Negative values indicate a decrease (improvement) in the RMSE with respect to the control simulation (dotted line), whereas positive values indicate an increase (degradation) in the RMSE with respect to the control simulation.

highlight differences between data assimilation experiments. We remark that both IASI-r and IASI-a improve the global RMSE by 5% to 20% depending on the altitude. The two reanalyses show almost identical skill above 300 hPa due to the positive impact of MLS that is assimilated in both experiments. However, IASI-r shows slightly superior results in the free troposphere (350–800 hPa). Differences in the

94 troposphere become more evident when the RMSE gain is computed for different latitude bands. A well-known problem that affected previous reanalyses done using IASI O₃ retrievals is the appearance of positive biases in the SH and at high latitudes (Emili et al., 2014), which is highlighted by the degradation in the RMSE of the IASI-a reanalysis. With IASI-r, such degradation is not present: the RMSE gain is

neutral in the SH and becomes slightly positive in the Northern Hemisphere (NH). In the tropics, where IASI has the largest sensitivity to tropospheric O₃, both IASI-r and IASI-a show the largest improvements in the O₃ profile, with similar gains of about 20 %, except for a spike in RMSE degradation that still occurred within IASI-a at about 800 hPa.

Pairs of ozonesondes and model instantaneous profiles are used to compute monthly averaged O₃ columns, in order to further focus on the tropospheric O₃ variability. Figure 3 reports free-troposphere (345–750 hPa) O₃ columns measured by ozonesondes and the corresponding reanalyses values. The altitude range has been chosen to better investigate differences that appeared in Fig. 2. The figure reports absolute O₃ columns (in Dobson units, DU) for ozonesondes, IASI-r, IASI-a, and the control simulation (left column) as well as the corresponding relative differences between the simulation and the ozonesondes (right column). We remark that the seasonal variability in the O₃ column in the extra-tropics is much better described by IASI-r than by IASI-a, which is also reflected in the global plot. In particular, the difference between IASI-r and ozonesonde columns mostly remains below 10 %, whereas it reached values of +30 % (–20 %) in the 30–60° S (30–60° N) latitude band with IASI-a, sometimes even exceeding the error of the control simulation. The correspondence between IASI-r and ozonesondes is even remarkably good in the Arctic Circle (60–90° N). Both IASI-r and IASI-a fail to reproduce the seasonal cycle of tropospheric O₃ in the Antarctic region (60–90° S), which was also absent in the control simulation. In the tropical band (30° S–30° N), IASI-r and IASI-a provide similar results, as already suggested from Fig. 2.

It is highly likely that the large improvements in the extra-tropics with respect to IASI-a are a consequence of the direct assimilation of IASI L1 radiances, which represents the main upgrade in the methodology. This interpretation is also supported by the results of Barret et al. (2020), who found a significant improvement in O₃ columns in the extra-tropics when using a dynamical a priori profile in the retrieval algorithm instead of the constant one used originally Barret et al. (2011). We remind the reader that IASI-a was computed via the assimilation of the O₃ retrievals described in Barret et al. (2011) after the application of an empirical bias correction of 10 % (Emili et al., 2014; Peiro et al., 2018). Hence, another interesting result is that IASI-r can achieve very similar results to IASI-a in the tropics without the use of an empirical bias correction procedure.

The neutral or negative impact of IASI assimilation in the Antarctic region is probably due to difficulties in cloud detection over icy surfaces (Ruston and McNally, 2012). Nevertheless, IASI-r O₃ fields remain closer to the control simulation than IASI-a, which introduced a small but unrealistic seasonal variability. Overall, we conclude that IASI-r provides a significant improvement over past attempts to assimilate IASI tropospheric O₃ products, especially at mid-latitudes and high latitudes.

5.2 Comparison of tropospheric ozone columns

Ozonesondes are valuable measurements to evaluate modelled O₃ profiles in the troposphere, but their geographical distribution is uneven and their number is relatively small in the tropics and SH. OMI-MLS retrievals (Ziemke et al., 2006, 2011) provide a satellite-based estimation of the TOC that can be used to evaluate models' geographical variability in tropical and mid-latitude regions. Hence, OMI-MLS TOC permits the evaluation of models in regions that are not well covered by ozonesondes, with the main limitation being the lack of vertical information within the troposphere.

Some care must be taken to allow a meaningful comparison between OMI-MLS TOC and the corresponding modelled quantity (Ziemke et al., 2006). The monthly climatology of the tropopause height used within the OMI-MLS algorithm (NCEP model; Ziemke et al., 2011) has also been employed here to compute tropospheric columns for all of the modelling experiments. This was done after the vertical interpolation of modelled O₃ fields on a common vertical pressure grid, which has been chosen to be identical to that available for the CAMSRA database. This approach minimizes potential TOC discrepancies due to different tropopause computation or due to different vertical resolutions among models. Monthly TOC fields were first computed for each model and then averaged temporally to compute TOC maps for the four different seasons (December–January–February, DJF; March–April–May, MAM; June–July–August, JJA; and September–October–November, SON), which are displayed in Figs. 4, 5, 6, and 7 respectively.

During DJF months (Fig. 4), the global TOC is the lowest (28.6 DU for OMI-MLS retrievals). IASI-r, IASI-a, and CAMSRA show slightly higher TOC values than OMI-MLS but a rather similar geographical distribution to OMI-MLS and among each other. The GEOS-CCM model shows larger TOC maxima and lower minima with respect to the other models and OMI-MLS. The MOCAGE control simulation shows less pronounced zonal variability than all other models, which is expected due to the missing tropospheric chemistry description. The visible zonal structures in the control simulation are mostly a result of the zonal variability in the tropopause height.

An increase in TOC is observed in the NH mid-latitudes during MAM months (Fig. 5). Values of TOC larger than 40 DU are observed with OMI-MLS over populated continental regions as well as over oceans. Larger TOC values are predicted by CAMSRA and GEOS-CCM compared with MOCAGE-based simulations and OMI-MLS. Due to the small sensitivity of IASI IR observations to the boundary layer O₃, IASI-r and IASI-a share the same limitations as the control simulation, i.e. a relaxation toward a zonal O₃ climatology in the lowermost model layers that is negatively biased (Emili et al., 2014). Such biases do affect the TOC computation to a limited extent. Nevertheless, IASI-r provides slightly larger TOC values than IASI-a, which seems

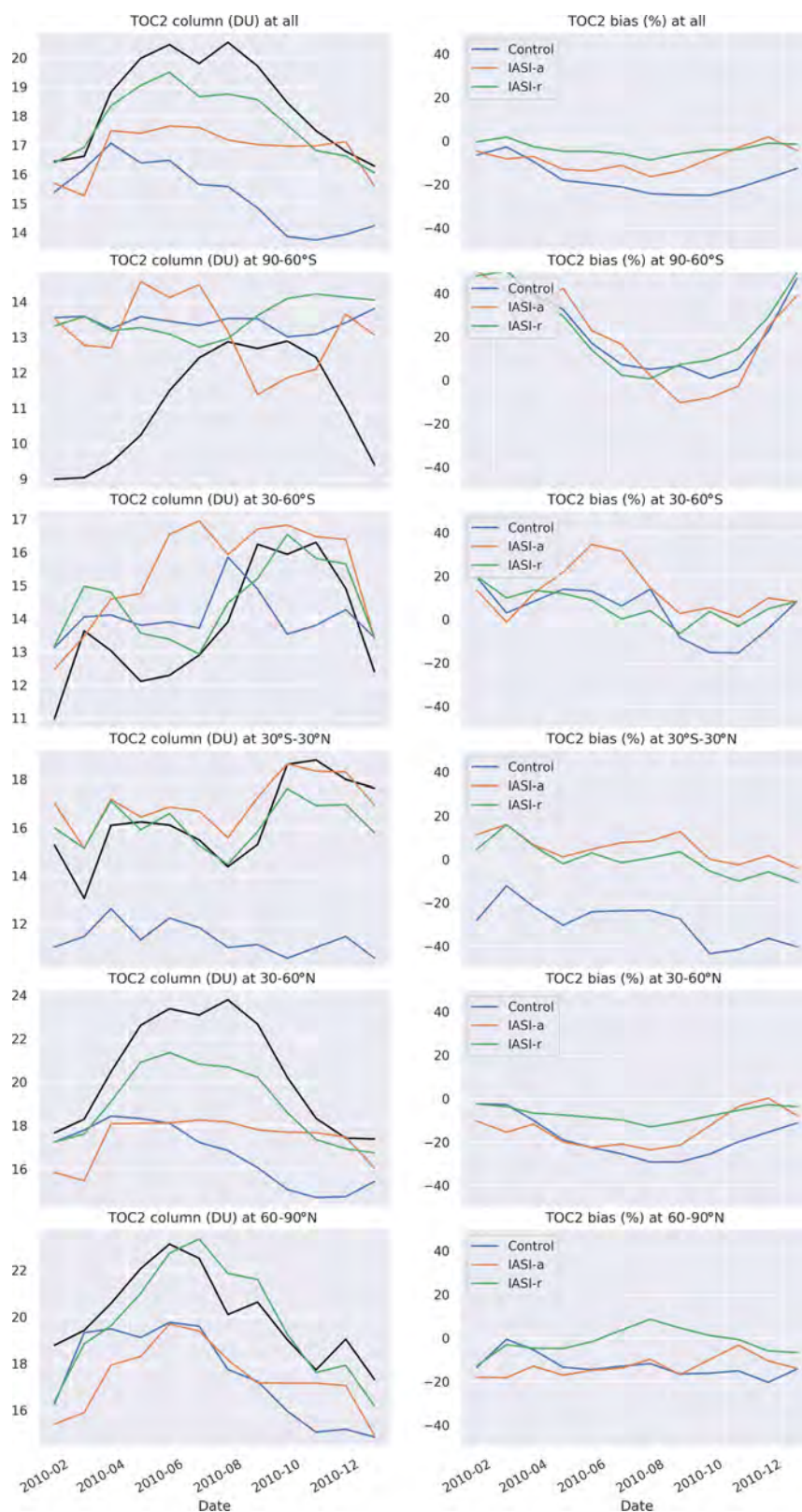


Figure 3. Monthly variability in the ozone free-troposphere column (345–750 hPa) averaged globally (top row) and for five respective latitude bands: 90–60° S, 30–60° S, 30° S–30° N, 30–60° N, and 60–90° N (see panel headings). The left column of the figure shows the absolute values of the O₃ columns (in DU) for IASI-a (orange line), IASI-r (green line), the control simulation (blue line), and the corresponding ozonesonde columns (black line). The right column of the figure shows the relative differences between the simulated and corresponding ozonesonde columns (as a percentage of ozonesonde columns).

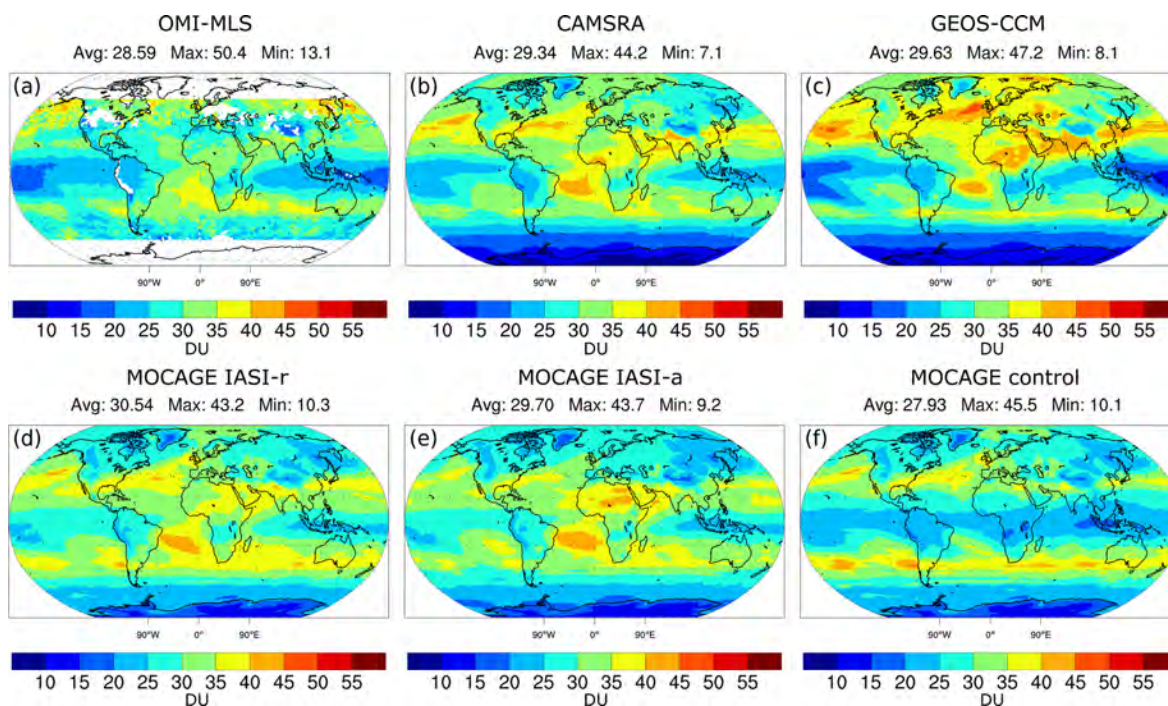


Figure 4. Tropospheric ozone column averaged over December–January–February 2010 from OMI-MLS retrievals (a), CAMSRA reanalysis (b), GEOS-CCM simulation (c), IASI-r reanalysis (d), IASI-a reanalysis (e), and the MOCAGE control simulation (f). Mean, minimum, and maximum values of ozone (in DU) are depicted over each plot.

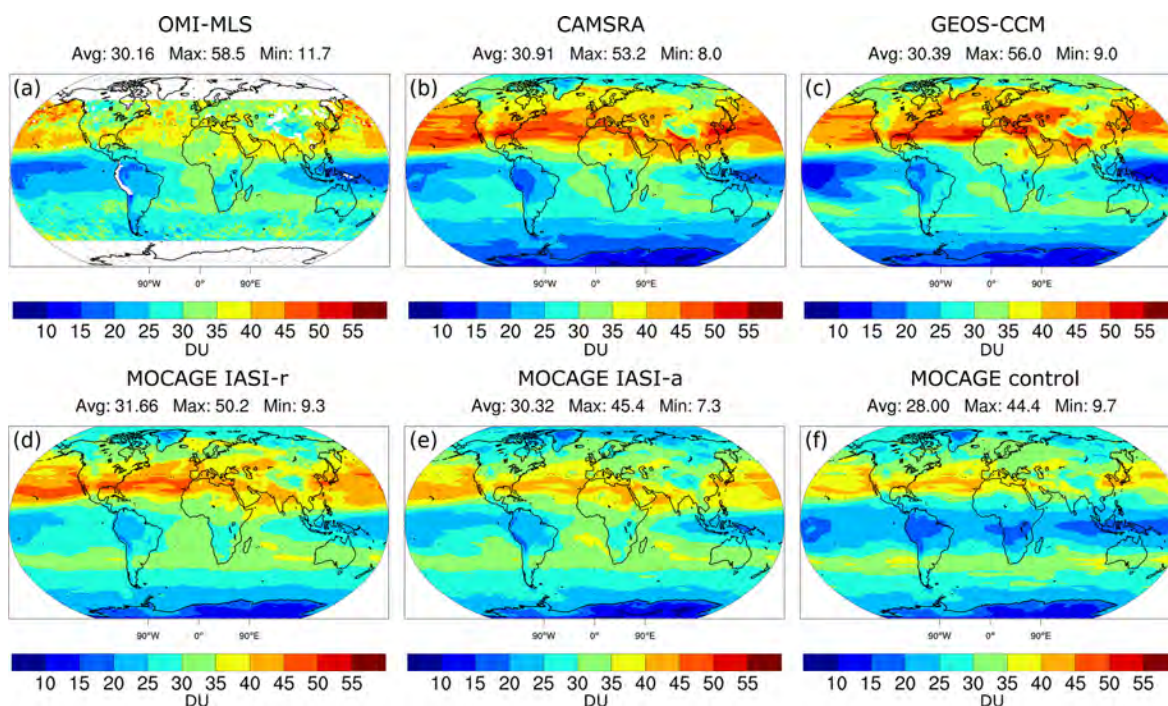


Figure 5. Tropospheric ozone column averaged over March–April–May 2010 from OMI-MLS retrievals (a), CAMSRA reanalysis (b), GEOS-CCM simulation (c), IASI-r reanalysis (d), IASI-a reanalysis (e), and the MOCAGE control simulation (f). Mean, minimum, and maximum values of ozone (in DU) are depicted over each plot.

more coherent with full-chemistry models and ozonesondes (Fig. 3). The decrease in TOC in the SH during the MAM months is reproduced by all models.

During the JJA period (Fig. 6), values of TOC reach the maximum in the NH mid-latitudes with local maxima in the Mediterranean region, Southeast Asia, and China. As noted previously, GEOS-CCM tends to provide larger TOC variability and extrema. IASI-r and CAMSRA provide the best match to OMI-MLS measurements in this period of the year, whereas IASI-a and the control simulation underestimate the TOC. The increase in TOC in the SH tropical and mid-latitudes with respect to the MAM period is reproduced by all models except for the control simulation.

In the SON months (Fig. 7), the TOC decreases significantly in the NH but increases in the SH, with a well-known local maximum stretching from the southern Indian Ocean to the Atlantic Ocean (Liu et al., 2017). IASI-r, CAMSRA, and, to a lesser extent, IASI-a, provide TOC distributions that match quite well with OMI-MLS measurements. GEOS-CCM simulates a smaller SH maximum and overly large TOC values in the NH mid-latitudes. On the other hand, the MOCAGE control simulation underestimates TOC values at all latitudes and does not reproduce the expected regional variability.

Finally, we remark that both IASI-r and IASI-a slightly overestimate TOC values inside the tropical deep convergence zone in Southeast Asia. This behaviour is observed for all periods of the year.

Overall, IASI-r and CAMSRA TOC values are the closest to OMI-MLS measurements, both in terms of regional variability and amplitude as well as for most of 2010. IASI-a TOC shows similar global patterns to IASI-r but with reduced amplitude, as anticipated from the previous section (Fig. 3).

5.3 Ozone ENSO index

We computed the O₃ ENSO index (Ziemke et al., 2011) for the ensemble of the O₃ analyses that are discussed in this study and compared it to the index derived directly from OMI-MLS observations. The O₃ ENSO index is defined as the difference (in DU) between the average tropospheric O₃ column in Southeast Asia (15° S–15° N and 70–140° E) and in the Pacific Ocean tropical band (15° S–15° N and 180–110° W). The O₃ ENSO index is strongly correlated with ENSO variability and has already been used to evaluate the capacity of CTMs and CCMs to reproduce tropical O₃ variability (Ziemke et al., 2015; Peiro et al., 2018).

This comparison does not represent an independent validation for CAMSRA, where both MLS and OMI measurements are assimilated. Nevertheless, it offers a useful benchmark for the other simulations presented in this study.

In Fig. 8, we report the O₃ ENSO index for 2010. As expected and already discussed by Peiro et al. (2018), the control simulation is not able to reproduce the O₃ ENSO signal

observed by OMI-MLS, especially concerning the positive phase of the index. IASI-a has a good variability but a slightly negative bias, which was already diagnosed by Peiro et al. (2018) for reasons that were not clear at that time. GEOS-CCM displays smaller biases but a shift of 1 or 2 months concerning the transition between the positive and negative ENSO phases. IASI-r shows both small bias and a remarkably good correlation with OMI-MLS. Similar considerations can be given for CAMSRA reanalysis.

To summarize, IASI-r improved the description of tropical O₃ variability linked to ENSO with respect to IASI-a, and it performs very similarly to CAMSRA, which has a full description of tropospheric chemistry and constrains tropospheric O₃ due to the simultaneous assimilation of both OMI and MLS. The new results also suggest that the bias of IASI-a could be linked to the limits of the empirical bias correction adopted by Emili et al. (2014) and Peiro et al. (2018) when assimilating IASI L2 retrievals. This problem is avoided with the direct assimilation of L1 radiances.

5.4 Comparison of ozone monthly fields

In Fig. 9, we present zonal averages of O₃ concentration as a function of altitude and month. The figure reports the temporal variability in monthly O₃ profiles at different latitudes (see panel headings) for CAMSRA (first column) as well as the difference between IASI-r, IASI-a, GEOS-CCM, the MOCAGE control simulation and CAMSRA (from left to right; see panel headings). CAMSRA, which is based on both comprehensive tropospheric chemistry and satellite assimilation, is considered here as the reference to be matched by the other systems.

In the stratosphere (10–150 hPa), the differences between CAMSRA and IASI-r are smaller than 5 %, except close to the tropical tropopause, where they top at about 20 %. On the other hand, the differences between CAMSRA and our control simulation are significantly larger at all latitudes (up to 50 %). We can conclude that the strong similarities in stratospheric O₃ between CAMSRA and IASI-r are a consequence of assimilating MLS profiles in both reanalyses and of not of employing the same chemical mechanism (Cariolle and Teyssedre, 2007). The differences at the tropical tropopause might be linked to the different vertical resolution or assimilation configuration, which are expected to play a more significant role where O₃ vertical gradients are strong and concentrations are small. The GEOS-CCM simulation, which employs a detailed stratospheric O₃ chemical mechanism but does not assimilate any data, shows a persistent negative bias with respect to CAMSRA or IASI-r (of about 5 %–10 %). Note that the occurrence of the South Pole O₃ depletion starting in September is significantly underestimated in the control simulation, as well as by GEOS-CCM.

In the free troposphere (250–750 hPa), the control simulation has a predominant negative bias (up to 30 %) in the tropics and in the NH, whereas biases change sign as

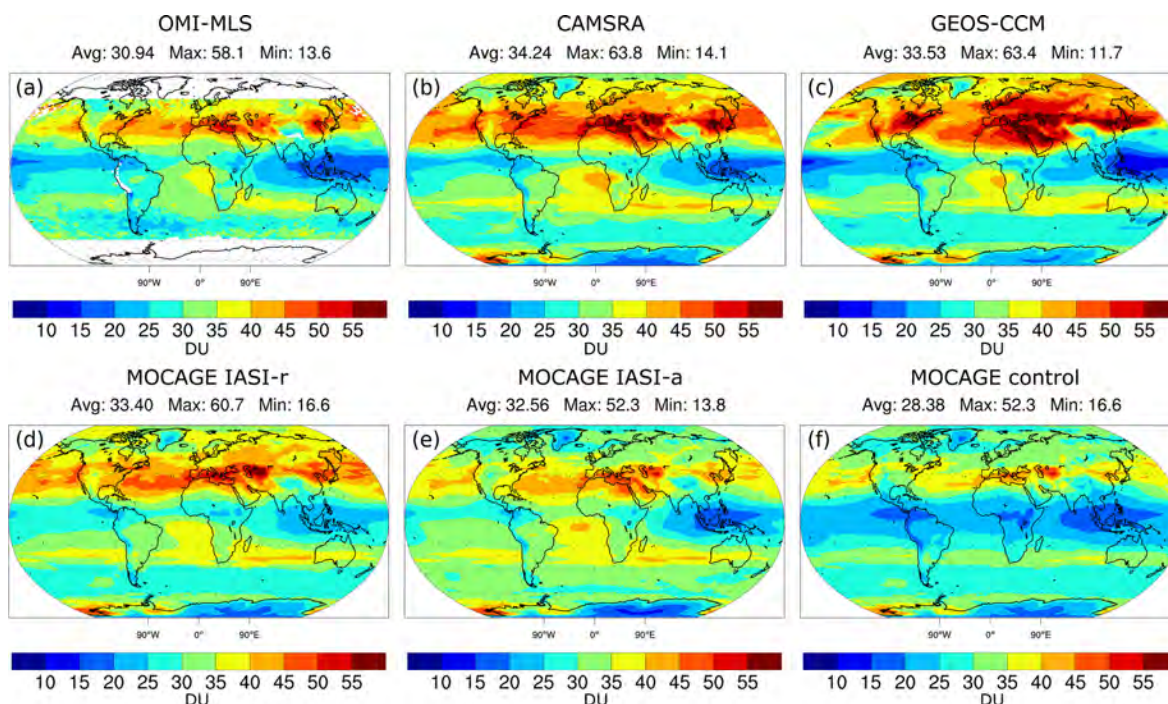


Figure 6. Tropospheric ozone column averaged over June–July–August 2010 from OMI-MLS retrievals (a), CAMSRA reanalysis (b), GEOS-CCM simulation (c), IASI-r reanalysis (d), IASI-a reanalysis (e), and the MOCAGE control simulation (f). Mean, minimum, and maximum values of ozone (in DU) are depicted over each plot.

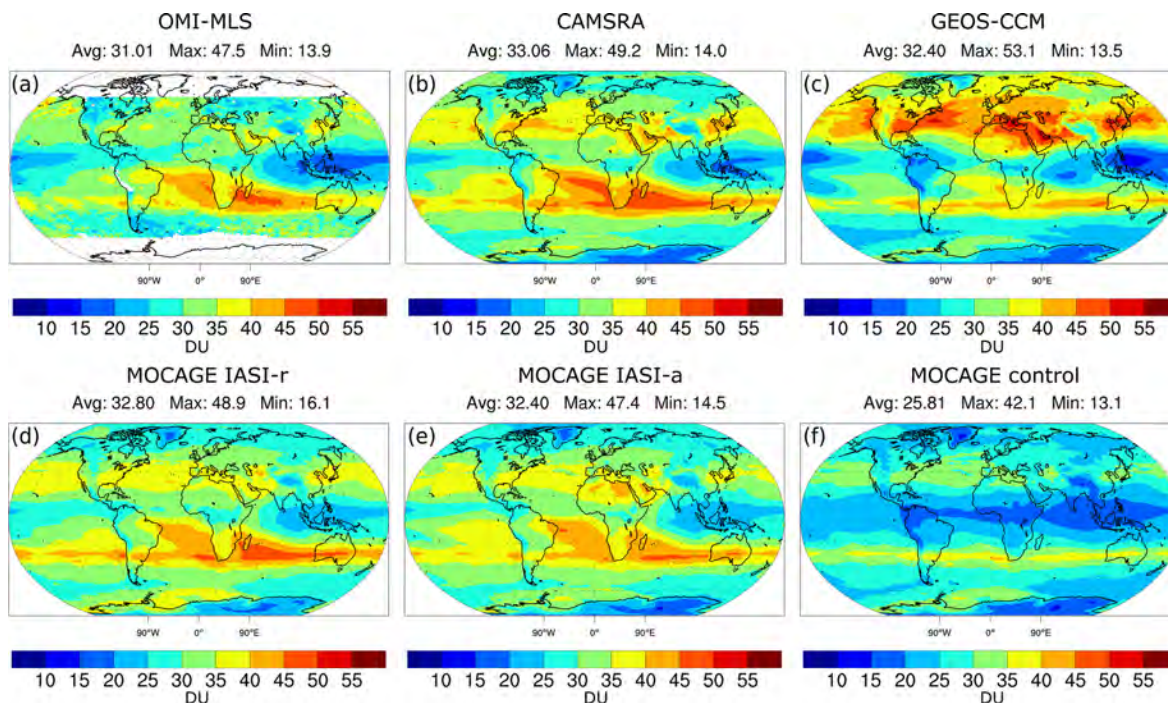


Figure 7. Tropospheric ozone column averaged over September–October–November 2010 from OMI-MLS retrievals (a), CAMSRA reanalysis (b), GEOS-CCM simulation (c), IASI-r reanalysis (d), IASI-a reanalysis (e), and the MOCAGE control simulation (f). Mean, minimum, and maximum values of ozone (in DU) are depicted over each plot.

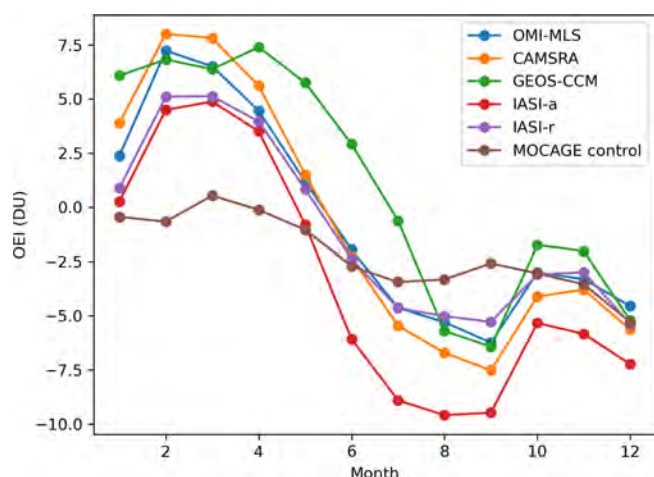


Figure 8. Ozone ENSO index (OEI) from OMI-MLS measurements (blue line), CAMSRA reanalysis (orange), GEOS-CCM simulation (green), IASI-a reanalysis (red), IASI-r reanalysis (violet), and the MOCAGE control simulation (brown).

a function of altitude and month in the SH. These biases are in accordance with previous studies (Emili et al., 2014) and Fig. 3, and they are a consequence of the missing tropospheric mechanisms in the linearized chemical scheme. GEOS-CCM shows smaller differences with CAMSRA, but systematic negative biases are found in the tropics (10%–15%). In the NH, a positive bias initially localized in the upper troposphere (30%–40% between 150 and 400 hPa) spreads to the whole troposphere later in the year. Differences between IASI-r and CAMSRA are smaller at almost all latitudes with respect to the control simulation and GEOS-CCM, except in the lowermost layers (below 750 hPa), where IASI measurements do not provide sensitivity. Absolute differences with CAMSRA are lower than 10% at all latitudes and seasons, except in the SH and springtime period.

IASI-a results are reported for completeness (Fig. 9, third column), and their comparison with IASI-r (second column) is coherent with previous findings (Sect. 5.1): IASI-r significantly reduced the tropospheric biases of IASI-a at mid-latitudes and high-latitudes, both in the SH and NH. Absolute differences between IASI-r/IASI-a and CAMSRA remain of the same order (10%) in the tropics but differ in sign as a function of altitude and month.

To summarize, the monthly variability in O_3 profiles provided by IASI-r is the closest to that of CAMSRA. As the assimilation of MLS measurements does not influence the O_3 profiles below 300 hPa (Emili et al., 2014, 2019), we can conclude that the significant reduction in the tropospheric biases with respect to the control simulation during the entire year is a consequence of IASI assimilation. Due to the good coverage of IASI measurements, IASI-r also provides smaller differences with CAMSRA than GEOS-CCM, which employs

a comprehensive chemical mechanism but is not constrained by satellite observations in this study.

6 Conclusions

The objective of this study was to re-evaluate the impact of IASI IR measurements on global tropospheric O_3 analysis, following recent improvements in methodological aspects concerning the data assimilation scheme (Emili et al., 2019; El Aabaribaoune et al., 2021). In particular, we recomputed the O_3 reanalysis of Peiro et al. (2018) for the year 2010, but we directly assimilated IR radiances from IASI instead of Level 2 retrievals. We named the new reanalysis IASI-r as opposed to IASI-a of Peiro et al. (2018), which shows little or no benefit from IASI assimilation in the extra-tropics. Most aspects of the system (e.g. chemical transport model, assimilation of stratospheric O_3 from MLS) were kept unchanged with respect to IASI-a in order to primarily evaluate the impact of the radiances assimilation. Some adjustments of the background error covariance were also performed, although they only produced a minor impact on reanalysis results.

IASI-r was first validated against ozonesondes, and the scores were compared with those of IASI-a. The scores of IASI-r and IASI-a are similar at tropical latitudes but are significantly better for IASI-r in the extra-tropics. The assimilation of IASI in this study improves the RMSE of the control simulation both in the SH mid-latitudes and in the NH polar region, whereas IASI-a was found to degrade the RMSE at these latitudes. The monthly variability in tropospheric O_3 columns confirms these findings and demonstrates that some positive seasonal signal can clearly be extracted from IASI at most latitudes. The only region where the impact is still neutral is between 60 and 90° S, probably because of the difficulties involved in cloud screening and O_3 retrieval over elevated and icy surfaces.

Further analysis of IASI-r/IASI-a and two state-of-the-art modelling and data assimilation products (GEOS-CCM and CAMSRA) was conducted in the tropical region, by comparing the O_3 ENSO index. We found that IASI-r provides, along with CAMSRA, values of the ENSO index that are the closest to well-established satellite estimates (OMI-MLS) and significantly reduces the negative bias of IASI-a. We remind the reader that, while IASI-a already captured the O_3 variability in the tropics quite well, an empirical bias correction of Level 2 retrievals was necessary to avoid residual biases in the reanalysis (Emili et al., 2014). Residual biases in the O_3 index demonstrated the difficulties involved with such an approach. Within IASI-r, no observational bias correction has been performed and this was not found to be detrimental to the reanalysis. Barret et al. (2020) showed that the O_3 prior information used in L2 retrievals was likely a reason for some of the tropospheric biases previously found with IASI assimilation. The differences found between IASI-r and IASI-a in this study point to the same conclusion, i.e. that a dynamical

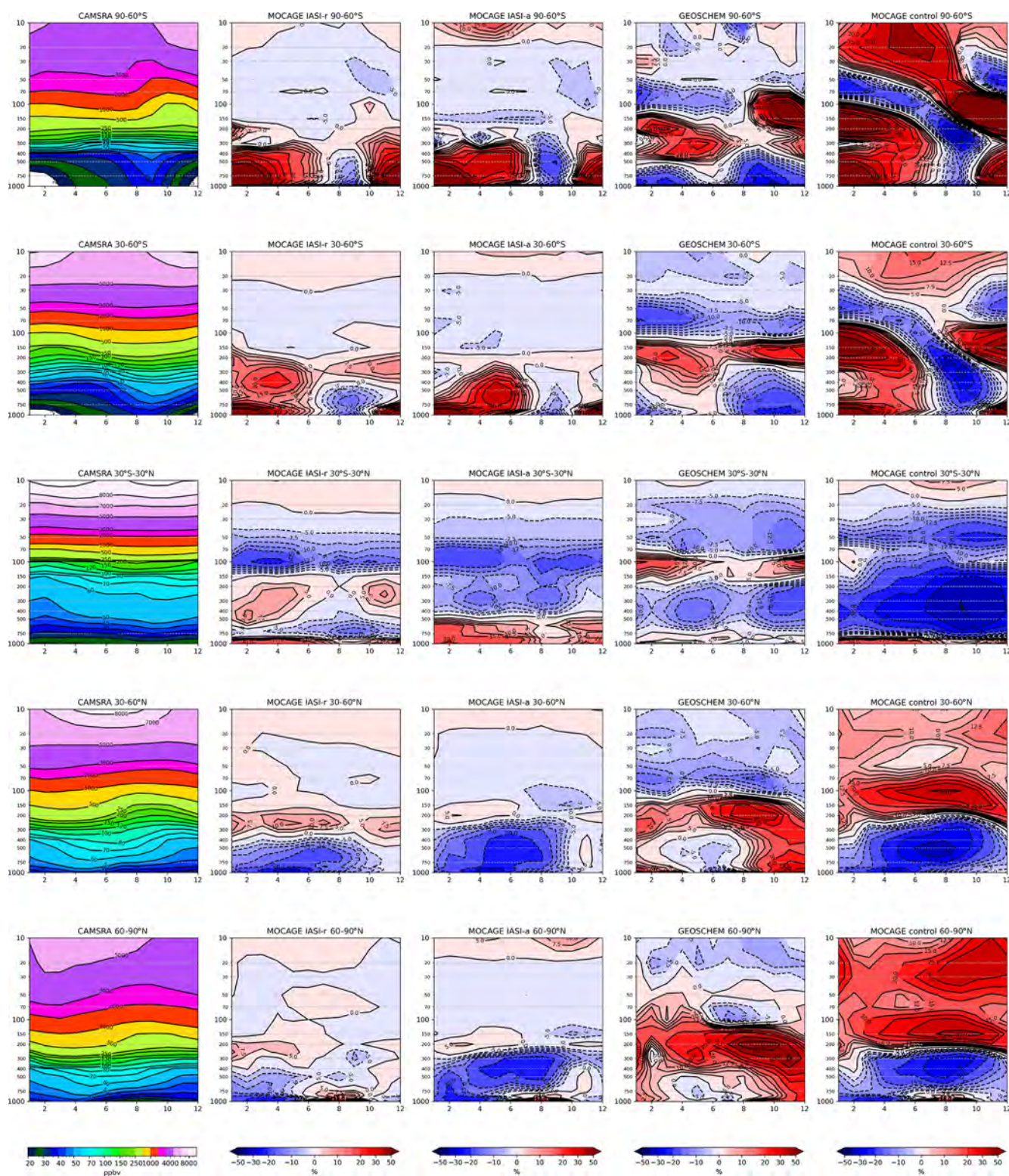


Figure 9. Ozone zonal averages as a function of month (x axis) and altitude (y axis, in hPa) for five respective latitude bands: 90–60° S, 30–60° S, 30° S–30° N, 30–60° N, and 60–90° N (see panel headings). CAMSRA O_3 (in ppbv) is plotted in the first column. The relative differences between IASI-r (second column), IASI-a (third column), GEOS-CCM (fourth column), the MOCAGE control simulation (fifth column) and CAMSRA O_3 are given as a percentage of the CAMSRA O_3 .

O₃ prior information, which comes directly from the CTM forecasts in our case, is beneficial for the assimilation of IR measurements. In the future, it might be interesting to evaluate the assimilation of improved Level 2 retrievals (Barret et al., 2020) and see whether this also solves the issues previously encountered with IASI-a.

Finally, the temporal variability in vertical O₃ profiles from IASI-r, IASI-a, GEOS-CCM, and the MOCAGE control simulation (linearized O₃ chemistry) has been compared to that provided by the CAMSRA reanalysis, which has been extensively validated in other studies and has proven to be quite accurate. The monthly O₃ profiles of IASI-r are the closest to CAMSRA, confirming that a simple chemical mechanism in combination with the assimilation of both stratospheric and tropospheric O₃ sounders can provide similar performance to more complex set-ups. Thus, the methodology presented in this study could be useful to improve the tropospheric O₃ description in NWP systems (usually based on simplified O₃ chemistry), where IR measurements are already assimilated to constrain temperature and water vapour profiles. The additional cost of the RTM computations would, in this case, scale linearly with the number of added O₃-sensitive channels. In this work, we used the original spectral selection of Barret et al. (2011), but the presence of strong inter-channel error correlations (El Aabaribaoune et al., 2021) suggests the possibility to significantly reduce the number of assimilated channels without degrading the analysis. This represents an interesting area for further research.

The GEOS-CCM simulation, which is based on a comprehensive chemical mechanism but does not assimilate any satellite information in this study, sits between our control simulation and IASI-r. Hence, we advocate that assimilating IR measurements from IASI might also be beneficial for models that are based on more detailed O₃ chemistry. An evaluation of the added value of IASI assimilation within the CAMSRA system would also offer further insights into the relative importance of UV and IR sounders for tropospheric O₃ reanalyses.

A strong data thinning of IASI observations has been performed in this study to match the low resolution of the CTM (2°), which resulted in the rejection of many potentially informative IASI pixels. The small numerical cost of the CTM configuration permits an increase in horizontal resolution and, thus, the possibility to use significantly more satellite observations. A strong increase in the number of assimilated pixels might require an investigation of the presence and the potential implementation of spatially correlated observation errors, which are still neglected in most systems. Further improvements in IR O₃ assimilation might also come from simulating the effect of large aerosol particles (e.g. dust) in the radiative transfer computations. All of these aspects deserve to be considered in future studies.

Code and data availability. The model simulations presented in this study (IASI-r, IASI-a, and the control simulation) as well as the input data (observations, meteorological fields, and error covariance matrices) are available from the following permanent link: <https://b2share.cerfacs.fr/records/e3493962fb0e4e6b918d846b070de9d9> (Emili, 2021). The software used to generate the analysis (MOCAGE and its variational assimilation suite, release version 2020.1.0) is a research-operational code that is property of Météo-France and CERFACS and is not publicly available. Readers interested in obtaining parts of the code for research purposes can directly contact the authors of this study.

Author contributions. MEA provided the computer code to compute the IASI error covariance matrix and revised the manuscript. EE carried out the experiments, analysed the results, and wrote the manuscript.

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

Disclaimer. Publisher's note: Copernicus Publications remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.

Acknowledgements. We acknowledge EUMETSAT for providing IASI L1C data, WOUDC for providing ozonesondes data, and the NASA Jet Propulsion Laboratory for the Aura MLS Level 2 O₃ data used in this study. We thank the Copernicus team at ECMWF for providing the CAMSRA reanalysis and the Centre for Environmental Data Analysis (CEDA) for providing GEOS-CCM data from the ACCMIP project. We also thank the MOCAGE team at Météo-France for providing the chemical transport model, the RT-TOV team for the radiative transfer model, and Jerry Ziemke and the NASA Goddard Space Flight Center for the OMI-MLS tropospheric O₃ data. We finally acknowledge Andrea Piacentini and Gabriel Jonville for their help with the technical developments of the MOCAGE assimilation code. This work was made possible due to financial support from the Région Midi-Pyrénées, who sponsored the preliminary work of Hélène Peiro on the subject, and CNES (Centre National d'Études Spatiales), through the TOSCA programme.

Financial support. This research has been supported by the Centre National d'Études Spatiales (TOSCA IASI).

Review statement. This paper was edited by David Topping and reviewed by Vincent Huijnen and one anonymous referee.

References

- Barret, B., Le Flochmoen, E., Sauvage, B., Pavelin, E., Matricardi, M., and Cammas, J. P.: The detection of post-monsoon tropospheric ozone variability over south Asia using IASI data, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 9533–9548, <https://doi.org/10.5194/acp-11-9533-2011>, 2011.
- Barret, B., Emili, E., and Le Flochmoen, E.: A tropopause-related climatological a priori profile for IASI-SOFRID ozone retrievals: improvements and validation, *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 5237–5257, <https://doi.org/10.5194/amt-13-5237-2020>, 2020.
- Bocquet, M., Elbern, H., Eskes, H., Hirtl, M., Žabkar, R., Carmichael, G. R., Flemming, J., Inness, A., Pagowski, M., Pérez Camaño, J. L., Saide, P. E., San Jose, R., Sofiev, M., Vira, J., Baklanov, A., Carnevale, C., Grell, G., and Seigneur, C.: Data assimilation in atmospheric chemistry models: current status and future prospects for coupled chemistry meteorology models, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 5325–5358, <https://doi.org/10.5194/acp-15-5325-2015>, 2015.
- Bowman, K. W., Rodgers, C. D., Kulawik, S. S., Worden, J., Sarkissian, E., Osterman, G., Steck, T., Ming Lou, Eldering, A., Shephard, M., Worden, H., Lampel, M., Clough, S., Brown, P., Rinsland, C., Gunson, M., and Beer, R.: Tropospheric emission spectrometer: retrieval method and error analysis, *IEEE T. Geosci. Remote. Sens.*, 44, 1297–1307, <https://doi.org/10.1109/TGRS.2006.871234>, 2006.
- Cariolle, D. and Teyssède, H.: A revised linear ozone photochemistry parameterization for use in transport and general circulation models: multi-annual simulations, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2183–2196, <https://doi.org/10.5194/acp-7-2183-2007>, 2007.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F.: Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6041–6054, <https://doi.org/10.5194/acp-9-6041-2009>, 2009.
- Cooper, O. R., Parrish, D. D., Ziemke, J., Balashov, N. V., Cupeiro, M., Galbally, I. E., Gilge, S., Horowitz, L., Jensen, N. R., Lamarque, J.-F., Naik, V., Oltmans, S. J., Schwab, J., Shindell, D. T., Thompson, A. M., Thouret, V., Wang, Y., and Zbinden, R. M.: Global distribution and trends of tropospheric ozone: An observation-based review, *Elem. Sci. Anth.*, 2, 000029, <https://doi.org/10.12952/journal.elementa.000029>, 2014.
- Coopmann, O., Guidard, V., Fourrié, N., and Plu, M.: Assimilation of IASI Ozone-Sensitive Channels in Preparation for an Enhanced Coupling Between Numerical Weather Prediction and Chemistry Transport Models, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 123, 12452–12473, <https://doi.org/10.1029/2017JD027901>, 2018.
- Coopmann, O., Guidard, V., Fourrié, N., Josse, B., and Maréchal, V.: Update of Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) channel selection with correlated observation errors for numerical weather prediction (NWP), *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 2659–2680, <https://doi.org/10.5194/amt-13-2659-2020>, 2020.
- Dee, D. P., Uppala, S. M., Simmons, A. J., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M. A., Balsamo, G., Bauer, P., Bechtold, P., Beljaars, A. C. M., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Delsol, C., Dragani, R., Fuentes, M., Geer, A. J., Haimberger, L., Healy, S. B., Hersbach, H., Hólm, E. V., 103 Isaksen, L., Kållberg, P., Köhler, M., Matricardi, M., McNally, A. P., Monge-Sanz, B. M., Morcrette, J.-J., Park, B.-K., Peubey, C., de Rosnay, P., Tavolato, C., Thépaut, J.-N., and Vitart, F.: The ERA-Interim reanalysis: configuration and performance of the data assimilation system, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 137, 553–597, <https://doi.org/10.1002/qj.828>, 2011.
- Desroziers, G., Berre, L., Chapnik, B., and Poli, P.: Diagnosis of observation, background and analysis-error statistics in observation space, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 131, 3385–3396, <https://doi.org/10.1256/qj.05.108>, 2005.
- Dragani, R. and McNally, A. P.: Operational assimilation of ozone-sensitive infrared radiances at ECMWF, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 139, 2068–2080, <https://doi.org/10.1002/qj.2106>, 2013.
- El Aabaribaoune, M., Emili, E., and Guidard, V.: Estimation of the error covariance matrix for IASI radiances and its impact on the assimilation of ozone in a chemistry transport model, *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 2841–2856, <https://doi.org/10.5194/amt-14-2841-2021>, 2021.
- Emili, E.: Input and output data used for the manuscript simulations, B2SHARE [data set], available at: <https://b2share.cerfacs.fr/records/e3493962fb0e4e6b918d846b070de9d9>, last access: 7 October 2021.
- Emili, E., Barret, B., Massart, S., Le Flochmoen, E., Piacentini, A., El Amraoui, L., Pannekoucke, O., and Cariolle, D.: Combined assimilation of IASI and MLS observations to constrain tropospheric and stratospheric ozone in a global chemical transport model, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 177–198, <https://doi.org/10.5194/acp-14-177-2014>, 2014.
- Emili, E., Barret, B., Le Flochmoen, E., and Cariolle, D.: Comparison between the assimilation of IASI Level 2 ozone retrievals and Level 1 radiances in a chemical transport model, *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 3963–3984, <https://doi.org/10.5194/amt-12-3963-2019>, 2019.
- Errera, Q., Chabrillat, S., Christophe, Y., Deboscher, J., Hubert, D., Lahoz, W., Santee, M. L., Shiotani, M., Skachko, S., von Clarmann, T., and Walker, K.: Technical note: Reanalysis of Aura MLS chemical observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 13647–13679, <https://doi.org/10.5194/acp-19-13647-2019>, 2019.
- EUMETSAT: IASI Level 2: Product Generation Specification, Tech. rep., available at: <https://www-cdn.eumetsat.int/files/2020-07/IASI%20Level%20-%20Product%20Guide.pdf> (last access: 7 October 2021), 2017.
- Flemming, J., Huijnen, V., Arteta, J., Bechtold, P., Beljaars, A., Blechschmidt, A.-M., Diamantakis, M., Engelen, R. J., Gaudel, A., Inness, A., Jones, L., Josse, B., Katragkou, E., Marecal, V., Peuch, V.-H., Richter, A., Schultz, M. G., Stein, O., and Tsikerdekis, A.: Tropospheric chemistry in the Integrated Forecasting System of ECMWF, *Geosci. Model Dev.*, 8, 975–1003, <https://doi.org/10.5194/gmd-8-975-2015>, 2015.
- Froidevaux, L., Jiang, Y. B., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Browell, E. V., Hair, J. W., Avery, M. A., McGee, T. J., Twigg, L. W., Sumnicht, G. K., Jucks, K. W., Margitan, J. J., Sen, B., Stachnik, R. A., Toon, G. C., Bernath, P. F., Boone, C. D., Walker, K. A., Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Fuller, R. A., Manney, G. L., Schwartz, M. J., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Perun, V. S., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., and Wagner, P. A.: Validation of Aura Microwave Limb Sounder stratospheric ozone measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S20, <https://doi.org/10.1029/2007JD008771>, 2008.

- Gaudel, A., Cooper, O. R., Ancellet, G., Barret, B., Boynard, A., Burrows, J. P., Clerbaux, C., Coheur, P. F., Cuesta, J., Cuevas, E., Doniki, S., Dufour, G., Ebojje, F., Foret, G., Garcia, O., Granados Muños, M. J., Hannigan, J. W., Hase, F., Huang, G., Hassler, B., Hurtmans, D., Jaffe, D., Jones, N., Kalabokas, P., Kerridge, B., Kulawik, S. S., Latter, B., Leblanc, T., Le Flochmoën, E., Lin, W., Liu, J., Liu, X., Mahieu, E., McClure-Begley, A., Neu, J. L., Osman, M., Palm, M., Petetin, H., Petropavlovskikh, I., Querel, R., Raupach, N., Rozanov, A., Schultz, M. G., Schwab, J., Siddans, R., Smale, D., Steinbacher, M., Tanimoto, H., Tarasick, D. W., Thouret, V., Thompson, A. M., Trickl, T., Weatherhead, E., Wespes, C., Worden, H. M., Vigouroux, C., Xu, X., Zeng, G., and Ziemke, J.: Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day distribution and trends of tropospheric ozone relevant to climate and global atmospheric chemistry model evaluation, *Elem. Sci. Anth.*, 6, 39, <https://doi.org/10.1525/elementa.291>, 2018.
- Gauss, M., Myhre, G., Isaksen, I. S. A., Grewe, V., Pitari, G., Wild, O., Collins, W. J., Dentener, F. J., Ellingsen, K., Gohar, L. K., Hauglustaine, D. A., Iachetti, D., Lamarque, F., Mancini, E., Mickley, L. J., Prather, M. J., Pyle, J. A., Sanderson, M. G., Shine, K. P., Stevenson, D. S., Sudo, K., Szopa, S., and Zeng, G.: Radiative forcing since preindustrial times due to ozone change in the troposphere and the lower stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 575–599, <https://doi.org/10.5194/acp-6-575-2006>, 2006.
- Geer, A. J., Lahoz, W. A., Bekki, S., Bormann, N., Errera, Q., Eskes, H. J., Fonteyn, D., Jackson, D. R., Juckes, M. N., Massart, S., Peuch, V.-H., Rharmili, S., and Segers, A.: The ASSET intercomparison of ozone analyses: method and first results, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5445–5474, <https://doi.org/10.5194/acp-6-5445-2006>, 2006.
- Han, W. and McNally, A. P.: The 4D-Var assimilation of ozone-sensitive infrared radiances measured by IASI, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 136, 2025–2037, <https://doi.org/10.1002/qj.708>, 2010.
- Hilton, F., Armante, R., August, T., Barnet, C., Bouchard, A., Camy-Peyret, C., Capelle, V., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Collard, A., Crevoisier, C., Dufour, G., Edwards, D., Fajjan, F., Fourrié, N., Gambacorta, A., Goldberg, M., Guidard, V., Hurtmans, D., Illingworth, S., Jacquinet-Husson, N., Kerzenmacher, T., Klaes, D., Lavanant, L., Masiello, G., Matricardi, M., McNally, A., Newman, S., Pavelin, E., Payan, S., Péquignot, E., Peyridieu, S., Phulpin, T., Remedios, J., Schlüssel, P., Serio, C., Strow, L., Stubenrauch, C., Taylor, J., Tobin, D., Wolf, W., and Zhou, D.: Hyperspectral Earth Observation from IASI: Five Years of Accomplishments, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 93, 347–370, <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-11-00027.1>, 2012.
- Huijnen, V., Miyazaki, K., Flemming, J., Inness, A., Sekiya, T., and Schultz, M. G.: An intercomparison of tropospheric ozone reanalysis products from CAMS, CAMS interim, TCR-1, and TCR-2, *Geosci. Model Dev.*, 13, 1513–1544, <https://doi.org/10.5194/gmd-13-1513-2020>, 2020.
- Inness, A., Ades, M., Agustí-Panareda, A., Barré, J., Benedictow, A., Blechschmidt, A.-M., Dominguez, J. J., Engelen, R., Eskes, H., Flemming, J., Huijnen, V., Jones, L., Kipling, Z., Massart, S., Parrington, M., Peuch, V.-H., Razinger, M., Remy, S., Schulz, M., and Suttie, M.: The CAMS reanalysis of atmospheric composition, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 3515–3556, <https://doi.org/10.5194/acp-19-3515-2019>, 2019.
- Josse, B., Simon, P., and Peuch, V.: Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE, *Tellus B*, 56, 339–356, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2004.00112.x>, 2004.
- Lahoz, W. A., Geer, A. J., Bekki, S., Bormann, N., Ceccherini, S., Elbern, H., Errera, Q., Eskes, H. J., Fonteyn, D., Jackson, D. R., Khattatov, B., Marchand, M., Massart, S., Peuch, V.-H., Rharmili, S., Ridolfi, M., Segers, A., Talagrand, O., Thornton, H. E., Vik, A. F., and von Clarmann, T.: The Assimilation of Envisat data (ASSET) project, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1773–1796, <https://doi.org/10.5194/acp-7-1773-2007>, 2007.
- Lamarque, J.-F., Shindell, D. T., Josse, B., Young, P. J., Cionni, I., Eyring, V., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Collins, W. J., Doherty, R., Dalsoren, S., Faluvegi, G., Folberth, G., Ghan, S. J., Horowitz, L. W., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Naik, V., Plummer, D., Righi, M., Rumbold, S. T., Schulz, M., Skeie, R. B., Stevenson, D. S., Strode, S., Sudo, K., Szopa, S., Voulgarakis, A., and Zeng, G.: The Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP): overview and description of models, simulations and climate diagnostics, *Geosci. Model Dev.*, 6, 179–206, <https://doi.org/10.5194/gmd-6-179-2013>, 2013.
- Liu, J., Rodriguez, J. M., Steenrod, S. D., Douglass, A. R., Logan, J. A., Olsen, M. A., Wargan, K., and Ziemke, J. R.: Causes of interannual variability over the southern hemispheric tropospheric ozone maximum, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 3279–3299, <https://doi.org/10.5194/acp-17-3279-2017>, 2017.
- Livesey, N. J., William, G. R., Wagner, P. A., Froidevaux, L., Lambert, A., Manney, G. L., Valle, L. F. M., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., Schwartz, M. J., Wang, S., Fuller, R. A., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Martinez, E., and Lay, R. R.: Earth Observing System (EOS) Version 4.2x Level 2 and 3 data quality and description document, available at: https://mls.jpl.nasa.gov/data/v4-2_data_quality_document.pdf (last access: 7 October 2021), 2020.
- Massart, S., Clerbaux, C., Cariolle, D., Piacentini, A., Turquety, S., and Hadji-Lazaro, J.: First steps towards the assimilation of IASI ozone data into the MOCAGE-PALM system, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5073–5091, <https://doi.org/10.5194/acp-9-5073-2009>, 2009.
- Matricardi, M.: Technical Note: An assessment of the accuracy of the RTTOV fast radiative transfer model using IASI data, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 6899–6913, <https://doi.org/10.5194/acp-9-6899-2009>, 2009.
- Miyazaki, K., Eskes, H. J., and Sudo, K.: A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005–2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES, and MOPITT satellite data, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8315–8348, <https://doi.org/10.5194/acp-15-8315-2015>, 2015.
- Oman, L. D., Ziemke, J. R., Douglass, A. R., Waugh, D. W., Lang, C., Rodriguez, J. M., and Nielsen, J. E.: The response of tropical tropospheric ozone to ENSO, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L13706, <https://doi.org/10.1029/2011GL047865>, 2011.
- Peiro, H., Emili, E., Cariolle, D., Barret, B., and Le Flochmoën, E.: Multi-year assimilation of IASI and MLS ozone retrievals: variability of tropospheric ozone over the tropics in response to ENSO, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 6939–6958, <https://doi.org/10.5194/acp-18-6939-2018>, 2018.

- Ruston, B. and McNally, A.: Explicit handling of surface emission for the exploitation of high spectral resolution infrared satellite sounding radiances from IASI over land and sea-ice, Tech. Rep. February, NWP SAF, available at: https://nwp-saf.eumetsat.int/vs_reports/nwpsaf-ec-vs-020.pdf (last access: 7 October 2021), 2012.
- Saunders, R., Hocking, J., Rundle, D., Rayer, P., Matricardi, M., Geer, A., Lupu, C., Brunel, P., and Vidot, J.: Rttov-11 Science and Validation Report, Tech. rep., NWP SAF, available at: https://www.nwpsaf.eu/site/download/documentation/rtm/docs_rttov11/rttov11_svr.pdf (last access: 7 October 2021), 2013.
- Stevenson, D. S., Young, P. J., Naik, V., Lamarque, J.-F., Shindell, D. T., Voulgarakis, A., Skeie, R. B., Dalsoren, S. B., Myhre, G., Bernsten, T. K., Folberth, G. A., Rumbold, S. T., Collins, W. J., MacKenzie, I. A., Doherty, R. M., Zeng, G., van Noije, T. P. C., Strunk, A., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Plummer, D. A., Strode, S. A., Horowitz, L., Lee, Y. H., Szopa, S., Sudo, K., Nagashima, T., Josse, B., Cionni, I., Righi, M., Eyring, V., Conley, A., Bowman, K. W., Wild, O., and Archibald, A.: Tropospheric ozone changes, radiative forcing and attribution to emissions in the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 3063–3085, <https://doi.org/10.5194/acp-13-3063-2013>, 2013.
- van Peet, J. C. A., van der A, R. J., Kelder, H. M., and Levelt, P. F.: Simultaneous assimilation of ozone profiles from multiple UV-VIS satellite instruments, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 1685–1704, <https://doi.org/10.5194/acp-18-1685-2018>, 2018.
- Young, P. J., Archibald, A. T., Bowman, K. W., Lamarque, J.-F., Naik, V., Stevenson, D. S., Tilmes, S., Voulgarakis, A., Wild, O., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Cionni, I., Collins, W. J., Dalsøren, S. B., Doherty, R. M., Eyring, V., Faluvegi, G., Horowitz, L. W., Josse, B., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Plummer, D. A., Righi, M., Rumbold, S. T., Skeie, R. B., Shindell, D. T., Strode, S. A., Sudo, K., Szopa, S., and Zeng, G.: Pre-industrial to end 21st century projections of tropospheric ozone from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2063–2090, <https://doi.org/10.5194/acp-13-2063-2013>, 2013.
- Young, P. J., Naik, V., Fiore, A. M., Gaudel, A., Guo, J., Lin, M. Y., Neu, J., Parrish, D. D., Rieder, H. E., Schnell, J. L., Tilmes, S., Wild, O., Zhang, L., Ziemke, J., Brandt, J., Delcloo, A., Doherty, R. M., Geels, C., Hegglin, M. I., Hu, L., Im, U., Kumar, R., Luhar, A., Murray, L., Plummer, D., Rodriguez, J., Saiz-Lopez, A., Schultz, M. G., Woodhouse, M. T., and Zeng, G.: Tropospheric Ozone Assessment Report: Assessment of global-scale model performance for global and regional ozone distributions, variability, and trends, *Elem. Sci. Anth.*, 6, 10, <https://doi.org/10.1525/elementa.265>, 2018.
- Ziemke, J. R., Chandra, S., Duncan, B. N., Froidevaux, L., Bhartia, P. K., Levelt, P. F., and Waters, J. W.: Tropospheric ozone determined from Aura OMI and MLS: Evaluation of measurements and comparison with the Global Modeling Initiative's Chemical Transport Model, *J. Geophys. Res.*, 111, D19303, <https://doi.org/10.1029/2006JD007089>, 2006.
- Ziemke, J. R., Chandra, S., Labow, G. J., Bhartia, P. K., Froidevaux, L., and Witte, J. C.: A global climatology of tropospheric and stratospheric ozone derived from Aura OMI and MLS measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 9237–9251, <https://doi.org/10.5194/acp-11-9237-2011>, 2011.
- Ziemke, J. R., Douglass, A. R., Oman, L. D., Strahan, S. E., and Duncan, B. N.: Tropospheric ozone variability in the tropics from ENSO to MJO and shorter timescales, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8037–8049, <https://doi.org/10.5194/acp-15-8037-2015>, 2015.
- Ziemke, J. R., Oman, L. D., Strode, S. A., Douglass, A. R., Olsen, M. A., McPeters, R. D., Bhartia, P. K., Froidevaux, L., Labow, G. J., Witte, J. C., Thompson, A. M., Haffner, D. P., Kramarova, N. A., Frith, S. M., Huang, L.-K., Jaross, G. R., Seftor, C. J., Deland, M. T., and Taylor, S. L.: Trends in global tropospheric ozone inferred from a composite record of TOMS/OMI/MLS/OMPS satellite measurements and the MERRA-2 GMI simulation, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 3257–3269, <https://doi.org/10.5194/acp-19-3257-2019>, 2019.

5.3 Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons amélioré l'utilisation des luminances IASI dans notre système d'assimilation pour l'ozone. Nous avons estimé les erreurs d'observation des luminances IASI. Le résultat de l'estimation a montré un écart type plus grand par rapport à ce qui a été utilisé dans la littérature. Les corrélations ont été trouvées élevées entre la majorité des canaux du spectre utilisé, en particulier ceux sensible à la température de surface. Ces corrélations ont été négligés jusqu'à présent dans la plupart des travaux des réstitutions d'O₃ et d'assimilation IASI pour la chimie. La matrice estimée a donc été introduite dans notre système. La validation des analyses à des données indépendantes a montré une amélioration significative des résultats. Le coût de calcul a également été réduit. Ensuite, une intégration du modèle sur une période d'une année a été effectuée dans le but d'évaluer la capacité de l'assimilation des mesures infrarouges à reproduire la variabilité temporelle de l'ozone sur une année. L'apport des luminances IASI a été trouvé remarquable. Les résultats ont montré que IASI permet de reproduire les aspects saisonniers de la variabilité de l'O₃ troposphérique et de fournir une information complémentaire quand des schémas chimiques réduits sont adoptés.

6 Assimilation conjointe de l’ozone et des poussières désertiques

6.1 Contexte et configuration de l’étude

Jusqu’ici, nous avons abordé l’assimilation des luminances IASI pour corriger les profils d’ozone dans le modèle de chimie transport MOCAGE. Nous avons montré que l’utilisation de l’information infrarouge des luminances IASI améliore les résultats des analyses de l’ozone stratosphérique, au voisinage de l’UTLS et dans la troposphère libre. Cet apport de l’infrarouge thermique pourrait être une information complémentaire pour la description de l’ozone dans les systèmes qui utilisent déjà d’autres produits satellitaires. En effet, des produits de l’ozone depuis le micro-onde et l’ultra-violet ont été assimilés pour corriger l’ozone dans les modèles de chimie transport depuis plusieurs années. Ces données reposent sur le soleil comme source de rayonnement, ce qui limite l’observation au jour. Au contraire, les données infrarouge fournissent une information continue jour et nuit. En outre, l’apport de l’infrarouge pourrait se manifester dans la troposphère et la région de l’UTLS vu que le rayonnement ultra-violet est moins sensible à ces régions en comparaison avec l’infrarouge. Des produits dérivés des mesures IASI ont été utilisés pour corriger les modèles de chimie transport comme dans Emili et al. [2014] et Peiro et al. [2018]. A notre connaissance, aucune tentative d’assimiler les luminances directement dans un modèle de chimie transport pour l’ozone n’a été menée à l’exception de notre première évaluation pour une durée d’un mois et puis d’une année (Emili et al. [2019], El Aabaribaoune et al. [2021], et Emili and El Aabaribaoune [2021]).

D’autre part, comme nous l’avons montré dans le chapitre 3 (Observations), le spectre utilisé est sensible aux poussières désertiques. Cette sensibilité a été négligée dans le travail précédent étant donné qu’un filtre a été utilisé pour rejeter les pixels sensibles aux poussières désertiques. Ce filtre permet d’enlever les pixels impactés par les poussières désertiques, mais ce filtre n’est pas parfait et quelques pixels pourraient y échapper et, par conséquent, une contamination résiduelle des poussières désertiques peut persister. Cette contamination pourrait par la suite impacter les résultats de l’assimilation. Ceci est déjà le cas dans le processus de la restitution des paramètres atmosphériques dans l’infrarouge. En effet, Pierangelo et al. [2004] ont montré que les poussières désertiques peuvent induire des biais de température de brillance dans l’infrarouge d’environ 10 K . Un comportement similaire peut être attendu dans notre cas puisque la partie du spectre de l’ozone utilisé dans notre étude est sensible aux poussières désertiques. Lequel spectre montre une sensibilité qui peut atteindre 10 K comme le montrent Sokolik [2002] et Vandenbussche et al. [2013]. Des études récentes ont été menées pour investiguer l’impact des poussières désertiques sur l’assimilation des luminances infrarouges dans le contexte de la prévision numérique de temps (e.g. Marquis et al. [2021] et Grogan et al. [2022]). Ces études ont montré que l’assimilation des observations des sondeurs infrarouges hyperspectraux impactées par les poussières désertiques s’avère significative. Pour autant que nous sachons, aucune étude n’a été encore menée pour assimiler les luminances infrarouges dans un modèle de chimie transport que ce soit pour corriger les poussières désertiques toutes seules ou d’une façon conjointe avec d’autres espèces chimiques no-

tamment l’ozone.

Dans ce travail nous allons évaluer l’impact de la prise en compte des poussières désertiques dans notre système d’assimilation de l’ozone, puis nous allons élargir le cadre à l’assimilation conjointe de l’ozone et des poussières désertiques.

Nous évaluerons dans un premier temps l’impact de l’introduction de l’effet des poussières désertiques dans l’opérateur d’observation sur les analyses d’ozone. En d’autres termes, le calcul de l’équivalent de l’état du modèle dans l’espace des observations est effectué en prenant en compte les pixels impactés par les poussières désertiques. Ces pixels ont été rejetés dans le chapitre précédent (chapitre 5, article 1 et 2). Nous introduirons, ensuite, les poussières désertiques dans la variable de contrôle et nous évaluerons l’impact sur les analyses de l’ozone et des aérosols.

Dans la première partie de ce chapitre, nous discuterons l’introduction de l’effet des aérosols dans l’opérateur d’observation. Tout d’abord, la même configuration que celle utilisée dans El Aabaribaoune et al. [2021] en ajoutant les pixels impacté par les poussières désertiques nous sert de référence ; nous l’avons appelée ici **AssimRef**. Cette configuration, enrichie des effets des aérosols dans **H**, constitue l’expérience **AssimO3**. Dans cette première partie, nous décrirons la liaison entre les poussières désertiques de MOCAGE et celles de RTTOV. Nous aborderons ensuite l’impact sur les analyses de l’ozone.

La deuxième partie de ce chapitre discutera la prise en compte des poussières désertiques dans la variable de contrôle, en plus de l’ozone. Les analyses de l’ozone et des aérosols seront discutées. Cette expérience est appelée **AssimDustO3** dans la suite de ce manuscrit.

Nous présentons dans le tableau 4 les expériences qui seront utilisées dans ce chapitre.

<i>Nom de l’expérience</i>	Assimilation	Variables de contrôle	Aérosols dans H
Contrôle	Non	-	-
AssimRef	Oui	O3	Non
AssimO3	Oui	O3	Oui
AssimDustO3	Oui	O3 + DESDUS	Oui

TABLE 4 – Expériences abordées dans ce chapitre.

Dans ce travail, nous avons opté pour la même logique du chapitre 5 en termes de durée d’étude. Nous avons commencé une première évaluation pour un mois dans le but de prolonger cette période dans de prochains travaux. Les résultats que nous allons, donc, discuter dans ce manuscrit sont obtenus pour le mois de mars 2010. La période a été choisie de sorte à contenir des épisodes de poussières désertiques. La figure 20 montre la moyenne des épaisseurs optiques des aérosols (AOD) sur l’ensemble du globe sur le mois d’étude, issue du modèle MOCAGE **Contrôle** (Fig. 20(a)). L’AOD du modèle a été interpolé aux points d’observations MODIS puis moyenné sur le mois de mars. La moyenne de l’AOD mesuré par MODIS est représentée sur la figure 20(b)). La quantité représentée sur les deux cartes est l’AOD total, c’est à dire incluant l’effet de tous les types d’aérosols. Les zones d’AOD les plus forts (zone du Sahara et Est de la Chine)

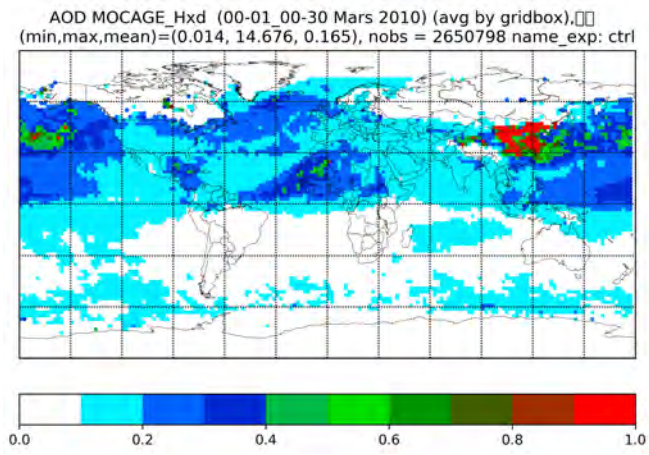
correspondent à des zones de forte production de poussières désertiques et de transport local.

Pour confirmer ou pas la présence des poussières désertiques dans les régions de fort AOD montré sur la figure 20(b) et 20(a), nous examinons d'autres produits satellitaires. En général les poussières sont des aérosols de grande taille. Nous montrons sur la figure 21 le pourcentage des aérosols de petite taille sur le mois d'étude issu des observations MODIS sur le satellite Terra. Nous constatons que dans la région sub-saharienne et la Chine centrale le pourcentage des aérosols de petite taille est faible. Ces régions correspondent à celle où un AOD moyen à fort était indiqué par MODIS ou/et le modèle MOCAGE. Nous pouvons supposer donc qu'il s'agit des aérosols de grande taille (tel que les poussières minérales). Pour investiguer s'il s'agit des poussières désertiques dans ces régions, nous incluons l'AOD des poussières minérales restitué depuis IASI (source : <https://iasi.aeris-data.fr/DUST-AOD/>). Nous montrons un exemple d'AOD à 10 micron des poussières restitué pour le 22 mars sur la figure 22(a) et pour le 24 mars sur la figure 22(b). Nous constatons sur une large zone autour du Sahara un fort AOD associé à un épisode de transport des poussières et un transport à plus longue distance sur l'océan Atlantique. Des plus petites zones à fort AOD sont localisés aussi sur des régions de l'Asie centrale, même si la faible couverture spatiale des restitutions pendant les jours en question (exemple où l'on peut voir un maximum de dust pendant le mois d'étude) ne permet pas de statuer sur un épisode de transport très significatif. L'ensemble de ces éléments semble donc indiquer que au moins deux épisodes de soulèvement et transport de poussières se sont produits pendant le mois de Mars 2010 (en Afrique de l'ouest et en Asie centrale). Ces épisodes sont reproduits par la simulation libre de MOCAGE, avec une intensité qui n'est pas forcément en accord avec les observations de MODIS. Plus en particulier, il semble que l'épisode de soulèvement de poussières en Afrique de l'ouest est sous-estimé alors que l'épisode en Asie Centrale il est surestimé par le modèle. Il s'agit donc d'un cas d'étude très intéressant pour évaluer l'apport de l'assimilation.

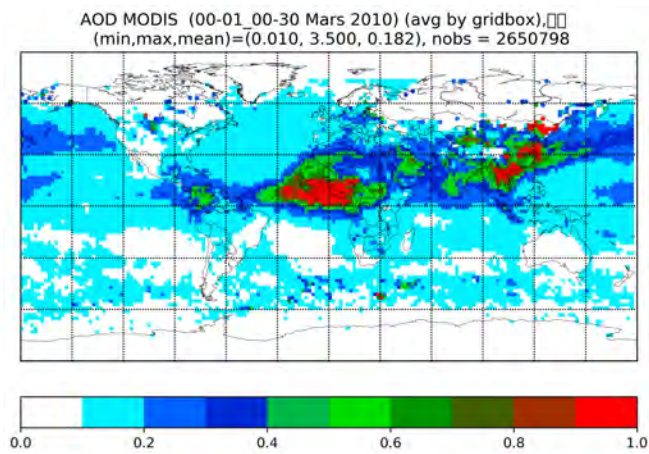
Nous présentons dans le tableau 5 un résumé de la configuration des deux parties qui seront abordées dans ce chapitre. Ces paramètres sont communs entre les deux parties 6.2 et 6.3 Les éléments qui diffèrent entre les deux parties seront abordés dans chaque partie.

Paramètre	Configuration
Période d'étude	Mars 2010
Instruments assimilés	IASI (980-1100 cm ⁻¹)
Forçage météorologique	Prévisions de IFS
Vecteur de contrôle	O ₃ et SST (Dans la première partie du chapitre 6.1), et poussières désertiques (dans la deuxième partie du chapitre 6.2)
Erreur d'observation	Estimée par le diagnostic de Desroziers
Ecart type de l'erreur d'ébauche de la SST	4 ° C
Ecart type de l'erreur d'ébauche de O ₃	Pourcentage du profil d'ébauche (en utilisant une valeur de 2 % au-dessus de 100 hPa et 10 % en dessous)
Corrélation zonale de l'erreur d'ébauche de O ₃	Exponentielle avec une échelle de longueur fixée à 200 km et réduite vers le pôle pour tenir compte de la résolution zonale croissante de la grille régulière latitude-longitude.
Corrélation méridionale de l'erreur d'ébauche de O ₃	Exponentielle avec une échelle de longueur fixée à 200 Km
Corrélation verticale de l'erreur d'ébauche de O ₃	Exponentielle avec une échelle de longueur égale à un point de la grille (niveau vertical).

TABLE 5 – Résumé de la configuration de l'étude menée dans ce chapitre.



(a) AOD MOCAGE



(b) AOD MODIS

FIGURE 20 – AOD à 550 nm issu de MOCAGE et de MODIS sur la période d'étude.

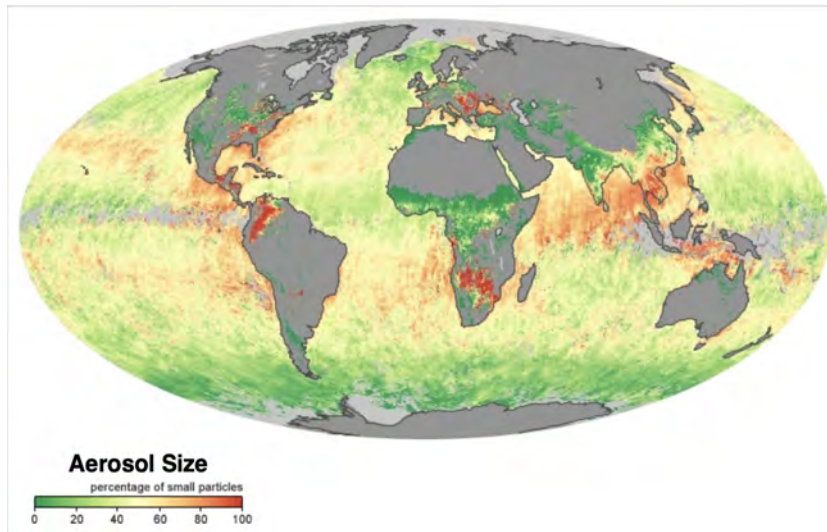


FIGURE 21 – Représentation du pourcentage des aérosols de petites taille sur le mois de Mars 2010 (source : https://earthobservatory.nasa.gov/global-maps/MODAL2_MAEERRA)

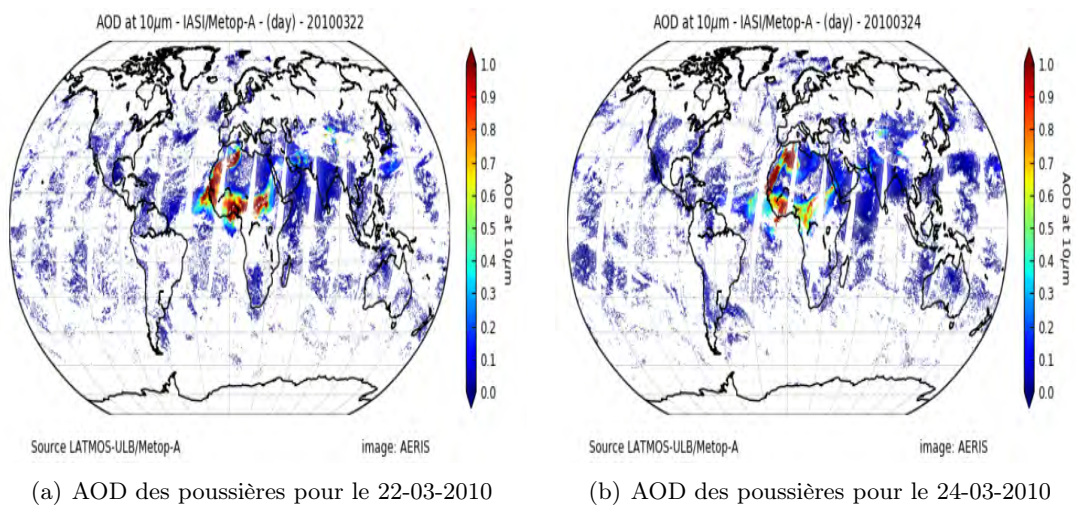


FIGURE 22 – Épaisseur optique (AOD) à 10 micron des poussières désertiques restituée depuis IASI pendant le jour de 22 Mars (a) et de 24 Mars.

6.2 Prise en compte des poussières désertiques dans l'opérateur d'observation

Nous discuterons dans cette partie l'impact de l'introduction de l'effet des aérosols dans l'opérateur d'observation sur les analyses d'ozone. Nous allons présenter dans une première sous-partie quelques éléments préliminaires de l'étude, notamment la représentation des aérosols qui est différente dans MOCAGE et dans le modèle de transfert radiatif RTTOV, ainsi que la sélection des observations IASI assimilées dans ce chapitre. L'impact sur les analyses d'ozone de la prise en compte des poussières désertiques dans l'opérateur d'observation sera ensuite abordé dans la deuxième sous-partie.

6.2.1 Éléments préliminaires de l'étude

Aérosols dans MOCAGE et RTTOV

Comme nous l'avons introduit dans le chapitre 2 (Modélisation), les poussières désertiques dans MOCAGE sont réparties selon la taille des particules (tableau 1 Chapitre 2), en utilisant six boîtes (bins en anglais). La division qui a été adoptée dans MOCAGE est différente de celle utilisée par RTTOV. En effet, RTTOV utilise des aérosols appelés CAMS est divisés en trois boîtes avec des seuils différents de ceux de MOCAGE (Tableau 27, *Guide RTTOV 2013*). Nous présentons sur la figure 23 une illustration des deux représentations MOCAGE et RTTOV et de la liaison mise en place entre les différentes boîtes. Ces boîtes sont liées comme suit :

$$\begin{aligned} Bin1rttov &= \frac{a}{0.1 - 0.01} Bin2mocage + \frac{b}{1 - 0.1} Bin3mocage & (6.2.1) \\ &= \frac{7}{9} Bin2mocage + \frac{4.5}{9} Bin3mocage & \text{(cf. figure 23(a))} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} Bin2rttov &= \frac{a}{1 - 0.1} Bin3mocage & (6.2.2) \\ &= \frac{3.5}{9} Bin3mocage & \text{(cf. figure 23(b))} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} Bin3rttov &= \frac{a}{1 - 0.1} Bin3mocage + \frac{b}{2.5 - 1} Bin4mocage & (6.2.3) \\ &+ \frac{c}{10 - 2.5} Bin5mocage + \frac{d}{50 - 10} Bin6mocage \\ &= \frac{1}{9} Bin3mocage + 1. Bin4mocage \\ &+ 1. Bin5mocage + \frac{1}{4} Bin6mocage & \text{(cf. figure 23(c))} \end{aligned}$$

Les coefficients a , b , c et d sont indiqués sur la figure 23.

Sélection des observations

Pour quantifier l'impact de la prise en compte des poussières désertiques dans l'opérateur d'observation, nous avons sélectionné des sous-ensembles de pixels IASI. Tout d'abord nous avons identifiés les pixels colocalisés avec des régions où le modèle contient des poussières désertiques. Pour cela, nous avons calculé l'AOD des poussières désertiques (noté AOD-dust) du modèle aux points des observations (interpolation temporelle et spatiale) et nous avons pris la valeur de l'AOD-dust comme critère pour répartir les observations en trois catégories :

- Régions à faible quantité d'aérosols désertiques : $0.1 \leq \text{AOD-dust} < 0.4$
- Régions à quantité moyenne d'aérosols désertiques : $0.4 \leq \text{AOD-dust} < 1$
- Régions à forte quantité d'aérosols désertiques : $\text{AOD-dust} \geq 1$

Pour sélectionner les pixels dont l'observation est entachée des poussières désertiques, nous avons adopté le même critère employé dans le chapitre 5 que nous appelons ici 'IASI-dust'. C'est un indice de présence des poussières désertiques qui utilise les canaux 829 cm^{-1} , 972.5 cm^{-1} , 1202.5 cm^{-1} et 1096 cm^{-1} , et qui est calculé comme suit (BT signifie température de brillance) :

$$\text{indice_dust} = (BT_{829\text{cm}^{-1}} - BT_{972.5\text{cm}^{-1}}) + (BT_{1202.5\text{cm}^{-1}} - BT_{1096.\text{cm}^{-1}}) \quad (6.2.4)$$

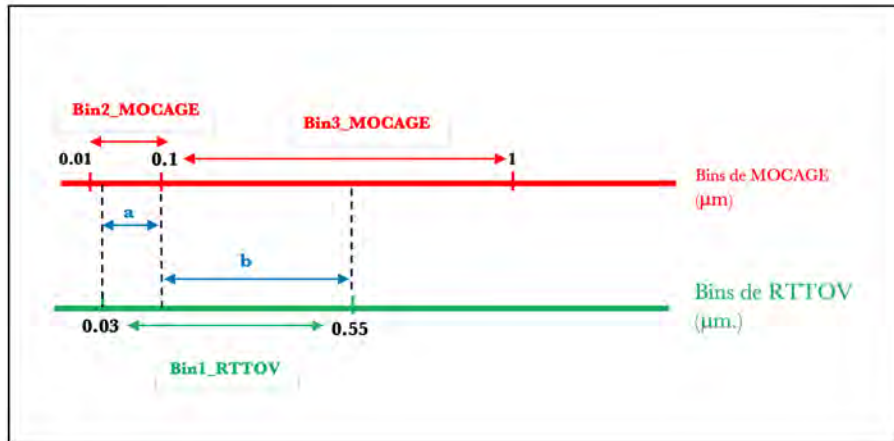
Cet indice a été utilisé dans des travaux de restitution de l'ozone à partir des observations IASI (Brice Barret, communication personnelle). Dans nos travaux précédents (Emili et al. [2019], El Aabaribaoune et al. [2021], et Emili and El Aabaribaoune [2021]), nous avons utilisé un seuil de contamination des pixels par les poussières désertiques à 0.5 pour rejeter les observations (les pixels qui ont une valeur supérieure à 0.5 sont supposés entachés des poussières désertiques). Dans ce chapitre, cet indice n'est pas utilisé pour rejeter des observations, mais pour identifier les pixels avec un présence probable des poussières désertiques; nous avons fixé la valeur de cet indice à 1. Nous avons donc combiné les deux filtres IASI-dust et AOD-dust pour ne prendre que le cas où le modèle et IASI indiquent une présence significative de poussières désertiques. En effet, trois cas de figure se présentent : IASI observe des poussières mais le modèle n'en prévoit pas (fort IASI-dust et faible AOD-dust), les deux ne montrent pas de poussières (faible IASI-dust et faible AOD-dust) et les deux montrent des poussières. Ce dernier est le cas que nous avons choisi pour évaluer les résultats.

Nous présentons sur la figure 24 la localisation des observations avec un indice IASI-dust > 1 et en fonction des différentes valeurs de l'AOD-dust du modèle. Des régions de faible et moyen AOD-dust sont majoritaires : l'Asie, le Sahara, l'Europe, l'Amérique du Nord et le Pacifique Nord. Cependant les pixels à fort AOD-dust se localisent sur l'Asie, le sud du Sahel et le Pacifique Nord. Ceci est cohérent avec l'AOD total représenté dans la figure 20.

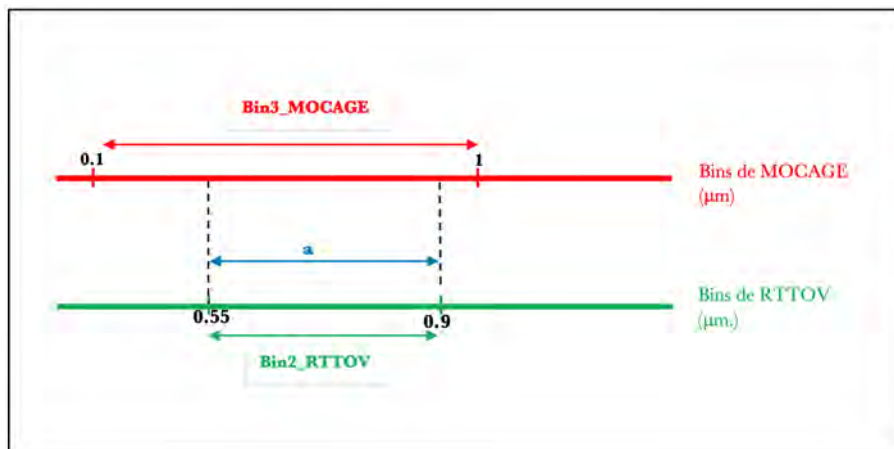
Expériences menées

Dans cette partie, nous allons décrire les expériences d'assimilation et les simulations menées. Tout d'abord, nous avons deux séries de simulations avec RTTOV à partir des champs de MOCAGE de l'expérience **Contrôle** sur le mois d'étude, aux points d'observations IASI : il s'agit de calculs du transfert radiatif direct RTTOV **sans** et **avec**

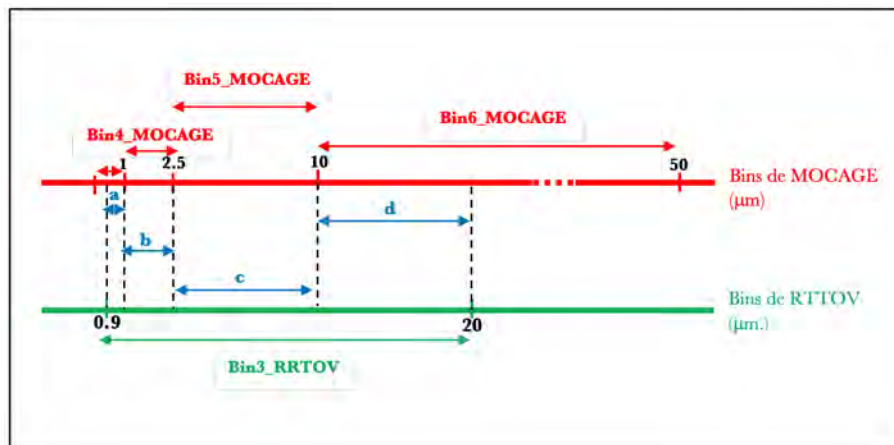
prise en compte des aérosols désertiques. Puis nous avons les expériences **AssimRef** et **AssimO3**, présentées dans le tableau 4, qui ont été utilisées pour quantifier l'impact sur les résultats de l'analyse.



(a) Première boîte de RTTOV



(b) Deuxième boîte de RTTOV



(c) Troisième boîte de RTTOV

FIGURE 23 – Illustration de la relation entre les boîtes de RTTOV et celles de MOCAGE.

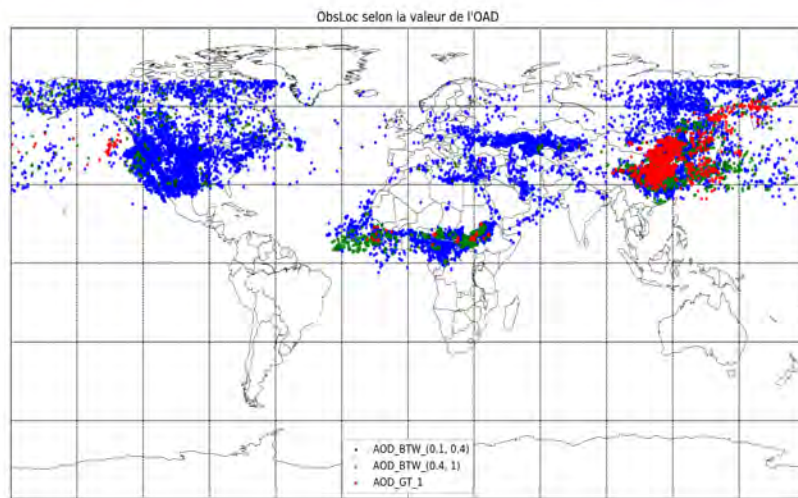


FIGURE 24 – Localisation des observations IASI en fonction des valeurs de l’AOD-dust du modèle interpolé au point d’observation : en bleu pour les AOD-dust entre 0.1 et 0.4, en vert pour les AOD-dust 0.4 et 1, et en rouge pour les AOD-dust supérieurs à 1. Les pixels pour lesquels les AOD-dust du modèle sont inférieurs à 0.1 ne sont pas représentés.

6.2.2 Impact sur les luminances et sur les analyses d’ozone

Dans les paragraphes précédents, nous avons introduit la configuration de l’étude (les expériences effectuées et la période d’étude) et les observations sélectionnées pour quantifier l’impact sur les analyses. Dans cette partie nous discuterons cet impact sur les spectres IASI simulés (hors de l’assimilation) dans un premier temps et puis sur les analyses de l’ozone.

Impact sur les luminances simulées

Pour quantifier l’impact sur les spectres simulés, nous avons effectué deux simulations du modèle direct RTTOV sans et avec inclusion des poussières désertiques dans l’opérateur d’observation. Nous notons l’état du modèle projeté dans l’espace des luminances en utilisant RTTOV direct dans les deux simulations $H(x_{dry})$. Nous montrons sur la figure 25 l’écart quadratique moyen (RMSE) de $H(x_{dry})$ avec les vraies observations IASI dans le cas où les aérosols sont inclus dans RTTOV (couleur rouge) et dans le cas où le modèle RTTOV direct est utilisé sans aérosols (couleur verte). Pour les trois catégories de l’AOD-dust, l’erreur diminue quand les aérosols sont inclus dans l’opérateur d’observation. Cette diminution est beaucoup plus remarquable pour les AOD-dust moyens (Fig. 25(b)) pour tous les canaux utilisés, pour atteindre $1\text{mW}/\text{m}^2\text{sr}^{-1}$ pour les canaux sensibles à la température de surface ($980 - 1010 \text{ cm}^{-1}$ et $1070 - 1100 \text{ cm}^{-1}$). Ce comportement est reproduit dans le cas des AOD-dust forts (Fig. 25(c)), avec toutefois des réductions d’erreur moins marquées pour la bande $980 - 1010 \text{ cm}^{-1}$. Cette différence peut être due au nombre d’observations de l’AOD-dust moyen qui représente presque le double de celui de l’AOD-dust fort. Pour les AOD-dust faibles (Fig. 25(a)) la réduction de l’erreur est plus petite. Ce comportement est attendu puisque les concentrations en poussières désertiques fournies à RTTOV sont faibles dans ce cas, entraînant un impact plus faible sur les simulations des observations.

L’introduction des aérosols dans le modèle de transfert radiatif diminue, donc, l’erreur dans le calcul du spectre IASI simulé. Cet impact est très marqué pour les canaux dans la fenêtre atmosphérique, mais il est également notable pour les canaux de la bande d’ozone. Ceci étant un résultat positif, l’un peut se demander quelles seraient les conséquences sur les analyses de l’ozone. Pour répondre à cette question, nous allons discuter le profil vertical et la colonne totale de l’ozone.

Impact sur les analyses d’ozone

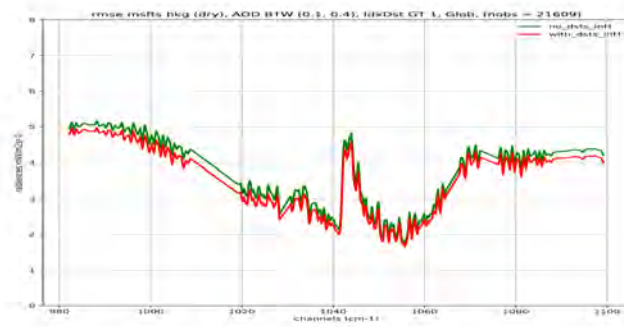
Pour quantifier l’impact de l’introduction des aérosols dans l’opérateur d’observation sur les analyses, nous considérons les deux expériences **AssimRef** et **AssimO3** (assimilation sans et avec les aérosols dans l’opérateur d’observation respectivement). Nous discuterons l’impact sur le profil vertical d’ozone analysé aux points des observations et sur la colonne totale d’ozone sur le globe.

La figure 26 représente l’impact sur le profil vertical d’ozone analysé. Nous avons extrait le profil vertical d’ozone dans chacune des deux expériences discutées ici, aux

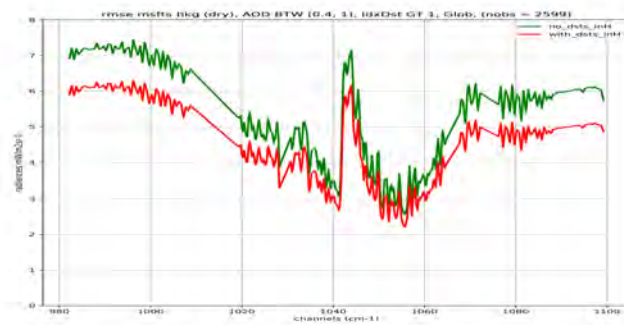
points des observations IASI assimilées. Nous avons calculé la différence relative moyenne $(\text{AssimRef} - \text{AssimO3}) / \text{AssimRef}$. Ces différences relatives sont représentées pour chacune des trois catégories d'AOD-dust sur la figure 26. A première vue, nous constatons que l'impact est semblable pour les différentes catégories d'AOD-dust et l'impact augmente quand l'AOD-dust augmente. La valeur maximale de ces différences s'approche de 2.5 % dans la stratosphère pour les AOD-dust forts et de 1 % dans la troposphère libre pour les AOD-dust moyens et forts. Ces différences positives indiquent que la quantité d'ozone à ces niveaux est réduite dans **AssimO3** par rapport à **AssimRef**. Dans la région de l'UTLS (entre les niveaux modèles 30 et 40), les différences sont négatives et atteignent -1 % pour les trois catégories d'AOD-dust, ce qui signifie que la concentration en ozone est plus forte dans les analyse **AssimO3**.

Les poussières désertiques se lèvent dans la basse troposphère et peuvent rester en grande quantité dans la troposphère. Cependant, l'impact de leur prise en compte dans RTTOV sur les analyses d'ozone est aussi notable sur la stratosphère. Ceci pourrait s'expliquer par l'existence des canaux à multiples sensibilités (dans la troposphère et dans la stratosphère). La présence de poussières désertiques rend opaques les sensibilités sous la couche d'aérosols dans la troposphère et les sensibilités sont décalées vert le haut. Ce comportement a été remarqué lors de la prise en compte des nuages dans le cadre de la prévision numérique de temps sur les sensibilités de température en basse troposphère. En quelques mots, l'impact sur le profil vertical reste modeste mais bien visible. Nous proposons de discuter la colonne totale de l'ozone sur l'ensemble du globe pour évaluer en détail l'impact sur les analyses d'ozone.

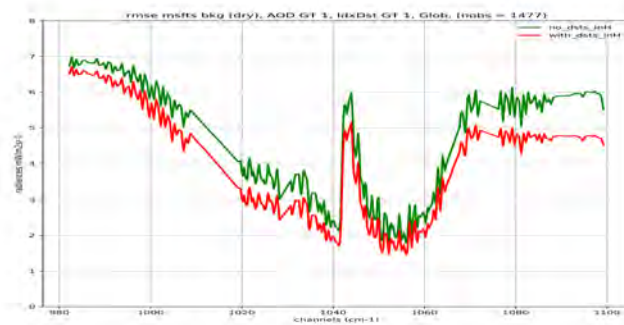
Nous avons moyenné les colonnes totales de l'analyse pour les deux expériences **AssimRef** et **AssimO3** sur le mois d'étude, afin d'évaluer l'impact de l'introduction des poussières désertiques dans l'opérateur d'observation sur la colonne totale d'ozone. Ces différences sont représentées sur la figure 27. Contrairement aux profils verticaux de la figure 26 qui avaient été interpolés aux points des observations, la colonne totale d'ozone est une sortie du modèle sur sa grille, donc sans interpolation horizontale. La différence absolue entre les expériences est représentée sur la figure 27(a), la différence relative est représentée sur la figure 27(b). Nous remarquons que l'impact est localisé sur l'hémisphère nord. Ceci est attendu vue la distribution géographique des poussières désertiques décrites dans notre version du modèle MOCAGE qui se trouve sur l'hémisphère nord, les zones d'émission présentes dans l'hémisphère sud n'étant pas décrites dans cette version. Les colonnes totales d'ozone sont plus faibles en prenant en compte les aérosols désertiques dans RTTOV. Néanmoins, ces différences sont faibles et ne dépassent pas -2 unités Dobson, soit une différence relative de -0.6 %.



(a) $0.1 \leq \text{AOD-dust} < 0.4$



(b) $0.5 \leq \text{AOD-dust} < 0.1$



(c) $1 \leq \text{AOD-dust}$

FIGURE 25 – Écart quadratique moyen entre les observations IASI et les simulations avec (rp. sans) prise en compte l'effet des aérosols désertiques en courbes rouges (rp. vertes), selon les différentes valeurs de l'AOD-dust du modèle aux points des observations.

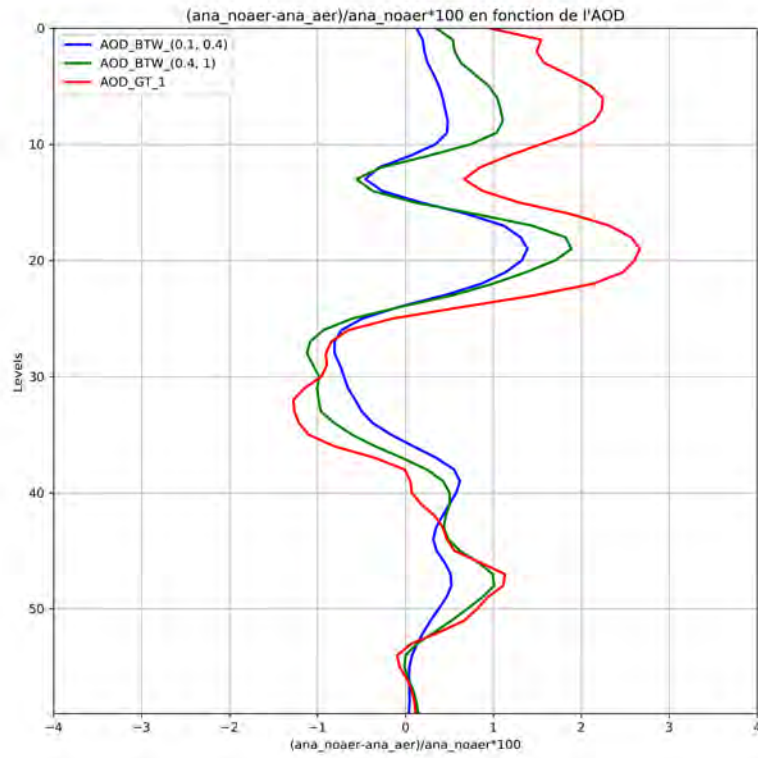
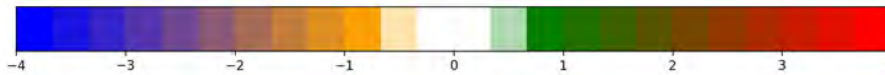
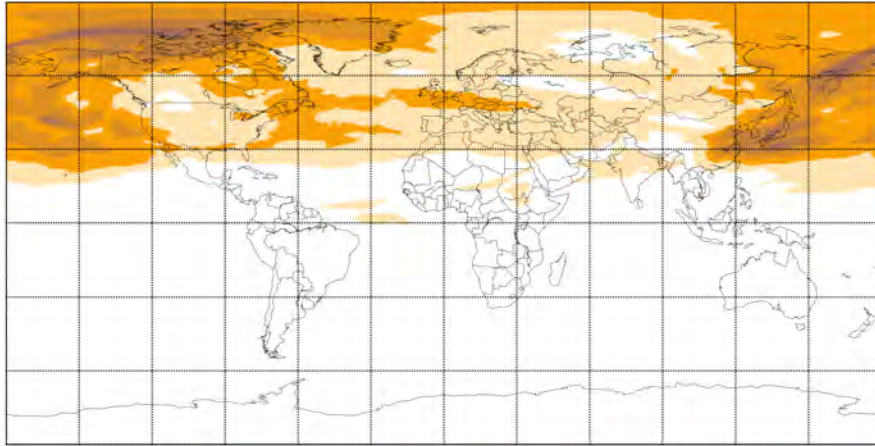


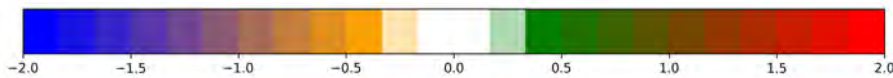
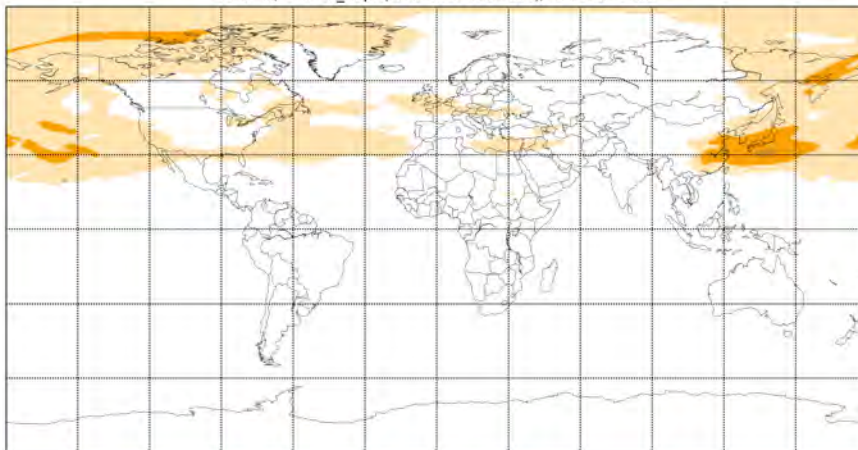
FIGURE 26 – Différences relatives moyennes de profils analysés d’ozone (**AssimRef** – **AssimO3**)/**AssimRef**, exprimées en pourcentage; en rouge pour les AOD-dust entre 0.1 et 0.4, en bleu pour les AOD-dust 0.4 et 1, et en vert pour les AOD-dust supérieurs à 1.

O_x_tc, diff_avg_ana_AssimRef_AssimO3, for 1_TO_31_03_2010, (min,max)= (-2.043e+0,1.950e-1,-3.083e-1)
unit: DU, name_exp: AssimO3-AssimRef



(a) Différence en unité Dobson

O_x_tc, diff_avg_PRCNT_ana_AssimRef_AssimO3, for 1_TO_31_03_2010, (min,max)= (-5.731e-1,7.443e-2,-7.943e-2)
unit: %, name_exp: (AssimO3-AssimRef)/AssimRef*100



(b) Différence relative en pourcentage

FIGURE 27 – Différences de colonne totale analysée d’ozone **AssimRef**–**AssimO3** en moyenne sur le mois d’étude.

6.3 Introduction des poussières désertiques dans la variable de contrôle

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons parlé de l'impact de l'introduction des poussières désertiques dans l'opérateur d'observation sur les résultats d'analyse d'ozone. L'impact est trouvé faible sur les analyses d'ozone mais il permet de diminuer l'erreur dans les simulations RTTOV des observations IASI. Dans cette partie, nous allons inclure les poussières désertiques dans la variable de contrôle conjointement à l'ozone et à la température de surface, et investiguer l'impact sur les analyses d'ozone et des poussières désertiques elles-mêmes. Pour ce faire, nous allons commencer par une description de la configuration de l'étude. Puis, nous discuterons l'impact sur les analyses d'ozone et de poussières désertiques, avant de les comparer à des données indépendantes OMI et WOUDC (pour l'ozone), MODIS et AERONET (pour les aérosols).

6.3.1 Configuration de l'étude

La particularité de cette partie par rapport à ce qui précède est l'inclusion des poussières désertiques dans la variable de contrôle, en plus de l'ozone et de la température de surface. Elle reprend, donc, la même configuration présentée sur le tableau 5 pour l'ozone. Pour les poussières désertiques, nous décrivons ici en détail leur description dans le vecteur de contrôle. Les poussières désertiques sont divisées en trois variables de contrôle selon la taille des particules, en reprenant les boîtes décrites dans RTTOV et qui sont issues de CAMS :

- **CAMSDUS1** : petite taille, diamètre entre 0.03 et 0.55 μm ;
- **CAMSDUS2** : taille moyenne, diamètre entre 0.55 et 0.90 μm ;
- **CAMSDUS3** : grande taille, diamètre entre 0.90 et 20.0 μm .

Ces trois variables sont utilisées, sous forme de champs 3D, pour contrôler les poussières désertiques dans notre système. La configuration de l'erreur d'ébauche de ces trois variables de contrôle est similaire à celle de l'ozone. L'écart type de l'erreur d'ébauche est calculé avec un pourcentage de 30 % du profil vertical de l'ébauche sur toute la verticale. La longueur de portée des corrélations horizontales est choisie égale à un point de grille, soit 0.5 degré, et à un niveau pour les corrélations verticales. Nous n'avons pas décrit de corrélation entre les erreurs d'ébauche des trois nouvelles variables de contrôle, ni entre ces variables et l'ozone. Cette expérience incluant les poussières désertiques dans la variable de contrôle est notée **AssimDustO3**. Nous la comparerons aux expériences **Contrôle** et **AssimO3** décrites dans le tableau 4.

6.3.2 Impact sur les analyses d'ozone et de poussières désertiques

Dans cette partie nous allons discuter l'impact de l'assimilation conjointe de l'ozone et des poussières désertiques sur leurs analyses. Nous commencerons, dans un premier temps par l'ozone. La colonne totale et le profil vertical seront discutés et comparés aux

données indépendante notamment OMI et les sondes d’ozone. Ensuite, les analyses de l’AOD et des colonnes totales des poussières désertiques seront abordées. L’épaisseur optique sera comparé à MODIS et AERONET.

Impact sur les analyses d’ozone

Puisque elle a été la seule espèce chimique dans notre variable de contrôle jusqu’à ce chapitre, l’analyse d’ozone était la principale variable discutée dans ce manuscrit jusqu’ici. Nous allons continuer notre discussion de l’analyse de l’ozone avec l’ajout des poussières désertiques dans la variable de contrôle. Nous discuterons la colonne totale et les profils verticaux d’ozone sur la durée d’étude.

Nous présentons sur la figure 28 les moyennes des colonnes totales d’ozone analysées pour les deux expériences **AssimO3** et **AssimDustO3** en unité Dobson (DU), ainsi que leurs différences. La distribution géographique et les valeurs sont similaires, comme on peut le noter sur les deux figures 28(a) et 28(b) et les différences sont difficiles à remarquer à première vue. Nous avons, donc, présenté les différences entre ces deux expériences, différence absolue figure 28(c) et différence relative figure 28(d). Nous remarquons une diminution de l’ozone sur les tropiques avec une valeur maximale de 5 DU quand les poussières désertiques sont incluses dans la variable de contrôle. En termes de différence relative, cette diminution représente de 2 % de la colonne totale. En revanche, une augmentation de l’ozone est rencontrée dans les moyennes et hautes latitudes (nord et sud) d’une valeur maximale de 6 DU. Cette augmentation reste en dessous de 2 % en termes de différence relative. Malgré les poussières désertiques se trouvent en général dans les latitudes de l’hémisphère nord (comme nous l’avons montré sur la carte des observations, Fig. 24), l’impact est réparti sur toutes les latitude du globe. Ce comportement pourrait s’expliquer par le fait que l’introduction des poussières dans le vecteur de contrôle change la fonction coût à minimiser. En effet, Le minimum qui sera trouvé dans le cas d’introduction des poussières pourrait bel et bien être différent de celui quand le vecteur de contrôle contient que l’ozone. Ceci pourrait impacter les analyses d’ozone sur des régions qui ne contiennent pas de poussières. D’autre part, l’effet de la circulation générale qui transporte les incréments d’analyse d’ozone des régions d’émission vers les autres latitudes pourrait être une explication pour ce comportement.

Ces colonnes totales sont comparées à la colonne totale estimée à partir de l’instrument satellitaire OMI pour évaluer l’impact sur le champ d’ozone de l’introduction des poussières désertiques dans la variable de contrôle. La figure 29 montre la différence entre la colonne totale d’ozone de chacune des expériences avec la colonne totale fournie par OMI. Ces scores de biais montrent pour les deux configuration une surestimation des colonnes totales par rapport à OMI, de façon plus marquée dans certaines régions des moyennes latitudes nord et, dans une moindre mesure, aux tropiques et sur le pôle sud. En comparant les figures 29(a) et 29(b), on note de petites différences sur les tropiques et sur le pôle sud. Afin de mieux quantifier ces différences et de voir si elles vont dans le bon sens (amélioration de l’ozone), nous avons calculé la différence des valeurs absolues des biais figure 29(c), que nous avons aussi présentée en la normalisant par les valeurs

d'OMI figure 29(d). Sur les tropiques, une amélioration de 5 DU du biais par rapport à OMI est constatée, avec une amélioration plus marquée sur l'Atlantique et moins marquée sur le Pacifique Est. Ce gain est perdu sur les hautes latitudes (nord et sud) où une dégradation des biais de la colonne totale par rapport à OMI mais toujours en dessous de 2 %. En résumé, assimiler l'ozone conjointement avec les poussières désertiques améliore les analyses de la colonne totale d'ozone sur les tropiques et les dégrade sur les hautes latitudes. Cependant ces différences restent très petites (inférieures à 2 %).

Pour investiguer la réponse de l'ozone sur la verticale quand les poussières sont contrôlées, nous validons nos simulations avec les sondes d'ozone (WOUDC). Nous avons calculé la différence relative de RMSE par rapport aux radiosondages de chaque expérience avec la simulation de contrôle, à la fois globalement et pour cinq bandes de latitudes. Ces différences de RMSE sont normalisées par la valeur moyenne du profil mesuré par les sondes. Par exemple pour l'expérience **AssimDustO3**, cette différence s'exprime ainsi : $(\text{RMSE}_{\text{AssimDustO3-sonde}} - \text{RMSE}_{\text{Contrôle-sonde}}) / \text{MOY}_{\text{sonde}}$. Des valeurs négatives indiquent une amélioration du profil de l'ozone. La figure 30 représente ces différences de RMSE par rapport aux radiosondages. En considérant les statistiques sur le globe (ALL), on remarque que l'expérience **AssimDustO3** a de meilleurs résultats que **AssimO3** autour de 400 hPa et dans la haute stratosphère. Une dégradation au voisinage de la haute troposphère-basse stratosphère (UTLS, 100-300 hPa). Les deux simulations **AssimDustO3** et **AssimO3** reprennent le même comportement près de la surface. Ce comportement est repris sur les moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère nord. Sur les tropiques, l'introduction des poussières dans la variable de contrôle améliore l'ozone sur presque toute la verticale sauf aux alentours de 40 hPa et près de la surface, ces deux zones restant meilleures que le **Contrôle**. Sur l'hémisphère sud, l'expérience **AssimO3** reste la meilleure sur les moyennes latitudes (30S-60S) sur la toute la verticale à l'exception du voisinage de 450 hPa. Sur la bande de latitudes 60S-90S, une amélioration remarquable aux alentours de 400 hPa est apporté par l'introduction des poussières dans la variable de contrôle. Sur le reste de verticale, **AssimO3** représente une erreur inférieure à celle de **AssimDustO3**.

En résumé, l'assimilation conjointe de l'ozone et des poussières désertiques a un impact faible sur les analyses de l'ozone, avec une amélioration des biais en colonne totale aux tropiques et une dégradation aux hautes latitudes. L'impact est encore plus faible par rapport aux sondes d'ozone.

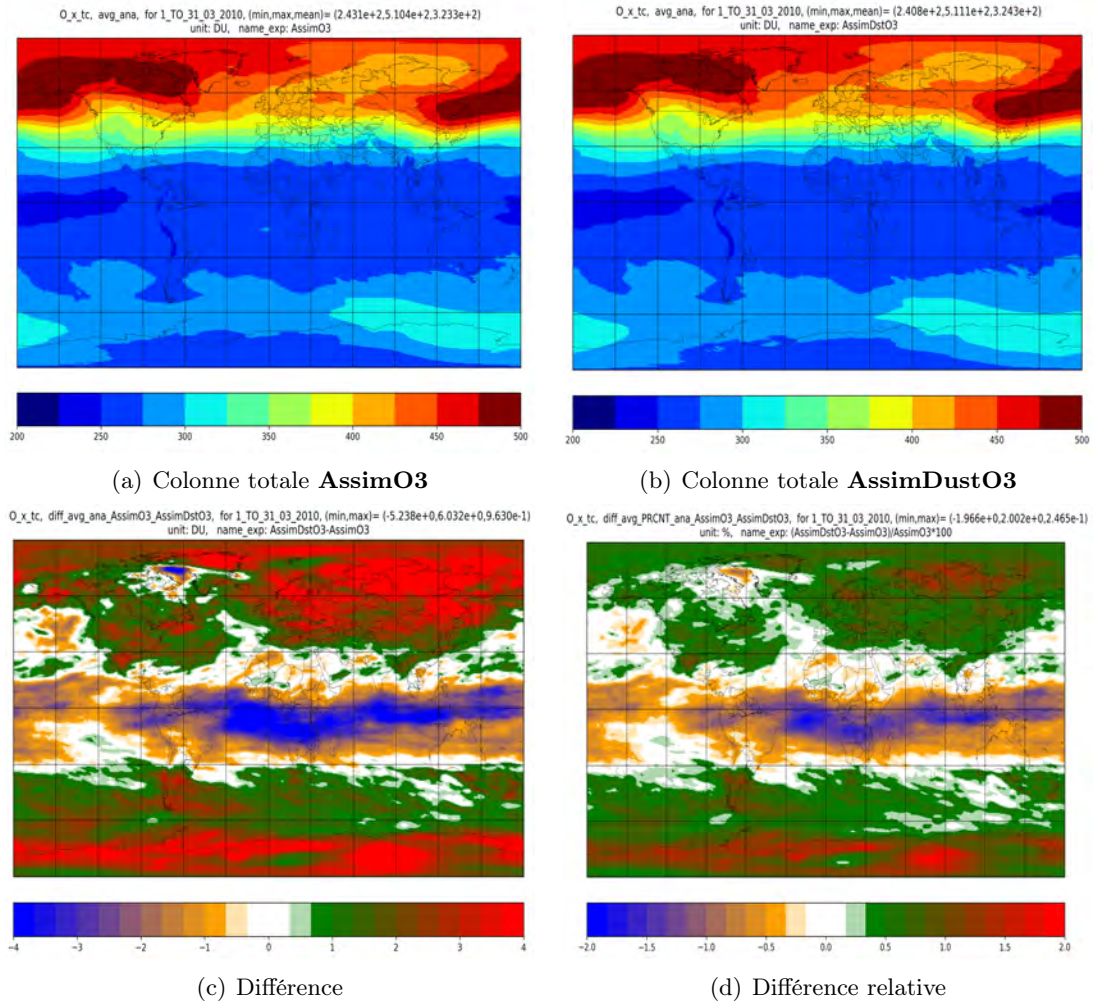


FIGURE 28 – Moyenne de l’analyse de la colonne totale de l’ozone issue de **AssimO3** (a) et de **AssimDustO3** (b), en unité Dobson, et différence (rp. différence relative) de ces deux champs de colonne totale **AssimDustO3**–**AssimO3** en unité Dobson (c) (rp. en pourcentage (d)).

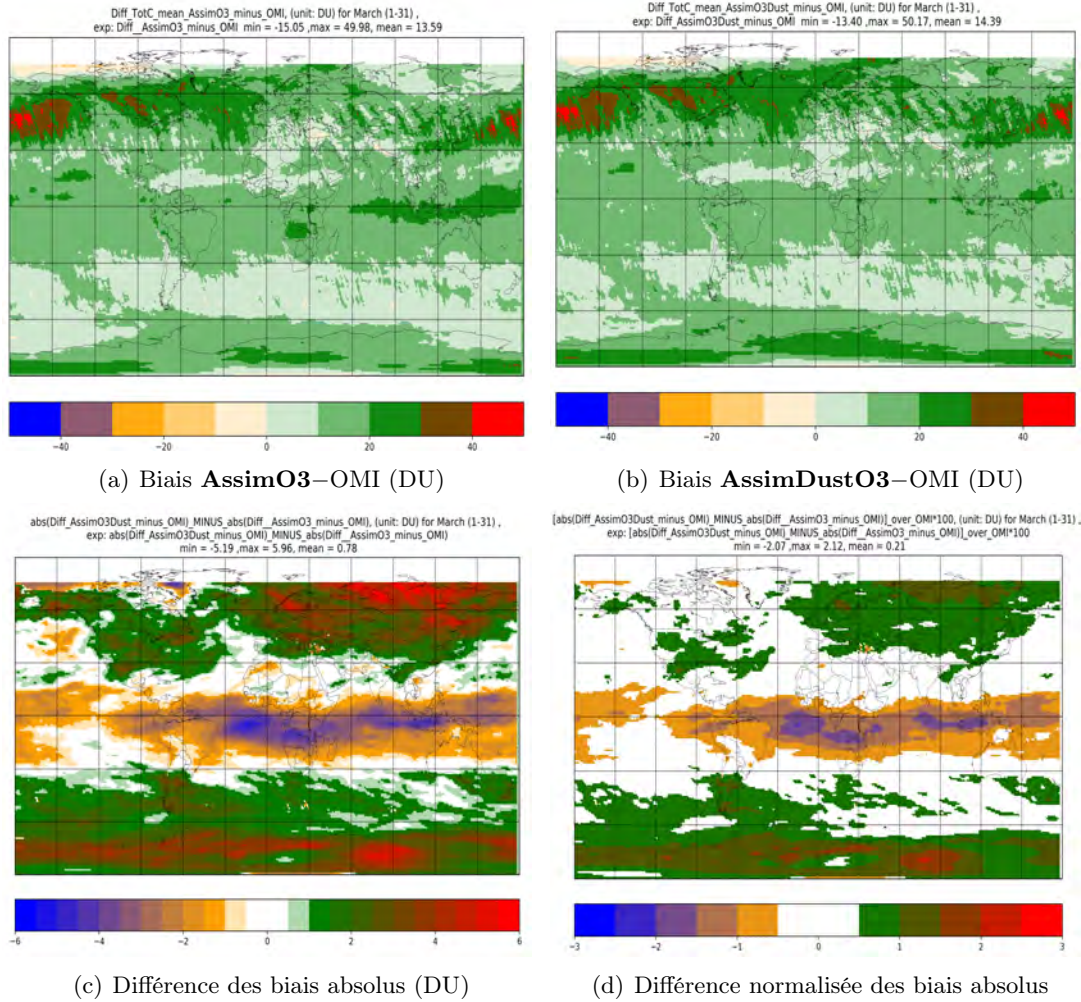


FIGURE 29 – Biais de la colonne totale d’ozone en unité Dobson (DU) **AssimO3**–OMI (a), biais **AssimDustO3**–OMI (b), différence des biais absolus $|\text{AssimDustO3} - \text{OMI}| - |\text{AssimO3} - \text{OMI}|$ (c), et différence des biais absolus normalisée par OMI en pourcentage (d).

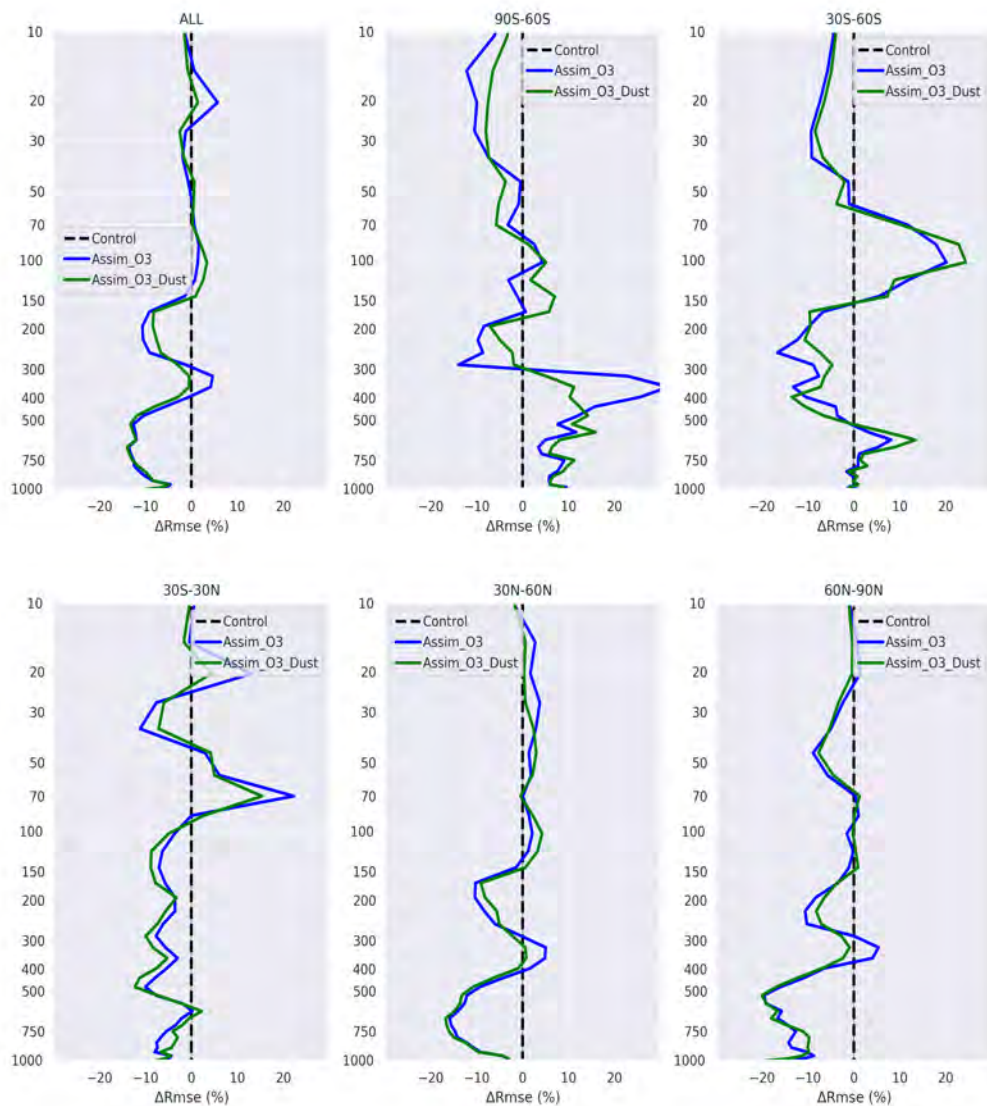


FIGURE 30 – Différence de RMSE par rapport aux sondes d’ozone entre **Contrôle** et **AssimDustO3** en vert (**AssimO3** en bleu), la différence est normalisée par le profil moyen des sondes d’ozone, par exemple : $(\text{RMSE}_{\text{AssimDustO3-sonde}} - \text{RMSE}_{\text{Contrôle-sonde}}) / \text{MOY}_{\text{sonde}}$. Les valeurs négatives signifient que l’introduction des aérosols dans RTTOV a amélioré (diminué) la RMSE par rapport au contrôle, et les valeurs positives indiquent une dégradation (augmentation) de la RMSE. Les niveaux verticaux sont en hPa.

Impact sur les poussières désertiques

Dans la première partie, nous avons discuté l'impact de l'assimilation conjointe de l'ozone et des poussières désertiques sur les analyses d'ozone. Un impact faible a été rencontré améliorant les résultats sur les tropiques et les dégradant sur les hautes latitudes (nord et sud). Dans cette partie nous discuterons les résultats des analyses des poussières désertiques. Pour cela, nous aborderons l'impact sur la colonne totale des poussières désertiques et sur l'épaisseur optique totale (AOD). Cette dernière sera validée par rapport à des données indépendantes MODIS et AERONET.

Comparaison des champs analysés

Nous commençons par la comparaison des colonnes totales des poussières désertiques que nous notons $DESDUST_c$. Nous noterons pour la $DESDUST_{ctrl}$ la moyenne de la colonne totale des poussières désertiques issue de la simulation de contrôle **Contrôle** et $DESDUST_{ana}$ celle issue de l'expérience d'assimilation **AssimDustO3**.

Nous présentons sur la figure 31 la moyenne de $DESDUST_{ctrl}$ et de $DESDUST_{ana}$, ainsi que leur différence et leur différence relative. En comparant visuellement les deux colonnes totales figures 31(a) et 31(b), on peut remarquer une diminution de la colonne totale des poussières désertiques sur le pacifique nord (remplacement de la couleur rouge par l'orange en passant de l'expérience de contrôle à l'expérience d'assimilation) et sur l'Amérique du nord (remplacement de la couleur orange par la couleur jaune sur une partie de Canada en passant de l'expérience de contrôle à l'expérience d'assimilation). On peut le voir plus clairement sur la figure des différences absolues (31(c)). Les valeurs de colonnes totales de poussières désertiques étant très variable en ordre de grandeur sur le globe, nous avons aussi tracé les différences relatives sur la figure 31(d). Cette figure montre une diminution de la colonne totale des poussières désertiques de 20 % à 40 % sur le Pacifique Nord, l'Atlantique Nord, l'Amérique du Nord et sur l'ouest de l'Afrique centrale. Ces réductions vont de 10 % à 20 % sur l'Europe.

On constate une augmentation (couleur verte) rencontrée sur l'hémisphère sud. Cette augmentation reste modeste (moins de 5.5 %). Si la présence de poussières désertiques dans ces régions semble possible, on pense qu'il s'agit plutôt d'un défaut du filtre nuageux utilisé, qui est la couverture nuageuse AVHRR dans le pixel IASI. Ce filtre est connu pour avoir une moins bonne qualité dans les zones froides et blanches, comme l'Antarctique ou la glace de mer. Pour ces pixels, le signal spectral des cristaux de glace vu par l'instrument entre dans le processus d'assimilation, qui a donc essayé de corriger les poussières désertiques dans ces régions (les variables nuageuses ne sont pas dans la variable de contrôle).

Plus généralement, on peut constater que l'assimilation des observations IASI diminue la quantité de poussières désertiques dans le modèle. La construction des erreurs d'ébauche, avec des écarts types étant 30 % du profil initial du modèle localement, peut expliquer ce comportement. Si la quantité de poussières désertiques est très faible dans l'ébauche de l'assimilation, alors l'erreur d'ébauche locale sera très faible. Même si les observations IASI voient des poussières désertiques à ces endroits, l'assimilation pourra difficilement

en créer.

Nous étudions maintenant l'épaisseur optique de la totalité des aérosols. Comme précédemment, nous noterons pour la suite de cette partie AOD_{ctrl} l'AOD issu de la simulation de contrôle **Contrôle**, qui est identique à l'AOD de l'expérience **AssimO3** où les poussières désertiques ne sont pas modifiées, et AOD_{ana} celui issu de l'expérience d'assimilation **AssimDustO3**.

La figure 32 montre la moyenne de l' AOD_{ctrl} et de l' AOD_{ana} (b), ainsi que la différence entre ces deux AOD et la différence relative. En comparant les figures 32(a) et 32(b), on peut remarquer une diminution de l'AOD sur le Pacifique Nord (remplacement de la couleur jaune par l'orange en passant de l'expérience de contrôle à l'expérience d'assimilation) et sur l'Amérique du Nord. Cela est cohérent avec ce qui a été observé sur les colonnes totales de poussières désertiques. Ce constat se confirme sur la carte des différences figure 32(c). Une diminution de l'AOD de 0.3 sur la Chine est constatée. Cette diminution est de 0.1 sur le Pacifique Nord et sur le Soudan. Des valeurs faibles peuvent être remarquées sur la Mauritanie. En regardant les différences relatives sur la figure 32(d), nous constatons que cette diminution est importante. Sur la majorité des régions des différences, la diminution est de 10 % à 20 % et elle atteint 30 % à 50 % sur la Chine, l'ouest du Canada et sur le sud du Soudan. Nous arrivons aux mêmes conclusions que pour les colonnes totales de poussières désertiques. Cependant la quantité discutée ici est l'AOD qui contient l'information sur tous les aérosols. Les différences sur les moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère sud ne sont ici plus visibles..

Vérification par rapport à des mesures indépendantes

L'introduction des poussières désertiques dans la variable de contrôle a un impact important sur leurs analyses. Pour valider cet impact nous comparons nos résultats à deux données indépendantes d'AOD total : MODIS et AERONET.

Pour comparer nos résultats, nous avons calculé les différences entre l'AOD total du modèle (issu de **Contrôle** et **AssimDustO3**) et celui de la donnée indépendante (AERONET ou MODIS) sur le mois d'étude. L'erreur quadratique moyenne (RMSE) de ces différences sera discutée dans cette partie. Nous noterons $RMSE_{ctrl}$ l'erreur quadratique moyenne de la différence entre l'AOD de **Contrôle** et celui de la donnée indépendante, et $RMSE_{ana}$ l'erreur de la différence entre l'AOD de **AssimDustO3** et celui de la donnée indépendante.

Nous présentons sur la figure 33 ces scores par rapport à MODIS, $RMSE_{ctrl}$ et $RMSE_{ana}$, ainsi que la différence de ces deux RMSE normalisée par l'AOD de la simulation de contrôle : $(RMSE_{ana} - RMSE_{ctrl}) / AOD_{ctrl}$. Des valeurs négatives montrent donc une amélioration du score. En comparant les deux RMSE figures 33(a) et 33(b), une réduction de l'erreur peut être remarquée sur l'Atlantique Nord, l'Amérique du Nord et le Pacifique Nord (des régions de couleur verte ont été remplacées par la couleur blanche). L'apport de l'assimilation des poussières désertiques en comparaison avec MODIS peut être quantifié d'une façon beaucoup plus claire avec des différences relatives présentées sur la figure 33(c). Nous pouvons constater une domination des valeurs négatives sur la

majorité des régions de la carte. Ceci est une réduction de l'erreur de l'analyse de l'AOD en introduisant les poussières désertiques dans la variables de contrôle, en utilisant MODIS comme vérification. Cette réduction normalisée augmente pour atteindre une valeur maximale de plus de 120 %. Des valeurs de plus de 60 % sont rencontrées sur la Chine et le pacifique du nord. Une dégradation des résultats de valeurs de moins de 20 % sur la Chine, l'Afrique et l'Europe. Quelques points sur le centre de la Chine et l'Egypte peuvent augmenter pour atteindre 60 % (couleur rouge). Une alternance de quelques points sur l'hémisphère sud entre l'orange et le vert concerne probablement les pixels IASI qui sont gardés par erreur après le filtre nuageux.

En bref, la validation de l'analyse de l'AOD par rapport à MODIS montre une amélioration importante sur le majorité des régions touchées par des poussières désertiques, à l'exception du Sud du Sahel.

Une confirmation de cette amélioration est présentée dans la figure 34 où les résultats d'analyse de l'AOD total sont comparés aux mesures du réseau AERONET. Les scores de RMSE du modèle par rapport à AERONET, avec les mêmes notations que précédemment, sont représentés : $RMSE_{ctrl}$ pour l'expérience **Contrôle** sur la figure 34(a) et $RMSE_{ana}$ pour l'expérience **AssimDustO3** sur la figure 34(b). La différence de ces deux RMSE normalisée par l'AOD de la simulation de contrôle est représentée sur la figure 34(c), où des valeurs négatives montrent une amélioration des résultats. L'amélioration rencontrée dans la validation par rapport à MODIS est confirmée ici avec un maximum de 60 % de réduction d'erreur. L'amélioration est presque sur toutes les station représentées sur cette carte à l'exception d'une station en Thaïlande où une dégradation de 17 % est constatée.

En résumé, l'assimilation conjointe des poussières désertiques avec l'ozone, malgré son impact faible sur l'ozone, permet une amélioration importante des d'analyses de poussières désertiques.

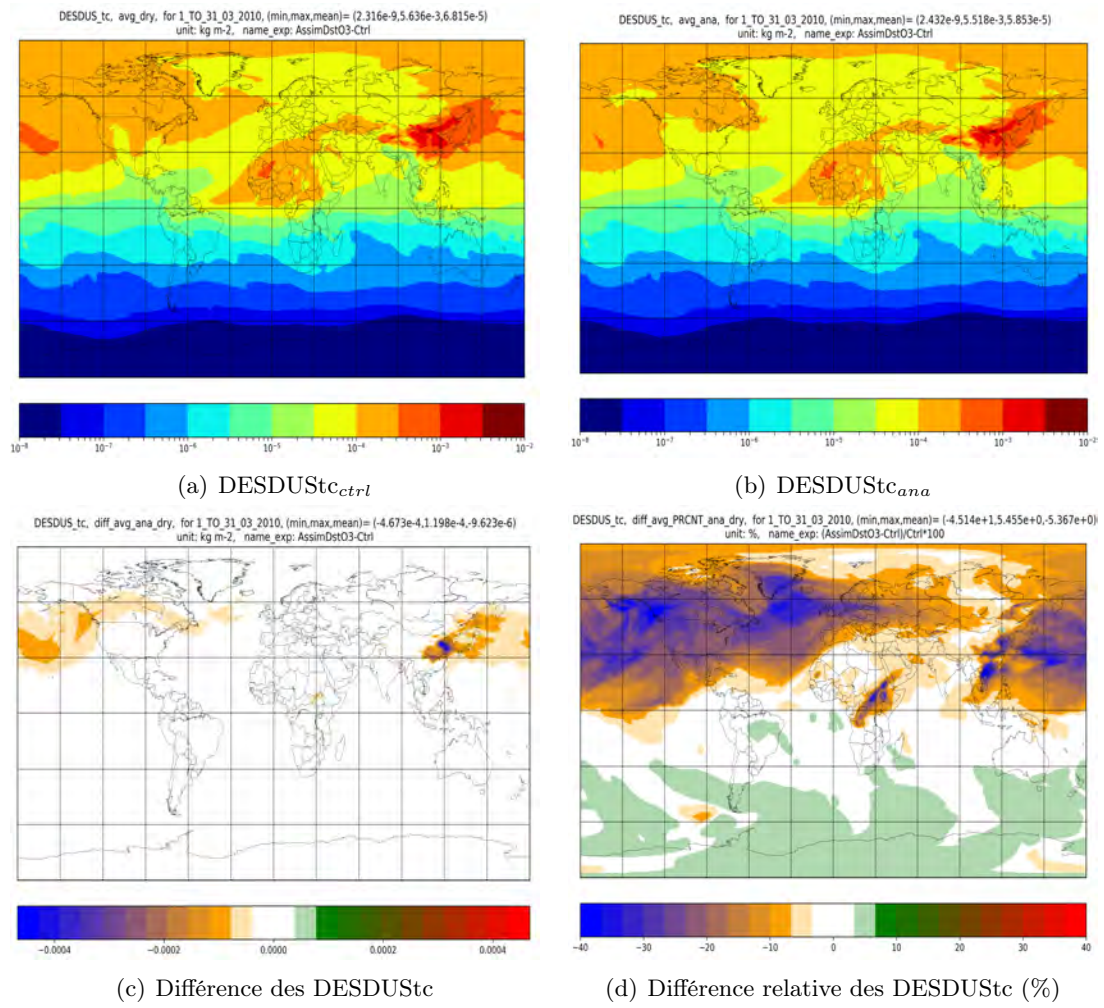


FIGURE 31 – Colonne totale des poussières désertiques moyennée sur le mois d'étude (en $kg.m^{-2}$) pour **Contrôle** et **AssimDustO3**, et différence $DESDUST_{ana} - DESDUST_{ctrl}$.

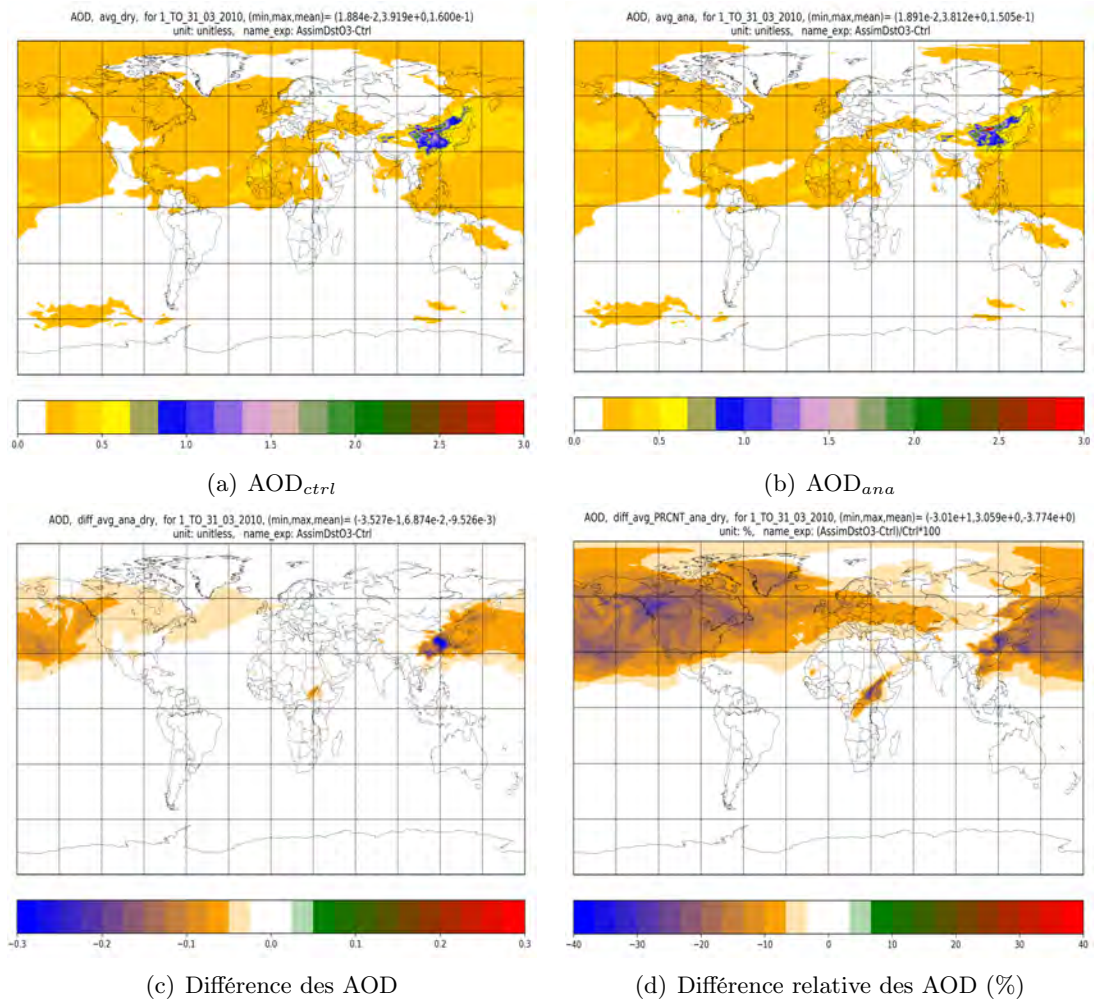


FIGURE 32 – Épaisseur optique de tous les types d'aérosols (AOD total, sans unité) des expériences **Contrôle** et **AssimDustO3**, et différences $AOD_{ana} - AOD_{ctrl}$.

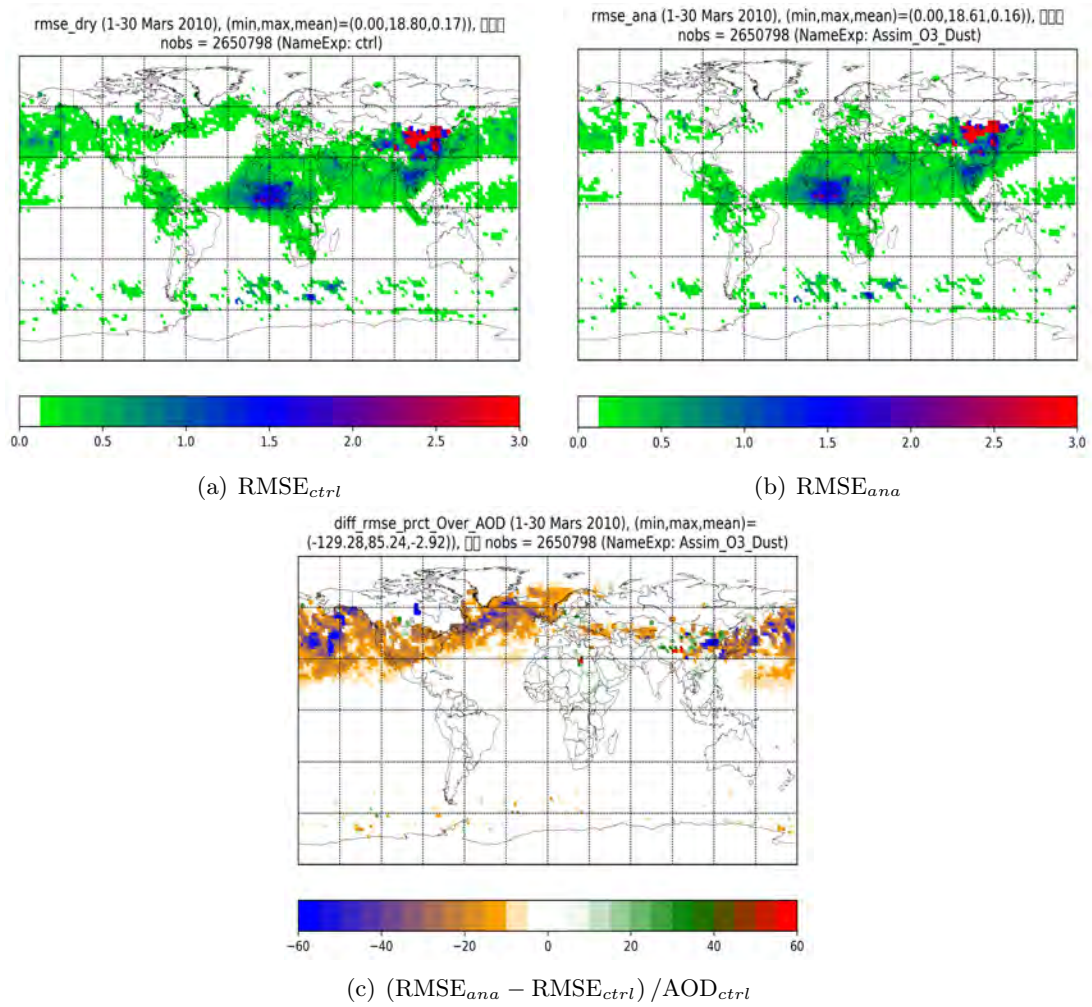


FIGURE 33 – Validation par rapport à l’AOD de MODIS : RMSE de **Contrôle** et de **AssimDustO3**, et différence de ces RMSE normalisée par l’AOD de **Contrôle** exprimée en pourcentage.

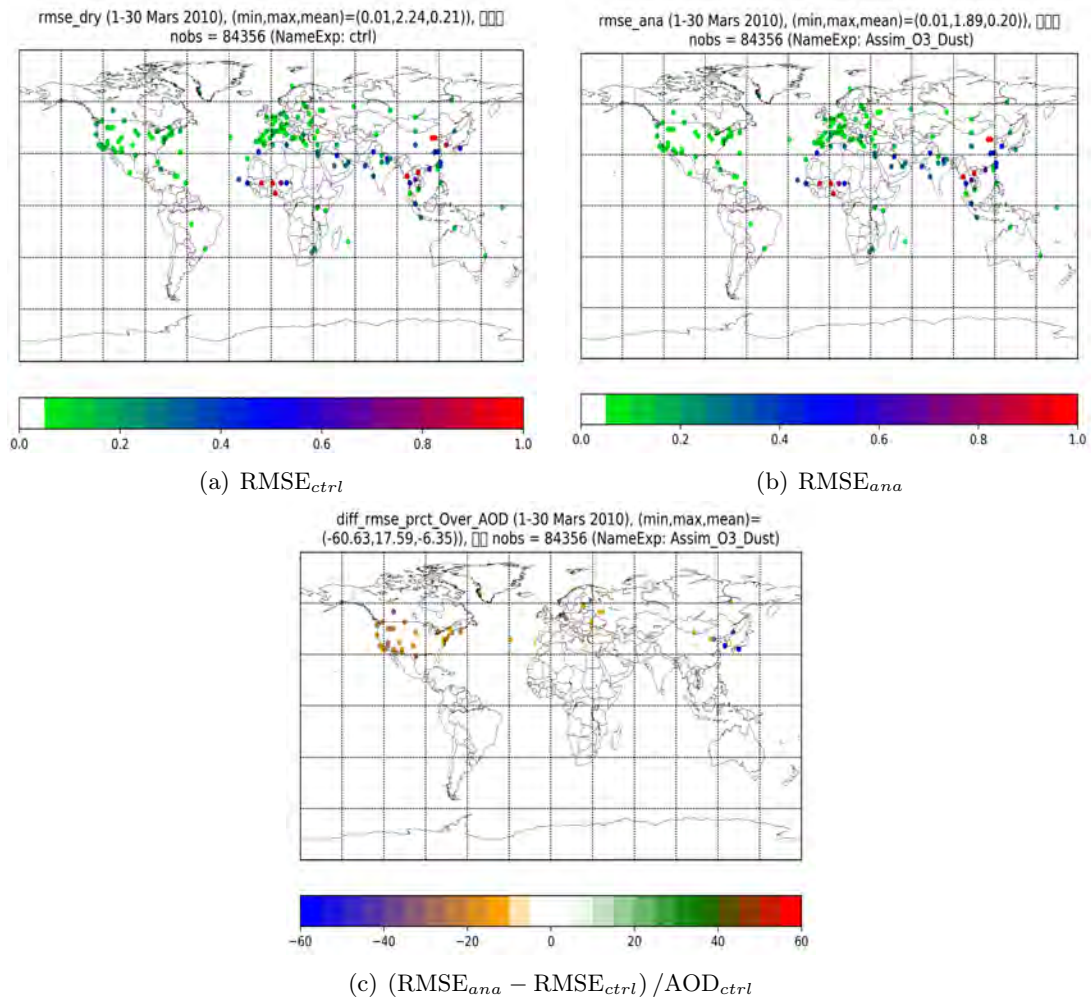


FIGURE 34 – Validation par rapport à l’AOD du réseau AERONET : RMSE de **Contrôle** et de **AssimDustO3**, et différence de ces RMSE normalisée par l’AOD de **Contrôle** exprimée en pourcentage.

6.3.3 Synthèse

Dans cette partie nous avons discuté l'impact de la prise en compte des poussières désertiques dans l'assimilation du spectre L1 IASI (980 - 1100 cm^{-1}). Nous avons commencé, dans un premier temps, par évaluer les analyse d'ozone. La colonne totale est le profil vertical ont été discutés et comparés aux données indépendantes OMI et les sondes d'ozone. Les résultats ont montré que l'assimilation de l'ozone avec les poussières désertiques conjointement améliore les analyses de la colonne totale d'ozone sur les tropiques et les dégrade sur les hautes latitudes. Une validation aux sondes de l'ozone montre que l'introduction des poussières désertiques améliore les résultats autour de 400 hPa et dans la haute stratosphère et les dégrade au voisinage de la haute troposphère-basse stratosphère (UTLS, 100-300 hPa). Cependant ces différences par rapport à OMI et WOUDC restent très petites (inférieures à 2 %).

Ensuite, les analyses de l'AOD et des colonnes totales des poussières désertiques ont été abordées. L'épaisseur optique a été comparée à MODIS et AERONET. L'introduction des poussières désertiques dans la variable de contrôle a un impact important sur leurs analyses. La validation de l'AOD issu des analyses par rapport à MODIS et AERONET a montré une amélioration importante sur la majorité des régions contenant des poussières désertiques.

7 Conclusions et perspectives

Conclusions :

Dans un contexte d'utilisation croissante des sondeurs infrarouges pour surveiller la composition de l'atmosphère, on s'est intéressé dans ce travail à l'assimilation des luminances IASI dans le modèle de chimie-transport MOCAGE. Le but est d'améliorer le système d'assimilation décrit initialement dans Emili et al. [2019] et représentant le premier pas vers un système de prévision et d'analyse de la composition de l'atmosphère basé sur les luminances satellitaires de niveau 1. Plus précisément on s'est intéressé ici à une spécification plus réaliste des erreurs d'observation et des processus dans le transfert radiatif, notamment à travers la prise en compte des poussières désertiques. L'objectif de ce travail est le développement d'un système d'assimilation conjointe de l'ozone et des poussières désertiques, pour une possible utilisation future dans les centres de prévision opérationnels tels que Météo France.

Dans la première partie, nous avons investigué les erreurs d'observation dans le but d'améliorer les analyses de l'ozone. Nous avons estimé la matrice de covariances des erreurs d'observation \mathbf{R} . Pour ceci, nous avons utilisé le diagnostic de Desroziers, une méthode étant déjà adoptée dans de nombreux centres de prévision numérique du temps. Nous avons utilisé un sous-ensemble de 280 canaux couvrant la bande spectrale entre 980 et 1100 cm^{-1} . Cette bande spectrale contient des canaux sensibles à l'ozone et des fenêtres atmosphériques (utilisés pour la température de surface, notée SST). Le résultat de l'estimation a montré des corrélations élevées entre les erreurs de la majorité des canaux spectraux IASI utilisés, en particulier ceux sensibles à la température de surface. Cette matrice a été en suite introduite dans notre système d'assimilation. Son introduction a réduit la quantité d'ozone dans la troposphère libre et dans la haute stratosphère tropicale, tandis que l'ozone a été ajouté au voisinage de la basse stratosphère par rapport à une simulation avec une matrice de covariances d'erreurs d'observation diagonale. Ces résultats ont ensuite été validés avec des données indépendantes : OMI, MLS et les sondes d'ozone. La validation contre OMI a montré que les résultats en colonnes totales d'ozone étaient plus proches des observations lorsque la matrice estimée a été utilisée. La validation par rapport à MLS et aux sondes d'ozone a montré que l'utilisation de la nouvelle matrice \mathbf{R} a globalement amélioré les résultats dans la stratosphère, notamment dans les tropiques. Malgré une légère baisse de qualité au voisinage de l'UTLS, l'amélioration reste toujours avantageuse par rapport à une simulation sans assimilation. Concernant le coût de calcul, l'introduction de \mathbf{R} estimée réduit significativement le nombre d'itérations nécessaires pour que l'algorithme d'assimilation converge. En résumé, la prise en compte de la nouvelle matrice \mathbf{R} estimée améliore considérablement les résultats d'assimilation de l'ozone.

Les premiers résultats que nous avons discutés ont été calculés sur la période d'un mois. Dans cette première partie, notre objectif principal était de mettre à jours les erreurs d'observations dans notre système et évaluer l'impact sur la précision de l'analyse de l'ozone. Nous avons montré que l'impact était statistiquement significatif. Les scores sont globalement améliorés par rapport à trois ensembles d'observations de validation

indépendantes (sondes d’ozone, MLS et OMI). Cependant, plus la période d’étude est longue, plus les résultats sont significatifs. Par conséquent, dans notre deuxième partie, une intégration du modèle sur une période d’une année a été effectuée dans le but d’évaluer la capacité de l’assimilation des mesures infrarouges à reproduire la variabilité temporelle de l’ozone sur une année.

La réanalyse de Peiro et al. [2018], nommée *IASI-a*, était le point de départ de cette étude. La configuration du système de réanalyse a été maintenue presque identique, sauf pour les données IASI assimilées, qui sont les luminances (niveau 1) dans notre étude au lieu des produits de niveau 2. Cette nouvelle réanalyse a été nommée *IASI-r*. Les autres aspects du système tel que le modèle de transport chimique, l’assimilation de l’O₃ stratosphérique à partir de MLS ont été conservés inchangés par rapport à *IASI-a* afin d’évaluer principalement l’impact de l’assimilation des luminances. Les résultats obtenus ont été validés à des données indépendantes notamment les sondes d’ozone et des réanalyses issue des modèles utilisant des schémas chimiques détaillés : la réanalyse issue de CAMS (Copernicus Atmospheric Monitoring Service) appelée *CAMSRA* et *GEOS-CCM* (Goddard Earth Observing System with a coupled Chemistry–Climate Model). La comparaison aux sondes d’ozone a montré une amélioration des résultats pour *IASI-r* dans les zones extra-tropicales et un comportement similaire aux latitudes tropicales. D’autre part, l’utilisation des luminances IASI diminue l’erreur de l’analyse par rapport à la simulation de contrôle dans les latitudes moyennes et dans la région polaire à différence de *IASI-a*, qui augmente l’erreur dans ces régions. La variabilité temporelle des profils d’ozone au niveau de la troposphère libre des deux réanalyses a été comparée à la réanalyse issue de CAMS. Les profils mensuels de *IASI-r* sont les plus proches de *CAMSRA*. La comparaison de nos résultats à *GEOS-CCM* a montré que l’assimilation des mesures de IASI pourrait également être bénéfique pour les modèles basés sur une chimie plus détaillée de l’ozone. En résumé, l’apport des luminances IASI pour des analyses d’ozone pour une durée longue est remarquable. Elles permettent de reproduire les aspect saisonniers et de fournir une information complémentaire quand des schémas chimiques réduits sont utilisés.

Toutes les expériences qui ont été réalisées dans la première partie de notre travail font l’hypothèse que l’effet des aérosols est négligeable. Cependant, des travaux de restitution de l’ozone qui utilisent la même bande que la nôtre ont montré une sensibilité importante aux poussières désertiques. Par conséquent, dans la suite de notre travail nous avons investigué l’impact de la prise en compte des poussières désertiques dans notre système d’assimilation des luminances sur les analyses de l’ozone et des aérosols.

Dans un premier temps, nous avons évalué l’impact de l’introduction de l’effet des poussières désertiques dans l’opérateur d’observation sur les analyses d’ozone. En d’autres termes, le calcul de l’équivalent de l’état du modèle dans l’espace des observations a été effectué en prenant en compte l’effet des poussières désertiques dans le modèle de transfert radiatif. L’impact sur les analyses d’ozone a été trouvé faible mais l’inclusion des poussières a permis de réduire l’écart entre les luminances simulées et celles mesurées par IASI. Ceci confirme la sensibilité de notre spectre aux poussières et suscite l’intérêt de les contrôler malgré l’impact faible sur l’ozone. Nous avons, donc, inclus les poussières

désertiques aussi dans la variable de contrôle, conjointement à l’ozone et à la température de surface, et investigué l’impact sur les analyses d’ozone et des poussières désertiques elles-mêmes. Nous avons comparé nos résultats à des données indépendantes notamment OMI et WOUDC pour l’ozone, et MODIS et AERONET pour les aérosols. La colonne totale et le profil vertical de l’ozone ont été discutés et comparés à OMI et les sondes d’ozone. Les résultats ont montré que l’assimilation de l’ozone avec les poussières désertiques conjointement améliore les analyses de la colonne totale d’ozone sur les tropiques et les dégrade sur les hautes latitudes. Une validation aux sondes de l’ozone montre que l’introduction des poussières désertiques améliore les résultats autour de 400 hPa et dans la haute stratosphère et les dégrade au voisinage de la haute troposphère-basse stratosphère (UTLS, 100-300 hPa). Cependant ces différences par rapport à OMI et WOUDC restent très petites (inférieures à 2 %). Ensuite, les analyses de l’AOD et des colonnes totales des poussières désertiques ont été abordées. L’épaisseur optique a été comparée à MODIS et AERONET. L’introduction des poussières désertiques dans la variable de contrôle a montré une bonne capacité de correction de l’assimilation infrarouge surtout dans les zones où le modèle avait tendance à surestimer leurs concentration. La comparaison de l’épaisseur optique à MODIS et à AERONET a montré un impact significatif et positif de l’assimilation infrarouge sur les champs de aérosols.

Perspectives :

Dans ce travail et pour toutes les parties, la matrice d’erreurs d’ébauche \mathbf{B} a été définie à l’aide d’une méthode relativement simple et empirique utilisant des pourcentages du profil d’ébauche. Une première perspective qui s’ouvre donc après ce travail est d’investiguer les erreurs d’ébauche et leur description dans notre système d’assimilation. Ceci est, d’autant plus, une nécessité quand les poussières désertiques sont contrôlées. En effet, les poussières sont définies sous forme de trois variables qui pourraient présenter des corrélations entre elles. En outre, l’utilisation d’un pourcentage d’ébauche sous-estime les erreurs dans les régions où l’ébauche est faible. La première piste est donc de revoir ces choix en s’appuyant sur des méthodes plus sophistiquées tel que l’approche ensembliste, qui permettrait de mieux prendre en compte les erreurs paramétriques dans les processus du modèle qui influencent les poussières. D’autre part, la bande des canaux que nous avons adoptée hérite des travaux de restitutions de l’ozone. Une deuxième perspective est donc d’effectuer une nouvelle sélection pour réduire le coût de calcul et la redondance des informations du spectre IASI utilisé pour l’ozone. Pour les poussières désertiques, une sélection des canaux sensibles sur d’autres régions du spectre IASI pourrait être très bénéfique lors de l’assimilation des luminances.

L’estimation des erreurs d’observation adoptée dans ce travail concerne la covariance totale. Nous avons supposé qu’une grande partie de l’erreur est due au transfert radiatif puisque l’erreur instrumentale était très petite. Cependant, un effort supplémentaire est nécessaire pour comprendre les différentes sources d’erreur. En plus, les corrélations utilisés sont des corrélations entre les canaux. Des corrélations spatiales négligées dans ce travail pourraient impacter les résultats.

Il est à noter que durant tout ce travail nous avons fait l’hypothèse que les erreurs

d'observation ne sont pas biaisées. Ceci n'est toujours pas le cas surtout quand on utilise directement les luminances. En effet, un biais peut se manifester sur les luminances satellitaires émanant de l'instrument (e.g. biais instrumental, biais lié à l'angle de mesure de l'instrument) ou dépendant de la situation de l'atmosphère (e.g. type de masse d'air, cycle diurne). Des hypothèses liées à l'utilisation des modèles de transfert radiatif telles que l'effet des nuages et aérosols pourraient introduire un biais. Dans le cadre de la prévision numérique du temps, les erreurs systématiques des luminances sont en général corrigées lors de l'assimilation. Une méthode est souvent utilisée : la correction de biais variationnelle, appelée VarBC. L'hypothèse clé de cette méthode est que l'état d'ébauche est non biaisé. Cette hypothèse n'est pas valable dans les applications de chimie atmosphérique, où les modèles peuvent avoir des biais importants, ce qui est le cas dans notre étude. Dans ce cas, VarBC nécessite des données indépendantes (pivots) pour empêcher la dérive des analyses vers des valeurs irréalistes qui pourraient être introduites par le biais du modèle. Dans notre cas, nous contrôlons l'ozone troposphérique et stratosphérique. L'identification d'un pivot doit être étudiée avec soin. Aussi, une bonne compréhension des sources de biais des observations est un pré-requis pour mettre en œuvre un schéma de correction de biais. Une autre perspective s'ouvre donc à ce travail.

L'amélioration apportée aux poussières désertiques en utilisant les luminances IASI ouvre une grande perspective dans l'utilisation des sondeurs hyperspectraux infrarouge en combinaison avec d'autres instruments mesurant l'épaisseur optique totale tels que MODIS et AERONET. Ceci permettra de surveiller au même temps l'emplacement et les propriétés des poussières désertiques. En plus, l'utilisation conjointe des bandes infrarouges sensibles aux poussières et des instruments mesurant l'AOD permettra de mieux évaluer la contribution des poussières sur la quantité totale d'AOD. Ceci pourrait être le cas pour d'autres types d'aérosols qui pourraient être mesurés dans l'infrarouge. D'autre part, les résultats encourageants trouvés pour les réanalyses d'ozone et de poussières en utilisant les luminances IASI ouvrent la perspective de prolonger la période pour produire des réanalyses beaucoup plus longues. Ceci étant bénéfique avec la continuité de mesure IASI datant depuis 2006 jusqu'à nos jours et qui sera prolongé sur deux autres décennies prévues avec la nouvelle génération IASI-NG.

Références

- Alfaro, C., Gaudichet, A., and Maih, M. (1998). Mineral aerosol production by wind erosion : aerosol particle sizes and at low wind produced different increases with the to fit the is was observed experiments size speeds mostly large aerosol particles are released , then speeds in the wind runnel there. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 106(D16) :991–994.
- Aumann, H., Chahine, M., Gautier, C., Goldberg, M., Kalnay, E., McMillin, L., Revercomb, H., Rosenkranz, P., Smith, W., Staelin, D., Strow, L., and Susskind, J. (2003). Airs/amsu/hsb on the aqua mission : design, science objectives, data products, and processing systems. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 41(2) :253–264.
- Balis, D., Kroon, M., Koukouli, M. E., Brinksma, E. J., Labow, G., Veeffkind, J. P., and McPeters, R. D. (2007). Validation of ozone monitoring instrument total ozone column measurements using brewer and dobson spectrophotometer ground-based observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D24).
- Banks, J., Brindley, H., Flamant, C., Garay, M., Hsu, N., Kalashnikova, O., Klüser, L., and Sayer, A. (2013). Intercomparison of satellite dust retrieval products over the west african sahara during the fennec campaign in june 2011. *Remote Sensing of Environment*, 136 :99–116.
- Barré, J., Peuch, V. H., Lahoz, W. A., Attié, J. L., Josse, B., Piacentini, A., Eremenko, M., Dufour, G., Nedelec, P., von Clarmann, T., and El Amraoui, L. (2014). Combined data assimilation of ozone tropospheric columns and stratospheric profiles in a high-resolution ctm. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 140(680) :966–981.
- Bechtold, P., Bazile, E., Guichard, F., and Mascart, P. (2001). A mass-flux convection scheme for regional and global models. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 127(573) :869–886.
- Beer, R., Bowman, K. W., Brown, P. D., Clough, S. A., Jacob, D. J., Logan, J. A., Sander, S. P., and Syvertson, M. (1999). Tropospheric Emission Spectrometer (Tes) Level 2 Algorithm Theoretical Basis Tropospheric Emission. Technical report, Jet Propulsion Lab.
- Benedetti, A., Morcrette, J.-J., Boucher, O., Dethof, A., Engelen, R. J., Fisher, M., Flentje, H., Huneeus, N., Jones, L., Kaiser, J. W., Kinne, S., Mangold, A., Razinger, M., Simmons, A. J., and Suttie, M. (2009). Aerosol analysis and forecast in the european centre for medium-range weather forecasts integrated forecast system : 2. data assimilation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114(D13) :1–18.
- Bhartia, P. K. (2002). OMI Algorithm Theoretical Basis Document. Technical Report August, NASA Goddard Space Flight Center Greenbelt.

- Bhartia, P. K., McPeters, R. D., Flynn, L. E., Taylor, S., Kramarova, N. A., Frith, S., Fisher, B., and DeLand, M. (2013). Solar backscatter uv (sbuv) total ozone and profile algorithm. *Atmospheric Measurement Techniques*, 6(10) :2533–2548.
- Borbas, E. E. and Ruston, B. C. (2010). The rttov uwiremis ir land sur-face emissivity module. *Tech. rep., NP-SAF report*, page 3624–3648.
- Bormann, N., Bonavita, M., Dragani, R., Eresmaa, R., Matricardi, M., and McNally, A. (2016). Enhancing the impact of IASI observations through an updated observation-error covariance matrix. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 142(697) :1767–1780.
- Bormann, N., Saarinen, S., Kelly, G., and Thépaut, J. N. (2003). The spatial structure of observation errors in atmospheric motion vectors from geostationary satellite data. *Monthly Weather Review*, (12) :706–718.
- Boucher, O. (2013). Clouds and Aerosols. In : Climate Change 2013 : The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change,. Technical report.
- Bovensmann, H., Burrows, J. P., Buchwitz, M., Frerick, J., Noël, S., Rozanov, V. V., Chance, K. V., and Goede, A. P. (1999). SCIAMACHY : Mission objectives and measurement modes. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 56(2) :127–150.
- Bowman, K. W., Steck, T., Worden, H. M., Worden, J., Clough, S., and Rodgers, C. (2002). Capturing time and vertical variability of tropospheric ozone : A study using nadir retrievals. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D23) :ACH 21–1–ACH 21–11.
- Boynard, A., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Turquety, S., George, M., Hadji-Lazaro, J., Keim, C., and Meyer-Arnek, J. (2009). Measurements of total and tropospheric ozone from iasi : comparison with correlative satellite, ground-based and ozonesonde observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(16) :6255–6271.
- Bristow, C. S., Hudson-Edwards, K. A., and Chappell, A. (2010). Fertilizing the amazon and equatorial atlantic with west african dust. *Geophysical Research Letters*, 37(14).
- Burrows, J., Bovensmann, H., Bergametti, G., Flaud, J., Orphal, J., Noël, S., Monks, P., Corlett, G., Goede, A., von Clarmann, T., Steck, T., Fischer, H., and Friedl-Vallon, F. (2004). The geostationary tropospheric pollution explorer (geotrope) mission : objectives, requirements and mission concept. *Advances in Space Research*, 34(4) :682–687. Trace Constituents in the Troposphere and Lower Stratosphere.
- Burrows, J. P., Weber, M., Buchwitz, M., Rozanov, V., Ladstätter-Weissenmayer, A., Richter, A., DeBeek, R., Hoogen, R., Bramstedt, K., Eichmann, K.-U., Eisinger, M., and Perner, D. (1999). The global ozone monitoring experiment (gome) : Mission concept and first scientific results. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 56(2) :151 – 175.

- Capelle, V., Chédin, A., Péquignot, E., Schlüssel, P., Newman, S. M., and Scott, N. A. (2012). Infrared continental surface emissivity spectra and skin temperature retrieved from IASI observations over the tropics. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, pages 1164–1179.
- Capelle, V., Chédin, A., Pondrom, M., Crevoisier, C., Armante, R., Crepeau, L., and Scott, N. A. (2018). Infrared dust aerosol optical depth retrieved daily from IASI and comparison with AERONET over the period 2007–2016. *Remote Sensing of Environment*, (December 2016) :15–32.
- Capelle, V., Chédin, A., Siméon, M., Tsamalis, C., Pierangelo, C., Pondrom, M., Crevoisier, C., Crepeau, L., and Scott, N. A. (2014). Evaluation of iasi-derived dust aerosol characteristics over the tropical belt. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(17) :9343–9362.
- Carboni, E., Thomas, G. E., Sayer, A. M., Siddans, R., Poulsen, C. A., Grainger, R. G., Ahn, C., Antoine, D., Bevan, S., Braak, R., Brindley, H., DeSouza-Machado, S., Deuzé, J. L., Diner, D., Ducos, F., Grey, W., Hsu, C., Kalashnikova, O. V., Kahn, R., North, P. R. J., Salustro, C., Smith, A., Tanré, D., Torres, O., and Veihelmann, B. (2012). Intercomparison of desert dust optical depth from satellite measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(8) :1973–2002.
- Chameides, G. W. L. (1986). Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 91(D13) :14367–14376.
- Chiapello, I., Moulin, C., and Prospero, J. M. (2005). Understanding the long-term variability of african dust transport across the atlantic as recorded in both barbados surface concentrations and large-scale total ozone mapping spectrometer (toms) optical thickness. *J. Geophys. Res.*, 110(D18) :D18S10.
- Chu, D. A., Kaufman, Y. J., Ichoku, C., Remer, L. A., Tanré, D., and Holben, B. N. (2002). Validation of modis aerosol optical depth retrieval over land. *Geophysical Research Letters*, 29(12) :MOD2-1–MOD2-4.
- Clarisse, L., Coheur, P.-F., Prata, F., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., and Clerbaux, C. (2013). A unified approach to infrared aerosol remote sensing and type specification. *Atmos. Chem. Phys.*, page 2195–2221.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F. (2009). Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared iasi/metop sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(16) :6041–6054.
- Collaud, M., Andrews, E., Asmi, A., Baltensperger, U., Bukowiecki, N., Day, D., Fiebig, M., Fjaeraa, A. M., Flentje, H., Hyvarinen, A., Jefferson, A., Jennings, S. G., Kouvarakis, G., Lihavainen, H., Lund, C., Malm, W. C., Mihapopoulos, N., Molnar, J. V.,

- O’Dowd, C., Ogren, J. A., Schichtel, B. A., Sheridan, P., Virkkula, A., Weingartner, E., Weller, R., and Laj, P. (2013). Aerosol decadal trends-Part 1 : In-situ optical measurements at GAW and IMPROVE stations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(2) :869–894.
- Cordoba, M., Dance, S. L., Kelly, G. A., Nichols, N. K., and Waller, J. A. (2017). Diagnosing atmospheric motion vector observation errors for an operational high-resolution data assimilation system. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 143(702) :333–341.
- Costantino, L., Cuesta, J., Emili, E., Coman, A., Foret, G., Dufour, G., Eremenko, M., Chailleux, Y., Beekmann, M., and Flaud, J.-M. (2017). Potential of multispectral synergism for observing ozone pollution by combining iasi-ng and uvns measurements from the eps-sg satellite. *Atmospheric Measurement Techniques*, 10(4) :1281–1298.
- Cuesta, J., Eremenko, M., Flamant, C., Dufour, G., Laurent, B., Bergametti, G., Höpfner, M., Orphal, J., and Zhou, D. (2015). Three-dimensional distribution of a major desert dust outbreak over east asia in march 2008 derived from iasi satellite observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 120(14) :7099–7127.
- De Paepe, B. and Dewitte, S. (2009). Dust aerosol optical depth retrieval over a desert surface using the seviri window channels. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, (4) :704–718.
- DeSouza-Machado, S. G., Strow, L. L., Imbiriba, B., McCann, K., Hoff, R. M., Hannon, S. E., Martins, J. V., Tanré, D., Deuzé, J. L., Ducos, F., and Torres, O. (2010). Infrared retrievals of dust using airs : Comparisons of optical depths and heights derived for a north african dust storm to other collocated eos a-train and surface observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D15) :1–15.
- Desroziers, G., Berre, L., Chapnik, B., and Poli, P. (2006). Diagnosis of observation, background and analysis-error statistics in observation space. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131(613) :3385–3396.
- Diner, D. J. (2001). MISR level 2 aerosol retrieval algorithm theoretical basis. Technical Report D11400, Jet Propul. Lab.
- Dirac, P. A. M. (1981). *The Principles of Quantum Mechanics*. International series of monographs on physics. Clarendon Press.
- Dragani, R. and McNally, A. (2013). Enhancing the impact of IASI observations through an updated observation-error covariance matrix. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 139(677) :2068–2080.
- Dufour, A., Amodei, M., Ancellet, G., and Peuch, V.-H. (2005). Observed and modelled “chemical weather” during escompte. *Atmospheric Research*, 74(1) :161–189.

- Dufour, G., Eremenko, M., Cuesta, J., Doche, C., Foret, G., Beekmann, M., Cheiney, A., Wang, Y., Cai, Z., Liu, Y., Takigawa, M., Kanaya, Y., and Flaud, J.-M. (2015). Springtime daily variations in lower-tropospheric ozone over east asia : the role of cyclonic activity and pollution as observed from space with iasi. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(18) :10839–10856.
- Dufour, G., Eremenko, M., Griesfeller, A., Barret, B., LeFlochmoën, E., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., and Hurtmans, D. (2012). Validation of three different scientific ozone products retrieved from iasi spectra using ozonesondes. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(3) :611–630.
- El Aabaribaoune, M., Emili, E., and Guidard, V. (2021). Estimation of the error covariance matrix for iasi radiances and its impact on the assimilation of ozone in a chemistry transport model. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(4) :2841–2856.
- El Amraoui, L., Attié, J.-L., Semane, N., Claeysman, M., Peuch, V.-H., Warner, J., Ricaud, P., Cammas, J.-P., Piacentini, A., Josse, B., Cariolle, D., Massart, S., and Bencherif, H. (2010). Midlatitude stratosphere ndash ; troposphere exchange as diagnosed by mls o₃ and mopitt co assimilated fields. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(5) :2175–2194.
- Emili, E., Barret, B., Le Flochmoën, E., and Cariolle, D. (2019). Comparison between the assimilation of iasi level 2 ozone retrievals and level 1 radiances in a chemical transport model. *Atmospheric Measurement Techniques*, 12(7) :3963–3984.
- Emili, E., Barret, B., Massart, S., Le Flochmoen, E., Piacentini, A., El Amraoui, L., Pannekoucke, O., and Cariolle, D. (2014). Combined assimilation of iasi and mls observations to constrain tropospheric and stratospheric ozone in a global chemical transport model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(1) :177–198.
- Emili, E. and El Aabaribaoune, M. (2021). Impact of infrared atmospheric sounding interferometer (iasi) thermal infrared measurements on global ozone reanalyses. *Geoscientific Model Development*, 14(10) :6291–6308.
- Eremenko, M., Dufour, G., Foret, G., Keim, C., Orphal, J., Beekmann, M., Bergametti, G., and Flaud, J.-M. (2008). Tropospheric ozone distributions over europe during the heat wave in july 2007 observed from infrared nadir spectra recorded by iasi. *Geophysical Research Letters*, 35(18).
- Froidevaux, L., Jiang, Y. B., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Browell, E. V., Hair, J. W., Avery, M. A., McGee, T. J., Twigg, L. W., Sunnicht, G. K., Jucks, K. W., Margitan, J. J., Sen, B., Stachnik, R. A., Toon, G. C., Bernath, P. F., Boone, C. D., Walker, K. A., Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Fuller, R. A., Manney, G. L., Schwartz, M. J., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Perun, V. S., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., and Wagner, P. A. (2008). Validation of Aura Microwave Limb Sounder stratospheric ozone measurements. *Journal of Geophysical Research*, pages 1–24.

- Fu, D., Kulawik, S. S., Miyazaki, K., Bowman, K. W., Worden, J. R., Eldering, A., Livesey, N. J., Teixeira, J., Irion, F. W., Herman, R. L., Osterman, G. B., Liu, X., Levelt, P. F., Thompson, A. M., and Luo, M. (2018). Retrievals of tropospheric ozone profiles from the synergism of airs and omi : methodology and validation. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(10) :5587–5605.
- Garand, L., Heilliette, S., and Buehner, M. (2007). Interchannel error correlation associated with airs radiance observations : Inference and impact in data assimilation. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 46(6) :714 – 725.
- Geer, A. J., Lahoz, W. A., Bekki, S., Bormann, N., Errera, Q., Eskes, H. J., Fonteyn, D., Jackson, D. R., Jukes, M. N., Massart, S., Peuch, V.-H., Rharmili, S., and Segers, A. (2006). The asset intercomparison of ozone analyses : method and first results. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(12) :5445–5474.
- Grogan, D. F. P., Lu, C.-H., Wei, S.-W., and Chen, S.-P. (2022). Investigating the impact of saharan dust aerosols on analyses and forecasts of african easterly waves by constraining aerosol effects in radiance data assimilation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(4) :2385–2398.
- Gupta, P., Levy, R. C., Mattoo, S., Remer, L. A., and Munchak, L. A. (2016). A surface reflectance scheme for retrieving aerosol optical depth over urban surfaces in modis dark target retrieval algorithm. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(7) :3293–3308.
- Guth, J., Josse, B., Marécal, V., Joly, M., and Hamer, P. (2016). First implementation of secondary inorganic aerosols in the mocage version r2.15.0 chemistry transport model. *Geoscientific Model Development*, 9(1) :137–160.
- Harris, B. A. and Kelly, G. (2001). A satellite radiance-bias correction scheme for data assimilation. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 127(574) :1453–1468.
- Hasekamp, O. P. and Landgraf, J. (2001). Ozone profile retrieval from backscattered ultraviolet radiances : The inverse problem solved by regularization. *J. Geophys. Res.*, 106(D8) :8077–8088.
- Holben, B. N., Eck, T. F., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J. P., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J. A., Kaufman, Y. J., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., and Smirnov, A. (1998). AERONET - A federated instrument network and data archive for aerosol characterization. *Remote Sensing of Environment*, 66(1) :1–16.
- Hsu, N. C., Tsay, S. C., King, M. D., and Herman, J. R. (2004). Aerosol properties over bright-reflecting source regions. *IEEE Trans. Geosci. Rem.Sens.*, 42(3) :557–569.
- Huang, Y., Zhu, B., Zhu, Z., Zhang, T., Gong, W., and Ji, Y. (2019). Evaluation and comparison of modis collection 6.1 and collection 6 dark target aerosol optical depth

- over mainland china under various conditions including spatiotemporal distribution, haze effects, and underlying surface. *Earth and Space Science*, 6(12) :2575–2592.
- Inness, A., Ades, M., a. A.-P. A., Barré, J., Benedictow, A., Blechschmidt, A.-M., Dominguez, J. J., Engelen, R., Eskes, H., Flemming, J., Huijnen, V., Jones, L., Kipling, Z., Massart, S., Parrington, M., Peuch, V.-H., Razinger, M., Remy, S., S. M., and Suttie, M. (2019). The cams reanalysis of atmospheric composition. *Atmos. Chem. Phys*, 19(3515) :3515–3556.
- Jiang, Y. B., Froidevaux, L., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Bojkov, B., Leblanc, T., McDermid, I. S., Godin-Beekmann, S., Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Fuller, R. A., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Perun, V. S., Schwartz, M. J., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., Wagner, P. A., Allaart, M., Andersen, S. B., Bodeker, G., Calpini, B., Claude, H., Coetzee, G., Davies, J., De Backer, H., Dier, H., Fujiwara, M., Johnson, B., Kelder, H., Leme, N. P., König-Langlo, G., Kyro, E., Laneve, G., Fook, L. S., Merrill, J., Morris, G., Newchurch, M., Oltmans, S., Parrondos, M. C., Posny, F., Schmidlin, F., Skrivankova, P., Stubi, R., Tarasick, D., Thompson, A., Thouret, V., Viatte, P., Vömel, H., von Der Gathen, P., Yela, M., and Zabolocki, G. (2007). Validation of aura microwave limb sounder ozone by ozonesonde and lidar measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D24) :D24S34.
- Josse, B., Simon, P., and Peuch, V. H. (2004). Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model mocage. *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, 56(4) :339–356.
- Kahn, R. A., Gaitley, B. J., Martonchik, J. V., Diner, D. J., Crean, K. A., and Holben, B. (2005). Multiangle imaging spectroradiometer (misr) global aerosol optical depth validation based on 2 years of coincident aerosol robotic network (aeronet) observations. *Journal of Geophysical Research D : Atmospheres*, 10(110) :1–16.
- Klüser, L., Martynenko, D., and Holzer-Popp, T. (2011). Thermal infrared remote sensing of mineral dust over land and ocean : A spectral SVD based retrieval approach for IASI. *Atmospheric Measurement Techniques*, 757(4) :757–773.
- Kok, J. F., Ridley, D. A., Zhou, Q., Miller, R. L., Zhao, C., Colette, L., Ward, D. S., Albani, S., and Haustein, K. (2017). Integrative analysis of desert dust size and abundance suggests less dust climate cooling. *Nat Geosci*, 10 :274–278.
- Lamarque, J. F., Shindell, D. T., Josse, B., Young, P. J., Cionni, I., Eyring, V., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Collins, W. J., Doherty, R., Dalsoren, S., Faluvegi, G., Folberth, G., Ghan, S. J., Horowitz, L. W., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Naik, V., Plummer, D., Righi, M., Rumbold, S. T., Schulz, M., Skeie, R. B., Stevenson, D. S., Strode, S., Sudo, K., Szopa, S., Voulgarakis, A., and Zeng, G. (2013). The atmospheric chemistry and climate model intercomparison project (accmip) : Overview and description of models, simulations and climate diagnostics. *Geoscientific Model Development*, 179(6) :179–206.

- Laurent, B., Marticorena, B., Bergametti, G., and Mei, F. (2006). Modeling mineral dust emissions from Chinese and Mongolian deserts. *Global and Planetary Change*, 52(1-4) :121–141.
- Leeuw, G. D., Kinne, S., J.-F. Léon, and J. Pelon, a. D. R. M. S., Veeffkind, P. J., Veihelmann, B., Winker, D., and Hoyningen-Huene., W. (2011). *The remote sensing of tropospheric composition from space :Retrieval of aerosol properties*. Physics of earth and space environment.
- Lefevre, G., Brasseur, I., Folkins, A., and Smith, K. (1994). Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter : Three-dimensional model simulations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D4) :8183–8195.
- Levelt, F., Van, H., Dobber, R., Malkki, A., Visser, H., DeVries, J., Stammes, P., Lundell, O., and Saari, H. (2006). The ozone monitoring instrument. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, (100) :1093–1100.
- Liu, C. and Nocedal, J. (1989). On the limited memory BFGS method for large scale optimization. *Mathematical Programming*, (45) :503–528.
- Liu, X., Bhartia, P. K., Chance, K., Froidevaux, L., Spurr, R. J. D., and Kurosu, T. P. (2010). Validation of ozone monitoring instrument (omi) ozone profiles and stratospheric ozone columns with microwave limb sounder (mls) measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, page 10.
- Liu, X., Chance, K., Sioris, C. E., Spurr, R. J. D., Kurosu, T. P., Martin, R. V., and Newchurch, M. J. (2005). Ozone profile and tropospheric ozone retrievals from the global ozone monitoring experiment : Algorithm description and validation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D20) :D20307.
- Liu, Z., Liu, Q., Lin, H. C., Schwartz, C. S., Lee, Y. H., and Wang, T. (2011). Three-dimensional variational assimilation of MODIS aerosol optical depth : Implementation and application to a dust storm over East Asia. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 166(D23) :1–19.
- Louis, J. F. (1979). A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere. *Boundary-Layer Meteorology*, (17) :187–202.
- LÖnnberg, P. and Hollingsworth, A. (1986). The statistical structure of short-range forecast errors as determined from radiosonde data part ii : The covariance of height and wind errors. *Tellus A : Dynamic Meteorology and Oceanography*, 38(2) :137–161.
- Mahowald, N. M., Engelstaedter, S., Luo, C., Sealy, A., Artaxo, P., Benitez-Nelson, C., Bonnet, S., Chen, Y., Chuang, P. Y., Cohen, D. D., Dulac, F., Herut, B., Johansen, A. M., Kubilay, N., Losno, R., Maenhaut, W., Paytan, A., Prospero, J. M., Shank, L. M., and Siefert, R. L. (2009). Atmospheric iron deposition : Global distribution, variability, and human perturbations. *Annual Review of Marine Science*, 1 :245–278.

- Mann, G. W., Carslaw, K. S., Reddington, C. L., Pringle, K. J., Schulz, M., Asmi, A., Spracklen, D. V., Ridley, D. A., Woodhouse, M. T., Lee, L. A., Zhang, K., Ghan, S. J., Easter, R. C., Liu, X., Stier, P., Lee, Y. H., Adams, P. J., Tost, H., Lelieveld, J., Bauer, S. E., Tsigaridis, K., van Noije, T. P. C., Strunk, A., Vignati, E., Bellouin, N., Dalvi, M., Johnson, C. E., Bergman, T., Kokkola, H., von Salzen, K., Yu, F., Luo, G., Petzold, A., Heintzenberg, J., Clarke, A., Ogren, J. A., Gras, J., Baltensperger, U., Kaminski, U., Jennings, S. G., O'Dowd, C. D., Harrison, R. M., Beddows, D. C. S., Kulmala, M., Viisanen, Y., Ulevicius, V., Mihalopoulos, N., Zdimal, V., Fiebig, M., Hansson, H.-C., Swietlicki, E., and Henzing, J. S. (2014). Intercomparison and evaluation of global aerosol microphysical properties among aerocom models of a range of complexity. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(9) :4679–4713.
- Marécal, V., Peuch, V. H., Andersson, C., Andersson, S., Arteta, J., Beekmann, M., Benedictow, A., Bergström, R., Bessagnet, B., Cansado, A., Chéroux, F., Colette, A., Coman, A., Curier, R. L., Van Der Gon, H. A., Drouin, A., Elbern, H., Emili, E., Engelen, R. J., Eskes, H. J., Foret, G., Friese, E., Gauss, M., Giannaros, C., Guth, J., Joly, M., Jaumouillé, E., Josse, B., Kadygrov, N., Kaiser, J. W., Krajsek, K., Kuenen, J., Kumar, U., Liora, N., Lopez, E., Malherbe, L., Martinez, I., Melas, D., Meleux, F., Menut, L., Moinat, P., Morales, T., Parmentier, J., Piacentini, A., Plu, M., Poupkou, A., Queguiner, S., Robertson, L., Rouil, L., Schaap, M., Segers, A., Sofiev, M., Tarasson, L., Thomas, M., Timmermans, R., Valdebenito, Van Velthoven, P., Van Versendaal, R., Vira, J., and Ung, A. (2015). A regional air quality forecasting system over europe : the macc-ii daily ensemble production. *Geoscientific Model Development*, 8(9) :2777–2813.
- Marenco, A., Thouret, V., Nédélec, P., Smit, H., Helten, M., Kley, D., Karcher, F., Simon, P., Law, K., Pyle, J., Poschmann, G., Von Wrede, R., Hume, C., and Cook, T. (1998). Measurement of ozone and water vapor by airbus in-service aircraft : The mozaic airborne program, an overview. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103(D19) :25631–25642.
- Mari, C., Jacob, D. J., and Bechtold, P. (2000). Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D17) :22255–22267.
- Marquis, J. W., Oyola, M. I., Campbell, J. R., Ruston, B. C., Córdoba-Jabonero, C., Cuevas, E., Lewis, J. R., Toth, T. D., and Zhang, J. (2021). Conceptualizing the impact of dust-contaminated infrared radiances on data assimilation for numerical weather prediction. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, pages 209–221.
- Martet, M., Peuch, V. H., Laurent, B., Marticorena, B., and Bergametti, G. (2009). Evaluation of long-range transport and deposition of desert dust with the CTM MOCAGE. *Tellus, Series B : Chemical and Physical Meteorology*, pages 449–463.
- Marticorena, B., Bergametti, G., Aumont, B., Callot, Y., N'Doumé, C., and Legrand, M.

- (1997). Modeling the atmospheric dust cycle : 2. simulation of saharan dust sources. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D4) :4387–4404.
- Massart, S., Cariolle, D., and Peuch, V.-H. (2005). Vers une meilleure représentation de la distribution et de la variabilité de l’ozone atmosphérique par l’assimilation des données satellitaires. *Comptes Rendus Geoscience*, 337(15) :1305–1310.
- Massart, S., Clerbaux, C., Cariolle, D., Piacentini, A., Turquety, S., and Hadji-Lazaro, J. (2009). First steps towards the assimilation of iasi ozone data into the mocage-palm system. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(14) :5073–5091.
- Matricardi, M. and Saunders, R. (1999). Fast radiative transfer model for simulation of infrared atmospheric sounding interferometer radiances. *Appl. Opt.*, 38(27) :5679–5691.
- McNally, A. P. and Watts, P. D. (2003). A cloud detection algorithm for high-spectral-resolution infrared sounders. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 129(595) :3411–3423.
- Mettig, N., Weber, M., Rozanov, A., Arosio, C., Burrows, J. P., Veefkind, P., Thompson, A. M., Querel, R., Leblanc, T., Godin-Beekmann, S., Kivi, R., and Tully, M. B. (2021). Ozone profile retrieval from nadir tropomi measurements in the uv range. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(9) :6057–6082.
- Michou, M., Laville, P., Serca, D., Fotiadi, A., Bouchou, P., and Peuch, V.-H. (2004). Measured and modeled dry deposition velocities over the escompte area. *Atmos. Res.*, 74(1-4) :89–116.
- Michou, M. and Peuch, V.-H. (2002). Surface exchanges in the mocage multiscale chemistry and transport model. *Water Res.*, 15(578-581) :173–203.
- Mirouze, I. (2010). *Régularisation de problèmes inverses à l’aide de l’équation de diffusion, avec application à l’assimilation variationnelle de données océaniques*. PhD thesis, Université Toulouse-III-Paul-Sabatier.
- Morgenstern, O., Hegglin, M., Rozanov, E., O’Connor, F., Luke Abraham, N., Akiyoshi, H., Archibald, A., Bekki, S., Butchart, N., Chipperfield, M., Deushi, M., Dhomse, S., Garcia, R., Hardiman, S., Horowitz, L., Jöckel, P., Josse, B., Kinnison, D., Lin, M., Mancini, E., Manyin, M., Marchand, M., Maréchal, V., Michou, M., Oman, L., Pitari, G., Plummer, D., Revell, L., Saint-Martin, D., Schofield, R., Stenke, A., Stone, K., Sudo, K., Tanaka, T., Tilmes, S., Yamashita, Y., Yoshida, K., and Zeng, G. (2017). Review of the global models used within phase 1 of the chemistry-climate model initiative (ccmi). *Geoscientific Model Development*, 10(2) :639–671.
- Munro, R., Lang, R., Klaes, D., Poli, G., Retscher, C., Lindstrot, R., Huckle, R., Lacan, A., Grzegorski, M., Holdak, A., Kokhanovsky, A., Livschitz, J., and Eisinger, M. (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.

- Nalli, N. R., Gambacorta, A., Liu, Q., Tan, C., I-S. F., Barnet, C. D., Joseph, E., Morris, V. R., Oyola, M., and Smith, J. W. (2018). Validation of atmospheric profile retrievals from the snpp noaa-unique combined atmospheric processing system. part 2 : Ozone., *Geosci. Remote Sens.*, 56(1) :598–607.
- Nerry, F., Labed, J., and Stoll, M.-P. (1988). Emissivity signatures in the thermal infrared band for remote sensing : calibration procedure and method of measurement. *Appl. Opt.*, 27(4) :758–764.
- Nho-Kim, E. Y., Michou, M., and Peuch, V. H. (2004). Parameterization of size-dependent particle dry deposition velocities for global modeling. *Atmospheric Environment*, 38(13) :1933–1942.
- Pajot, B. (2012). *Analyse et prévision de l’ozone issu d’une assimilation de données satellitaires à haute résolution*. PhD thesis.
- Pandis., J. H. and Seinfeld, N. (1998). Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change.
- Pannekoucke, O. and Massart, S. (2008). Estimation of the local diffusion tensor and normalization for heterogeneous correlation modelling using a diffusion equation. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 134(635) :1425–1438.
- Peiro, H., Emili, E., Cariolle, D., Barret, B., and Le Flochmoën, E. (2018). Multi-year assimilation of IASI and MLS ozone retrievals : Variability of tropospheric ozone over the tropics in response to ENSO. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(9) :6939–6958.
- Petzold, A., Thouret, V., Gerbig, C., Zahn, A., Brenninkmeijer, C. A. M., Gallagher, M., Hermann, M., Pontaud, M., Ziereis, H., Boulanger, D., Marshall, J., Nédélec, P., Smit, H. G. J., Friess, U., Flaud, J.-M., Wahner, A., Cammas, J.-P., Volz-Thomas, A., and TEAM, I. (2015). Global-scale atmosphere monitoring by in-service aircraft – current achievements and future prospects of the european research infrastructure iagos. *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, 67(1) :28452.
- Peyridieu, S., Chédin, A., Capelle, V., Tsamalis, C., Pierangelo, C., Armante, R., Crevoisier, C., Crépeau, L., Siméon, M., Ducos, F., and Scott, N. A. (2013). Characterisation of dust aerosols in the infrared from IASI and comparison with PARASOL, MODIS, MISR, CALIOP, and AERONET observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, pages 6065–6082.
- Peyridieu, S., Chédin, A., Tanré, D., Capelle, V., Pierangelo, C., Lamquin, N., and Armante, R. (2010). Saharan dust infrared optical depth and altitude retrieved from AIRS : A focus over North Atlantic-comparison to MODIS and CALIPSO. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(4) :1953–1967.

- Pierangelo, C., Chédin, A., Heilliette, S., Jacquinet-Husson, N., and Armante, R. (2004). Dust altitude and infrared optical depth from AIRS. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4(7) :1813–1822.
- Pierangelo, C., Mishchenko, M., Balkanski, Y., and Chédin, A. (2005). Retrieving the effective radius of Saharan dust coarse mode from AIRS. *Geophysical Research Letters*, 32(20) :1–4.
- Praga, A. (2015). *A large-scale atmospheric chemistry-transport model for massively parallel architectures*. PhD thesis.
- Prospero, J. M., Ginoux, P., Torres, O., Nicholson, S. E., and Gill, T. E. (2002). Environmental characterization of global sources of atmospheric soil dust identified with the nimbus 7 total ozone mapping spectrometer (toms) absorbing aerosol product. *Reviews of Geophysics*, 40(1) :2–1–2–31.
- Qaddouri, A., Girard, C., Husain, S. Z., and Aider, R. (2021). Implementation of a semi-lagrangian fully implicit time integration of the unified soundproof system of equations for numerical weather prediction. *Monthly Weather Review*, 149(6) :2011–2029.
- Remer, L. A., Kaufman, Y. J., Tanré, D., Mattoo, S., Chu, D. A., Martins, J. V., Li, R. R., Ichoku, C., Levy, R. C., Kleidman, R. G., Eck, T. F., Vermote, E., and Holben, B. N. (2005). The MODIS aerosol algorithm, products, and validation. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 62(4) :947–973.
- Rienecker, M. M., Suarez, M. J., Gelaro, R., Todling, R., Bacmeister, J., Liu, E., Bosilovich, M. G., Schubert, S. D., Takacs, L., Kim, G.-K., Bloom, S., Chen, J., Collins, D., Conaty, A., daSilva, A., Gu, W., Joiner, J., Koster, R. D., Lucchesi, R., Molod, A. M., Owens, T., Pawson, S., Pegion, P., Redder, C. R., Reichle, R., Robertson, F. R., Ruddick, A. G., Sienkiewicz, M., and Woollen, J. (2011). Merra : Nasa’s modern-era retrospective analysis for research and applications. *J. Climate*, page 3624–3648.
- Rochon, J. Y., L., G., Turner, and Polavarapu, S. (2007). Jacobian mapping between vertical coordinate systems in data assimilation. *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 1227 :496.
- Safieddine, S., Boynard, A., Coheur, P. F., Hurtmans, D., Pfister, G., Quennehen, B., Thomas, J. L., Raut, J. C., Law, K. S., Klimont, Z., Hadji-Lazaro, J., George, M., and Clerbaux, C. (2014). Summertime tropospheric ozone assessment over the Mediterranean region using the thermal infrared IASI/MetOp sounder and the WRF-Chem model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, pages 10119–10131.
- Saunders, R., Hocking, J., Turner, E., Rayer, P., Rundle, D., Brunel, P., Vidot, J., Roquet, P., Matricardi, M., Geer, A., Bormann, N., and Lupu, C. (2018). An update on the RTTOV fast radiative transfer model (currently at version 12). *Geoscientific Model Development*, 11(7) :2717–2737.

- Sayer, A. M., Hsu, N. C., Bettenhausen, C., and Jeong, M.-J. (2013). Validation and uncertainty estimates for modis collection 6 deep blue aerosol data. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118(14) :7864–7872.
- Sič, B., El Amraoui, L., Marécal, V., Josse, B., Arteta, J., Guth, J., Joly, M., and Hammer, P. D. (2015). Modelling of primary aerosols in the chemical transport model MOCAGE : Development and evaluation of aerosol physical parameterizations. *Geoscientific Model Development*, 8(2) :381–408.
- Sič, B., El Amraoui, L., Piacentini, A., Marécal, V., Emili, E., Cariolle, D., Prather, M., and Attié, J. L. (2016). Aerosol data assimilation in the chemical transport model MOCAGE during the TRAQA/ChArMEx campaign : Aerosol optical depth. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(11) :5535–5554.
- Sinyuk, A., Holben, B. N., A. Smirnov, T. F. E., Slutsker, I., J. Schafer, D., Giles, M., and Sorokin, M. (2008). Evaluation and comparison of modis collection 6.1 and collection 6 dark target aerosol optical depth over mainland china under various conditions including spatiotemporal distribution, haze effects, and underlying surface. *Earth and Space Science*, 6(12) :2575–2592.
- Slinn, W. G. (1982). Predictions for particle deposition to vegetative canopies. *Atmospheric Environment (1967)*, 16(7) :1785–1794.
- Smith, D. J., Jaffe, D. A., Birmele, M. N., Griffin, D. W., Schuerger, A. C., Hee, J., and Roberts, M. S. (2012). Free Tropospheric Transport of Microorganisms from Asia to North America. *Microbial Ecology*, pages 973–985.
- Sokolik, I. N. (2002). The spectral radiative signature of wind-blown mineral dust : Implications for remote sensing in the thermal ir region. *Geophysical Research Letters*, 29(24) :2–5.
- Sokolik, I. N. and Toon, O. B. (1996). Direct radiative forcing by anthropogenic airborne mineral aerosols. *Nature*, 381(6584) :681–683.
- Stocker, T., Qin, D., Plattner, G.-K., Tignor, M., Allen, S., Boschung, J., Nauels, A., Xia, Y., Bex, V., and Midgley, N. (2013). Ipcc. 2013. climate change 2013 : The physical science basis. contribution of working group i to the fifth assessment report of the intergovernmental panel on climate change. *Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA*, page 1535.
- Stockwell, W. R., Kirchner, F., Kuhn, M., and Seefeld, S. (1997). A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D22) :25847–25879.
- Su, X., Goloub, P., Chiapello, I., Chen, H., Ducos, F., and Li, Z. (2010). Aerosol variability over east asia as seen by polder space-borne sensors. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D24) :D24215.

- Tabcart, J. M., Dance, S. L., Lawless, A. S., Migliorini, S., Nichols, N. K., Smith, F., and Waller, J. A. (2020). The impact of using reconditioned correlated observation-error covariance matrices in the met office 1d-var system. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 146(728) :1372–1390.
- Textor, C., Schulz, M., Guibert, S., Kinne, S., Balkanski, Y., Bauer, S., Bernsten, T., Berglen, T., Boucher, O., Chin, M., Dentener, F., Diehl, T., Feichter, J., Fillmore, D., Ginoux, P., Gong, S., Grini, A., Hendricks, J., Horowitz, L., Huang, P., Isaksen, I. S., Iversen, T., Kloster, S., Koch, D., Kirkevåg, A., Kristjansson, J. E., Krol, M., Lauer, A., Lamarque, J. F., Liu, X., Montanaro, V., Myhre, G., Penner, J. E., Pitari, G., Reddy, M. S., Seland, Stier, P., Takemura, T., and Tie, X. (2007). The effect of harmonized emissions on aerosol properties in global models - An AeroCom experiment. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(17) :4489–4501.
- Teyssède, H., Michou, M., Clark, H. L., Josse, B., Karcher, F., Olivié, D., Peuch, V. H., Saint-Martin, D., Cariolle, D., Attié, J. L., Nédélec, P., Ricaud, P., Thouret, V., Van Der A, R. J., Volz-Thomas, A., and Chéroux, F. (2007a). A new tropospheric and stratospheric Chemistry and Transport Model MOCAGE-Climat for multi-year studies : Evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(22) :5815–5860.
- Teyssède, H., Michou, M., Clark, H. L., Josse, B., Karcher, F., Olivié, D., Peuch, V. H., Saint-Martin, D., Cariolle, D., Attié, J. L., Nédélec, P., Ricaud, P., Thouret, V., Van Der A, R. J., Volz-Thomas, A., and Chéroux, F. (2007b). A new tropospheric and stratospheric Chemistry and Transport Model MOCAGE-Climat for multi-year studies : Evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(22) :5815–5860.
- Torres, O., Bhartia, P. K., Herman, J. R., Sinyuk, A., Ginoux, P., and Holben, B. (2002). A long-term record of aerosol optical depth from TOMS observations and comparison to AERONET measurements. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59(3 PT 1) :398–413.
- Torres, O., Tanskanen, A., Veihelmann, B., Ahn, C., Braak, R., Bhartia, P. K., Veeffkind, P., and Levelt, P. (2007). Aerosols and surface uv products from ozone monitoring instrument observations : An overview. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D24) :D24S47.
- Usher, R., Michel, E., and Grassian, H. (2003). Reactions on Mineral Dust. *Chemical Reviews*, 12 :4883–4939.
- van Peet, J. C. A., van der A, R. J., Tuinder, O. N. E., Wolfram, E., Salvador, J., Levelt, P. F., and Kelder, H. M. (2014). Ozone profile retrieval algorithm (opera) for nadir-looking satellite instruments in the uv–vis. *Atmos. Meas. Tech.*, page 859–876.
- Vandenbussche, S., Kochenova, S., Vandaele, A. C., Kumps, N., and De Mazière, M. (2013). Retrieval of desert dust aerosol vertical profiles from IASI measurements in

- the TIR atmospheric window. *Atmospheric Measurement Techniques*, 6(10) :2577–2591.
- Ventress, L. J., McGarragh, G., Carboni, E., Smith, A. J., and Grainger, R. G. (2016). Retrieval of ash properties from IASI measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(11) :5407–5422.
- von Hoyningen-Huene, W., Kokhanovsky, A. A., Wuttke, M. W., Buchwitz, M., Noël, S., Gerilowski, K., Burrows, J. P., Latter, B., Siddans, R., and Kerridge, B. J. (2007). Validation of sciamachy top-of-atmosphere reflectance for aerosol remote sensing using meris ll data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(1) :97–106.
- Wainker, D. M., Tackett, J. L., Getzewich, B. J., Liu, Z., Vaughan, M. A., and Rogers, R. R. (2013). The global 3-d distribution of tropospheric aerosols as characterized by caliop. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(6) :3345–3361.
- Waller, J. A., Ballard, S. P., Dance, S. L., Kelly, G., Nichols, N. K., and Simonin, D. (2016). Diagnosing horizontal and inter-channel observation error correlations for sevir observations using observation-minus-background and observation-minus-analysis statistics. *Remote Sensing*, 8(7) :2072–4292.
- Wallis, S. G. (2001). A conservative semi-lagrangian transport model for rivers with transient storage zones. *Water Resources*, 37(12) :3321–3329.
- Waters, J. W., Froidevaux, L., Harwood, R. S., Jarnot, R. F., Pickett, H. M., Read, W. G., Siegel, P. H., Cofield, R. E., Filipiak, M. J., Flower, D. A., Holden, J. R., Lau, G. K., Livesey, N. J., Manney, G. L., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., Wu, D. L., Cuddy, D. T., Lay, R. R., Loo, M. S., Perun, V. S., Schwartz, M. J., Stek, P. C., Thurstans, R. P., Boyles, M. A., Chandra, K. M., Chavez, M. C., Chen, G. S., Chudasama, B. V., Dodge, R., Fuller, R. A., Girard, M. A., Jiang, J. H., Jiang, Y., Knosp, B. W., Labelle, R. C., Lam, J. C., Lee, K. A., Miller, D., Oswald, J. E., Patel, N. C., Pukala, D. M., Quintero, O., Scaff, D. M., Van Snyder, W., Tope, M. C., Wagner, P. A., and Walch, M. J. (2006). The earth observing system microwave limb sounder (eos mls) on the aura satellite. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44(5) :1075–1092.
- Weaver, A. and Courtier, P. (2001). Correlation modelling on the sphere using a generalized diffusion equation. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc*, 127(575) :1815–1846.
- Wesely, M. J. (1989). Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmos.-Environ.*, 23(6) :1293–1304.
- Wespes, C., Hurtmans, D., K Emmons, L., Safieddine, S., Clerbaux, C., Edwards, D. P., and Coheur, P. F. (2016). Ozone variability in the troposphere and the stratosphere from the first 6 years of IASI observations (2008-2013). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(9) :5721–5743.
- White, F. (1991). *Viscous fluid flow*. McGraw-Hill.

- Winker, D. M., Hunt, W. H., and McGill, M. J. (2007). Initial performance assessment of CALIOP. *Geophysical Research Letters*, pages 1–5.
- Worden, H. M., Logan, J. A., Worden, J. R., Beer, R., Bowman, K., Clough, S. A., Eldering, A., Fisher, B. M., Gunson, M. R., Herman, R. L., Kulawik, S. S., Lampel, M. C., Luo, M., Megretskaia, I. A., Osterman, G. B., and Shephard, M. W. (2007). Comparisons of tropospheric emission spectrometer (tes) ozone profiles to ozonesondes : Methods and initial results. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D3) :D03309.
- Wu, S., Mickley, L. J., Jacob, D. J., Logan, J. A., Yantosca, R. M., and Rind, D. (2007). Why are there large differences between models in global budgets of tropospheric ozone? *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D5) :D05302.
- Young, P. J., Archibald, A. T., Bowman, K. W., Lamarque, J.-F., Naik, V., Stevenson, D. S., Tilmes, S., Voulgarakis, A., Wild, O., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Cionni, I., Collins, W. J., Dalsøren, S. B., Doherty, R. M., Eyring, V., Faluvegi, G., Horowitz, L. W., Josse, B., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Plummer, D. A., Righi, M., Rumbold, S. T., Skeie, R. B., Shindell, D. T., Strode, S. A., Sudo, K., Szopa, S., and Zeng, G. (2013). Pre-industrial to end 21st century projections of tropospheric ozone from the atmospheric chemistry and climate model intercomparison project (accmip). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(4) :2063–2090.
- Yu, H., Chin, M., Bian, H., Yuan, T., Prospero, J. M., Omar, A. H., Remer, L. A., Winker, D. M., Yang, Y., Zhang, Y., and Zhang, Z. (2015). Quantification of trans-Atlantic dust transport from seven-year (2007-2013) record of CALIPSO lidar measurements. *Remote Sensing of Environment*, 159 :232–249.
- Yu, H., Chin, M., Winker, D. M., Omar, A. H., Liu, Z., Kittaka, C., and Diehl, T. (2010). Global view of aerosol vertical distributions from calipso lidar measurements and gocart simulations : Regional and seasonal variations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D4) :D00H30.
- Zhang, J., Reid, J. S., Westphal, D. L., Baker, N. L., and Hyer, E. J. (2008). A system for operational aerosol optical depth data assimilation over global oceans. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, pages 1–13.
- Zhao, T. L., Gong, S. L., Zhang, X. Y., Abdel-Mawgoud, A., and Shao, Y. P. (2006). An assessment of dust emission schemes in modeling east Asian dust storms. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 111(5) :1–11.
- Ziemke, J. R., Douglass, A. R., Oman, L. D., Strahan, S. E., and Duncan, B. N. (2015). Tropospheric ozone variability in the tropics from enso to mjo and shorter timescales. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(14) :8037–8049.