Analyse des simulations CCMI de MOCAGE

Alors que le premier volet de cette thèse concernait exclusivement l'analyse synthétique de la base de données d'observations IAGOS, le deuxième et dernier volet est dédié à l'utilisation de IAGOS sur l'intégralité de sa durée d'échantillonnage dans le but d'évaluer, sur les deux décennies de mesures, la simulation REF-C1SD issue du modèle MOCAGE (voir la sous-section 2.2.2). Dans notre cas, celle-ci est basée sur des champs météorologiques prélevés directement depuis la réanalyse ERA-Interim. Comme demandé dans l'exercice CCMI, les sorties de la simulation sont archivées en moyennes mensuelles de 1980 à 2010. Ce sont ces champs mensuels qui sont utilisés dans ce chapitre.

A défaut d'une méthode établie à cet effet, la base de données IAGOS est encore peu utilisée pour effectuer des comparaisons sur de longues durées, avec des sorties de modèles de résolution mensuelle, bien que son étendue temporelle et sa densité soient à présent suffisantes. Gaudel et al. (2015b) ont mené une comparaison de 2003 à 2010 entre IAGOS, la réanalyse MACC (*Monitoring Atmospheric Composition and Climate*) et des prévisions opérationnelles issues du modèle MACC afin d'évaluer l'apport de l'assimilation des mesures d'O₃ et de CO par satellites. Cependant, outre le fait qu'elle ne concerne que l'Europe, cette étude utilise des données instantanées, moyennant l'interpolation des mailles du modèle sur les trajectoires des avions. Au contraire, la stratégie que nous avons mise en place se base sur une résolution mensuelle afin de pouvoir apporter des diagnostics sur des simulations longues de type REF-C1SD.

Dans ce contexte, la deuxième partie de ce travail de thèse consiste à mettre en place un outil de comparaison adapté à des échelles de temps (multi-)décennales. Bien qu'il soit appliqué en premier lieu à MOCAGE, son utilisation pourrait être généralisée à tous les modèles participants de CCMI. Les données instantanées IAGOS étant résolues au kilomètre sur le plan horizontal et à la dizaine de mètres sur le plan vertical, elles ne sont pas comparables aux sorties mensuelles de MOCAGE, d'une résolution horizontale de 2° et d'une résolution verticale d'environ 800 mètres aux altitudes de croisière. Il est donc nécessaire de dégrader la résolution des observations pour qu'elle soit compatible avec celle de la grille du modèle. Pour ce faire, le premier travail de ce chapitre consiste à redistribuer les points d'observations sur la grille du modèle.

4.1 Redistribution des observations sur la grille du modèle

La base de données IAGOS se compose, entre autres, d'un ensemble de fichiers ASCII, chacun correspondant à une trajectoire de vol. Le but de ce travail réside, en premier lieu, dans la transformation de l'ensemble des données d'observations en moyennes mensuelles comme dans le chapitre précédent, mais cette fois sur la grille MOCAGE ($2^{\circ} \times 2^{\circ}$, et 47 niveaux verticaux s'étendant de la surface jusqu'à 5 hPa). Pour un point à un niveau vertical donné du modèle, nous considérerons la pression comme constante au cours de chaque mois, égale à sa moyenne mensuelle. Il faut donc garder à l'esprit que la pression alors associée à un niveau donné peut être différente des valeurs journalières.

Plusieurs méthodes sont envisageables en matière de répartition des données d'observations dans la grille du modèle. La plus simple se résumerait à associer chaque point de mesure à la maille dans laquelle il figure. Cela dit, elle ne tiendrait pas compte de l'excentricité des observations au sein d'une maille : même en bordure de maille, un point de mesure serait considéré comme étant au centre, permettant une erreur de 1° dans chaque direction horizontale, et d'environ 400 mètres sur l'axe vertical. Afin d'éviter cet artefact, nous avons opté pour la répartition de chaque point de mesure sur toutes les mailles adjacentes, en tenant compte de son excen-

tricité par le biais d'une pondération spatiale. Pour une observation donnée, le poids associé à chaque point de grille décroît alors linéairement avec la distance entre le point de mesure et le centre de la maille. Les pas de longitude et de latitude décrivent des angles suffisamment faibles pour considérer qu'à l'échelle d'une maille, il y ait une relation linéaire entre distances et coordonnées sphériques.

Dans les expressions mathématiques suivantes, chaque maille est définie par les indices (i, j, k) se référant à la longitude, la latitude et l'altitude, soit aux coordonnées sphériques. Une illustration en deux dimensions est proposée en figure 4.1. En quatre étapes, pour un point de mesure quelconque, elle résume le calcul des poids sur les mailles adjacentes en fonction de sa position. En notant $\Delta \phi$, $\Delta \theta$ et $\Delta z_{i,j,k}$ les dimensions des mailles à un niveau vertical k > 2 donné, la maille correspondante est repérée par le vecteur $\vec{r}_{i,j,k}$, dont nous simplifierons l'expression par ses coordonnées de longitude, latitude et d'altitude : $\vec{r}_{i,j,k} \sim (\phi_i, \theta_j, z_{i,j,k})$ définies par :

$$\phi_i = (i-1)\Delta\phi + \phi_1$$
$$\theta_i = (i-1)\Delta\theta + \theta_1$$

Dans ces expressions, longitude et latitude d'origine valent respectivement $\phi_1 = -179^\circ$ et $\theta_1 = -89^\circ$. Suivant les deux directions horizontales, les mailles sont séparées par un intervalle angulaire constant $\Delta \phi = 2^\circ$ et $\Delta \theta = 2^\circ$. La projection du vecteur $\vec{r}_{i,j,k}$ sur le plan horizontal correspond au centre de la maille (i, j). Sur l'axe vertical, la projection de $\vec{r}_{i,j,k}$ se situe sur les niveaux de pression hybride pleins, convertis en altitude. Ils sont séparés par un intervalle de hauteur $\Delta z_{i,j,k} = z_{i,j,k-1} - z_{i,j,k}$ variant avec le relief et l'altitude.

Par convention, pour une position horizontale (i, j), dans cette configuration à 47 niveaux, le vecteur $\vec{r}_{i,j,k=1}$ pointe à ~ 5 hPa, définissant la maille allant de 0 à ~ 14 hPa. Au niveau du sol, le point $\vec{r}_{i,j,k=47}$ est situé à 1011 hPa en moyenne, définissant la maille entre le sol et $\Delta P_{k=47} \simeq$ 5 hPa au-dessus.

Le long d'une trajectoire aérienne, chaque mesure est définie par l'indice n et localisée à la position $\vec{r_n} \sim (\phi, \theta, z)$. Pour tout point $\vec{r_n}$, il s'agit de repérer la première maille au sudouest, en dessous, à laquelle nous attribuons les indices de mailles (i, j, k). L'observation à la position $\vec{r_n}$ est ensuite distribuée sur les huit mailles les plus proches, repérées par les indices $(\{i, i+1\}, \{j, j+1\}, \{k, k+1\}).$

La valeur mesurée $X(\vec{r_n})$ est alors extrapolée comme suit : trois coefficients $(\alpha, \beta, \gamma) \in [0, 1]^3$ sont définis tels :

$$\alpha = \left| \frac{\phi - \phi_i}{\Delta \phi} \right|$$
$$\beta = \left| \frac{\theta - \theta_j}{\Delta \theta} \right|$$
$$\gamma = \left| \frac{z - z_{i,j,k}}{\Delta z_{i,j,k}} \right|$$

Les facteurs α , β et γ croissent linéairement en fonction de la distance par rapport au point de grille (i, j, k). Définissons les indices $(I, J, K) \in \{i, i+1\} \times \{j, j+1\} \times \{k, k+1\}$ pour pouvoir désigner l'une des huit mailles adjacentes au point de mesure. Afin de calculer les coefficients de pondération, on définit alors trois fonctions f_I , g_J et h_K sur la longitude, la latitude et l'altitude. Rappelons que ces fonctions sont propres à l'observation donnée, et qu'il faut les redéfinir pour chaque point de mesure. Elles sont définies telles :

$$f_{I=i}(\vec{r}_n) = 1 - \alpha$$
$$f_{I=i+1}(\vec{r}_n) = \alpha$$
$$g_{J=j}(\vec{r}_n) = 1 - \beta$$
$$g_{J=j+1}(\vec{r}_n) = \beta$$
$$h_{K=k}(\vec{r}_n) = 1 - \gamma$$
$$h_{K=k+1}(\vec{r}_n) = \gamma$$

On en déduit le coefficient de pondération en trois dimensions par le produit :

$$\forall (I, J, K) \in \{i, i+1\} \times \{j, j+1\} \times \{k, k+1\}, W_{I,J,K}(\vec{r_n}) = f_I(\vec{r_n}) \cdot g_J(\vec{r_n}) \cdot h_K(\vec{r_n})$$
(4.1)



FIGURE 4.1 – Schéma illustrant la méthode d'extrapolation d'un point de mesure sur une portion de la grille du modèle, simplifié au cas bidimensionnel. (a) Sur une portion de la grille du modèle, on dispose d'une mesure en ozone indiquant la valeur $C_{obs}(O_3)$. (b) L'algorithme retrouve les quatre mailles les plus proches du point de mesure. Dans la notation qui suit, on note (i, j) les indices de la première maille inférieure gauche par rapport à la mesure. Les mailles les plus proches sont alors définies par les indices $(I, J) \in \{(i, j), (i, j+1), (i+1, j), (i+1, j+1)\}$. (c) A partir de la position du point de mesure, on déduit un coefficient α en longitude et β en latitude correspondant aux projetés respectifs de la position du point de mesure par rapport au centre de la maille (i, j). Ces projections sont ramenées à une échelle de 0 à 1, relative à la dimension des mailles. (d) Le poids dans chacune des mailles environnantes est calculé à partir de l'équation (4.1). Comme l'indiquent les couleurs, il est systématiquement maximal dans la maille du point de mesure.

A présent, en notant N la quantité de mesures prélevées au voisinage direct de la maille

(i, j, k), on en déduit la valeur moyenne pondérée de la grandeur X par l'expression :

$$X_{i,j,k} = \frac{\sum_{n=1}^{N} W_{i,j,k}(\vec{r_n}) \cdot X(\vec{r_n})}{\sum_{n=1}^{N} W_{i,j,k}(\vec{r_n})}$$
(4.2)

La somme des poids, en dénominateur dans cette équation, équivaut finalement au nombre de données récoltées sur la maille (i, j, k):

$$N_{i,j,k} = \sum_{n=1}^{N} W_{i,j,k}(\vec{r_n})$$
(4.3)

Le but principal de la redistribution des données IAGOS, présenté au-dessus, est de pouvoir comparer directement celles-ci aux données REF-C1SD de MOCAGE, maille par maille. Il s'agit donc de disposer de deux jeux de données équivalents en matière d'échantillonnage spatial et temporel, un pour IAGOS et un pour MOCAGE. Par conséquent, les mailles considérées comme non échantillonnées par les observations (avec un nombre équivalent de données $N_{i,j,k}$ inférieur à 1) ne sont pas prises en compte dans le modèle. Nous conservons toutefois une copie non modifiée du jeu de données MOCAGE pour tester ultérieurement la robustesse de l'échantillonnage au sein d'une région. Par ailleurs, afin d'identifier l'impact de l'évolution des émissions telles que paramétrées dans REF-C1SD, nous présenterons les résultats d'une autre simulation auxiliaire nommée SEN-C1SD, dans laquelle les émissions de précurseurs d'ozone depuis la surface sont gardées constantes, aux valeurs de 1980. Pour une meilleure facilité de lecture, nous proposons de renommer les différents jeux de données, de sorte que IAGOS-HR et IAGOS-DM désignent respectivement les données IAGOS à haute résolution et celles distribuées sur la grille du modèle, et que MOCAGE-M et MOCAGE-NM correspondent au jeu de données MOCAGE modifié (suppression des mailles non échantillonnées dans IAGOS-DM) et au jeu de données MOCAGE non modifié. Enfin, MOCAGE-EF est similaire à MOCAGE-M mais correspond au jeu de données issu de la simulation SEN-C1SD, c'est-à-dire aux émissions fixées depuis 1980.

4.2 Comparaison IAGOS – MOCAGE

4.2.1 Cartes de climatologie en O₃ et CO

Les climatologies saisonnières présentées dans Cohen et al. (2018) (chapitre 3) ont été calculées de décembre 1994 à novembre 2013 pour l'ozone et de décembre 2001 à novembre 2013 pour le CO. La période août – novembre 1994 et le mois de décembre 2013 ont été mis de côté, afin de travailler sur des durées d'échantillonnage indépendantes de la saison. Il en sera de même dans ce chapitre.

Dans Cohen et al. (2018), ces climatologies saisonnières avaient été mises en place en moyennant les données quasi instantanées sur l'intégralité de la période de mesures, sans avoir calculé de moyennes mensuelles au préalable. A présent, les jeux de données dont nous disposons sont constitués de moyennes mensuelles. Afin de pouvoir correspondre le plus possible aux cartes de climatologies issues des données quasi instantanées, les moyennes temporelles sont réalisées en appliquant une pondération sur la quantité mensuelle de données. Plus précisément, fixons une maille définie par les indices (i, j, k). Soit $\mu_{i,j,k,l}$ la valeur moyenne d'une grandeur physico-chimique quelconque au cours du $l^{\text{ème}}$ mois. Pour une saison donnée $(s \in \{\text{DJF}, \text{MAM}, \text{JJA}, \text{SON}\})$, notons I_s l'ensemble des indices correspondant aux mois de cette saison (*e.g.* pour l'hiver, il s'agira de tous les mois de décembre, janvier et février). En tenant compte du nombre équivalent de données mensuel $N_{i,j,k,l}$, on calcule une moyenne climatologique saisonnière locale $\overline{\mu}_{i,j,k}^s$ en procédant à une intégration sur l'ensemble de la période, à travers la relation suivante :

$$\bar{\mu}_{i,j,k}^{s} = \frac{\sum_{l \in I_{s}} \mu_{i,j,k,l} \cdot N_{i,j,k,l}}{\sum_{l \in I_{s}} N_{i,j,k,l}}$$
(4.4)

Dans le cas d'une moyenne annuelle $\bar{\mu}_{i,j,k}$, l'équation 4.4 se simplifie par :

$$\bar{\mu}_{i,j,k} = \frac{\sum_{l=1}^{N_m} \mu_{i,j,k,l} \cdot N_{i,j,k,l}}{\sum_{l=1}^{N_m} N_{i,j,k,l}}$$
(4.5)

où N_m désigne le nombre de mois sur lesquels s'est effectuée l'intégration. En appliquant cette

méthode de calcul, on recherche une meilleure cohérence entre le traitement des observations interpolées sur la grille du modèle, et celui des observations quasi instantanées (Cohen et al., 2018).

Pour une maille de $5^{\circ} \times 5^{\circ}$ dans une couche donnée (UT ou LS), une moyenne temporelle avec IAGOS–HR n'était calculée que si la quantité de points de mesures atteignait 2000 pour l'O₃ et 1000 pour le CO, ce dernier ayant une série temporelle d'observations environ deux fois moins longue que l'O₃. Les seuils concernant les quantités de données requises doivent alors être ajustés au volume des mailles. Sur le plan horizontal, la transition d'un pas de 5° à un pas de 2° impose de diviser les anciens seuils par un facteur 2.5×2.5 . Sur l'axe vertical, il s'agit d'estimer l'épaisseur d'une couche en termes de mailles. Pour ce faire, il est supposé que les 6 niveaux de modèle traités (22–27) sont intégralement distribués entre les deux couches (UT et LS), l'une autant que l'autre. Approximativement, cela revient à considérer une maille du modèle trois fois plus petite qu'une couche quelconque de l'UTLS, sur sa dimension verticale. En somme, il s'agit de diviser les anciens seuils de données requises par le rapport de volume des mailles, soit un facteur $2.5 \times 2.5 \times 3 = 18.75$. Les nouveaux seuils sont alors de 106 données mensuelles requises par point de grille du modèle pour l'ozone et 53 pour le CO pour la totalité de la période d'observations, à chaque saison. Les climatologies annuelles sont ensuite calculées à partir de moyennes entre les quatre climatologies saisonnières.

Le niveau d'échantillonnage dans la base de données IAGOS dépend fortement du niveau vertical du modèle. Aux moyennes latitudes, la gamme d'altitude la plus échantillonnée se situe aux niveaux de croisière, compris entre 165 hPa et 300 hPa. En moyenne, il correspond essentiellement aux niveaux de modèle 23 jusqu'à 26. Il atteint le niveau 22 très occasionnellement, et aucune mesure n'est effectuée au-dessus. Le niveau 27 est systématiquement sondé, mais la répartition géographique des données aéroportées se restreint essentiellement au seul voisinage des aéroports desservis. C'est pourquoi les figures 4.2 et 4.3 ne montrent que les cartes de climatologie sur les niveaux 23 à 26 inclus. On peut y noter un niveau d'échantillonnage des données de croisière comportant des irrégularités géographiques notables, de la quasi-absence de mesures sur le Pacifique jusqu'à l'échantillonnage extrêmement dense sur le corridor nord-atlantique et les régions environnantes. La quantité d'observations dans une région donnée varie

au fil des mois, aussi bien que la répartition géographique des données. Enfin, nous noterons la discontinuité des mesures au-dessus du Groenland, dont l'élévation du terrain (point culminant à 3700 m) se répercute sur les niveaux de pression hybride. Les altitudes correspondant aux niveaux 23 et 24 au-dessus de l'océan sont alors associées aux niveaux 26 ou 27 au-dessus de l'île. C'est pourquoi, géographiquement, les rapports de mélange en ozone et en CO changent brutalement au passage de cette zone, pour un même niveau de pression hybride.

La première étape de la comparaison entre IAGOS–DM et MOCAGE–M est dédiée aux moyennes climatologiques annuelles, en figures 4.2 et 4.3. En raison de la variabilité saisonnière de la hauteur de la tropopause, induite par la saisonnalité des courants jets aux moyennes latitudes et de la configuration des ondes de Rossby, les valeurs moyennes ainsi déduites ne sont pas spécifiquement représentatives de l'UT ou de la LS. Dans notre contexte, elles ne sont qu'un outil de comparaison, ne permettant pas d'analyser les deux couches séparément.

De manière générale, on observe une bonne cohérence entre IAGOS–DM et MOCAGE–M sur l'O₃ et le CO : à tous les niveaux, on retrouve les mêmes grandes structures. Aux tropiques et subtropiques (30° S – 30° N), les quantités d'O₃ sont semblables entre le modèle et les observations. D'après les deux jeux de données, pour tout niveau vertical, les plus faibles valeurs se trouvent au-dessus de l'est de l'océan Indien. Concernant l'ozone et le CO, la distribution présente les mêmes maxima et minima. Pour l'ozone, les minima sont situés de part et d'autre du Pacifique équatorial, en lien avec les faibles quantités d'ozone lors des saisons humides. Les maxima sont situés au nord-est du Canada. Le rapport de mélange en ozone est sous-estimé aux moyennes latitudes de l'hémisphère Nord dans les niveaux 26 – 24 et semblable dans les deux jeux de données pour le niveau 23. Le rapport de mélange en CO est généralement surestimé par le modèle, surtout en Asie de l'Est et en Inde.



FIGURE 4.2 – Distribution horizontale moyenne du rapport de mélange en O₃ (ppb), du niveau de pression 23 (cartes en haut de figure, ≈ 200 hPa) au niveau 26 (cartes en bas de figure, ≈ 320 hPa), dans MOCAGE–M (colonne de gauche) et IAGOS–DM (colonne de droite) pendant la période 1995 – 2013.



FIGURE 4.3 – Distribution horizontale moyenne du rapport de mélange en CO (ppb), du niveau de pression 23 (cartes en haut de figure, ≈ 200 hPa) au niveau 26 (cartes en bas de figure, ≈ 320 hPa), dans MOCAGE–M (colonne de gauche) et IAGOS–DM (colonne de droite) pendant la période 2002 – 2013.

Pour les deux espèces, des biais importants sont co-localisés à l'ouest de la Scandinavie. Ils sont marqués par de très faibles quantités d'ozone observées aux niveaux 23 et 24, et de fortes quantités de CO au niveau 24 (les données sur ce gaz étant insuffisantes au niveau 23). Ces différences correspondent à des aires très faiblement échantillonnées par IAGOS sur la période totale, pouvant expliquer l'absence de ce signal dans les données MOCAGE.

Pour une analyse plus détaillée, les cartes de climatologies saisonnières sont proposées dans les figures A.1-A.8 en annexe A. Parmi celles-ci, les figures A.1, A.2, A.3 et A.4 présentent les moyennes saisonnières du rapport de mélange en ozone, calculées à partir de l'équation 4.4. De manière générale, la variabilité horizontale est bien reproduite par MOCAGE. Le biais, que l'on définit par le résultat de la soustraction des valeurs observées aux valeurs simulées, est positif en hiver et négatif durant le reste de l'année. Le niveau L=23 montre un faible biais au printemps et en automne, ainsi que les latitudes en deçà de 45° N pendant toutes les saisons, hiver exclu. De même, les figures A.5, A.6, A.7 and A.8 présentent les moyennes saisonnières du rapport de mélange en CO. Pour cette espèce également, le modèle reproduit correctement les variations horizontales. On retrouve notamment le déplacement saisonnier des maxima de feux de savane autour de l'Afrique équatoriale, le transport de polluants au nord du Pacifique (mer de Béring), et un surplus de CO au-dessus de l'Asie de l'Est et l'Asie du Sud. En hiver et au printemps, le biais en CO, défini de la même façon que pour l'O₃, est positif aux moyennes et hautes latitudes, et négatif aux basses latitudes. En été, on observe surtout un biais positif en Asie du Sud et en Asie de l'Est, ainsi qu'un biais négatif sur l'Atlantique Nord et sur l'Indonésie. En automne, on retrouve un biais négatif aux basses latitudes. Les moyennes latitudes y sont caractérisées par un biais positif en Amérique du Nord et négatif en Eurasie.

4.2.2 Profils verticaux régionaux

La variabilité verticale dans l'UTLS est abordée de façon plus précise dans cette section, d'abord de façon qualitative, puis d'un point de vue plus statistique. Le nombre de niveaux de modèle étant peu élevé, il convient de réitérer l'interpolation sur une nouvelle grille verticale plus fine. Chaque maille du modèle comprise entre les niveaux 22 et 27 est alors redistribuée suivant sa pression mensuelle moyenne, avec une résolution de 10 hPa. Tandis que plusieurs jeux de données sont contraints de calculer des valeurs moyennes sur de grandes régions pour s'assurer un échantillon de données assez élevé (par exemple, les campagnes de mesures aéroportées, ou les données CARIBIC), l'étude de Cohen et al. (2018) a tiré profit de la forte densité des mesures IAGOS en définissant des régions plus petites. Leur position et leurs dimensions étaient choisies de façon à englober un échantillon de données suffisamment élevé pour des calculs statistiques robustes, tout en recherchant une faible variabilité géographique en ozone et en CO à l'intérieur. Afin d'assurer la cohérence sur les critères de comparaison entre les résultats issus de IAGOS–HR (Cohen et al., 2018) et ceux issus de IAGOS–DM, nous choisissons d'établir les profils verticaux sur des régions semblables à celles définies dans Cohen et al. (2018). Etant donné que la grille du modèle ne contient que des longitudes et latitudes paires, la seule différence avec les régions de Cohen et al. (2018) est un agrandissement éventuel de 1°, pour les cas où les frontières figurent sur une coordonnée impaire. N'utilisant que MOCAGE–M dans cette sous-section, il peut s'avérer utile de rappeler que les moyennes et autres métriques calculées à partir des sorties du modèle ne sont calculées qu'à partir des mailles de MOCAGE non vides dans IAGOS–DM.



O₃ ANN

FIGURE 4.4 – Boîtes à moustache de l'ozone mesuré (noir) et modélisé (rouge) au cours de l'année, organisées en profils verticaux. Les barres inférieures représentent le centile 5, et les supérieures, le centile 95. Les limites d'une "boîte" correspondent aux centiles 25 et 75. Pour chaque intervalle de pression, la valeur moyenne du rapport de mélange est représentée par un point jaune pour les observations, bleu pour la simulation. L'histogramme bleu correspond au nombre de données d'observations représentées par le diagramme moustache. Il est tracé en échelle logarithmique et ses valeurs sont reportées sur l'axe des abscisses supérieur.

Les figures 4.4 et 4.5 représentent les profils verticaux des rapports de mélange d'O₃ et de CO, sans distinction des saisons. Par souci de concision, les profils verticaux saisonniers ont été placés en annexe B. Chaque boîte à moustache synthétise la distribution statistique des rapports de mélange sur les mailles mensuelles correspondant à l'intervalle de pression fixé, complétée par l'information sur la quantité d'observations prises en compte. Notons que, quelle que soit la saison, l'échantillonnage au-dessus de l'Atlantique Nord (NAt) semble très discrétisé en matière de niveaux de pression, contrastant avec la distribution verticale continue de l'échantillonnage dans les autres régions.

D'après la figure 4.4, les moyennes annuelles du rapport de mélange d'ozone montrent une bonne corrélation entre modèle et observations. On note une surestimation par le modèle dans les niveaux inférieurs et supérieurs des profils verticaux, dans la quasi-totalité des régions. Dans les niveaux inférieurs, les biais positifs sont caractérisés par une surestimation sur la moitié des mailles prises en compte (celles comprises entre les centiles 25 et 75). Dans les plus hauts niveaux, les distributions présentent davantage de points communs entre modèle et observations : leurs centiles supérieurs (75 et 95) sont relativement bien reproduits par la simulation, le biais moyen positif provenant alors essentiellement de la surestimation des centiles inférieurs (5 et 25). Les deux gammes d'altitude que nous venons de mentionner sont séparées par une zone de biais légèrement négatif. En Sibérie (Sib) seulement, on dénote un biais négatif non négligeable dans la majorité des niveaux inférieurs (en dessous du niveau à 200 hPa), accompagné du biais positif systématique dans les hautes altitudes.

En annexe B, les figures B.1 à B.4 représentent les diagrammes à moustache saisonniers du rapport de mélange en ozone. La valeur moyenne est préférentiellement surestimée par le modèle en hiver (figure B.1) et en automne (figure B.4), tandis qu'elle est souvent sous-estimée en été (figure B.3). Au printemps (figure B.2), on distingue des biais positifs dans les bas niveaux (négligeable en Sibérie), négatifs dans les niveaux intermédiaires à supérieurs, et négligeables dans les niveaux supérieurs.

La figure 4.5 représente les diagrammes à moustache du monoxyde de carbone annuel. Les valeurs moyennes sont surestimées par le modèle dans la grande majorité des niveaux verticaux sur les deux régions américaines, sur l'Atlantique Nord et sur l'Asie du Nord-Est (NEAs). Elles

sont sous-estimées par le modèle dans la grande majorité des niveaux verticaux sur l'Europe, l'ouest du Bassin Méditerranéen (WMed) et en Sibérie. Au Moyen-Orient (MidE), la moyenne est sous-estimée dans les bas niveaux et surestimée à partir de 240 hPa, jusqu'à être faiblement biaisée (à 5 ppb près) au-dessus de 200 hPa.

Egalement, en annexe B, les figures B.5 à B.8 représentent les diagrammes à moustache saisonniers du rapport de mélange en CO. En hiver et au printemps (figures B.5 et B.6), le biais du rapport de mélange moyen en CO est généralement positif. Il est en grande partie négatif en été, sauf au Moyen-Orient et en Asie du Nord-Est. Ce diagnostic est mitigé en automne : le biais est positif sur les deux régions nord-américaines et le nord-est asiatique, et négatif sur les deux régions européennes, le Moyen-Orient et la Sibérie.



FIGURE 4.5 – De même que la figure 4.4 pour le CO.

De manière générale, la variabilité interne à chaque niveau de pression est toujours, en

moyenne annuelle, sous-estimée par le modèle. Ce résultat demeure prévisible et provient de la différence fondamentale entre observations et modélisation. Les observations ont l'avantage de pouvoir enregistrer des valeurs extrêmes que l'on ne retrouve qu'à des petites échelles, au sein de panaches. Les moyennes calculées à partir d'observations peuvent être fortement in-fluencées par ces extrema. Les modèles, en revanche, ne peuvent générer qu'une concentration moyenne sur une maille donnée. Pour un modèle, les panaches pris en compte y sont alors di-lués, limitant l'impact des fortes émissions locales sur les rapports de mélange et, de ce fait, rendant impossible la simulation de valeurs extrêmes locales.

Enfin, les figures 4.6 et 4.7 synthétisent la comparaison entre modèle et observations, en matière de profils verticaux. Chaque barre est calculée en tant que médiane le long de l'axe vertical, à partir des diagrammes à moustache issus des figures précédentes. Plus exactement, ils sont calculés à partir des biais entre modèle et observations déduits des diagrammes précédents : chaque barre synthétise les biais médians (par rapport à l'axe vertical) des quartiles 1, 2 et 3 (soient les centiles 25, 50 et 75), respectivement en bleu, noir et rouge. Pour chaque niveau de pression, ces biais sont normalisés par rapport à la médiane observée. Pour une espèce X donnée, à chaque intervalle de pression (représenté par une pression de référence P), ils sont calculés *via* l'égalité suivante :

$$\delta Q(X,P) = \frac{Q_{mod}(X,P) - Q_{obs}(X,P)}{med_{obs}(X,P)}$$
(4.6)

où Q(X, P) désigne le quartile 1 (centile 25), 2 (médiane, ou centile 50) ou 3 (centile 75), et $med_{obs}(X, P)$ la médiane propre aux observations. Il a été choisi de normaliser les profils verticaux de biais en divisant par le profil vertical médian des observations, afin d'affranchir les résultats des gradients chimiques verticaux. Par ce moyen, les histogrammes proposés en figures 4.6 et 4.7 ont une sensibilité comparable aux biais des hautes et des basses altitudes. Un biais en ozone stratosphérique ne dominera donc pas le signal, bien qu'il soit préférentiellement plus élevé qu'un biais en ozone troposphérique. Par ailleurs, la normalisation des biais de ces trois quartiles par rapport à une même valeur de référence (ici, la médiane) a été préférée à une normalisation par rapport aux quartiles eux-mêmes (équivalente à des calculs de biais relatifs), afin de pouvoir les comparer entre eux. De ce fait, un biais constant sur la majeure partie d'une distribution sera plus visible. La normalisation pouvant également s'effectuer par rapport à la valeur moyenne de la distribution étudiée, l'adoption de la médiane comme valeur de référence est motivée par sa moins forte dépendance aux extrema de cette distribution.

En données annuelles, le rapport de mélange médian en ozone tend à être surestimé par le modèle face aux observations, principalement sur le Bassin ouest-méditerranéen ($\simeq 20 \%$), ainsi que sur l'ouest de l'Amérique du Nord (WNAm), l'Europe et le nord-est asiatique ($\simeq 10 \%$). Ce biais positif annuel médian est caractéristique de l'hiver (entre 10 et 35 % parmi toutes les régions) et de l'automne (entre 10 et 20 %, Atlantique Nord et Sibérie exclus). Indépendamment de la saison, il se caractérise par une surestimation systématique des faibles valeurs (centile 25), supérieure au biais dans les fortes valeurs (centile 75), exceptée l'Asie du Nord-Est. En été, en revanche, il est systématiquement négatif, allant de -5 % sur le Bassin Méditerranéen à -30 % en Sibérie. Durant cette saison, il est caractérisé par un centile 75 d'autant plus sous-estimé.

Les biais en CO exposés en figure 4.7 présentent une plus forte variabilité inter-régionale. En moyenne, dans l'année, le CO est surestimé par le modèle principalement à l'ouest de l'Amérique du Nord, à l'est des Etats-Unis (EUS) et au nord-est asiatique (médiane proche de 10 %), caractéristique que l'on retrouve surtout en hiver et au printemps. Il est sous-estimé en Sibérie (médiane proche de -10 %) à travers le centile 75 en été et en automne. En hiver et au printemps, le centile 25 tend à être surestimé dans la majorité des régions. En été et en automne, c'est le centile 75 qui est préférentiellement sous-estimé, ces constats ne s'appliquant pas au nord-est asiatique.



FIGURE 4.6 – Histogrammes représentant la médiane, calculée parmi les niveaux de pression, du biais en O_3 entre le modèle et les observations pour les centiles 25 (bleu), 50 (noir) et 75 (rouge). Pour chaque niveau vertical, le biais d'une métrique est normalisé à la médiane des valeurs observées. Les quatre premiers graphiques correspondent chacun à une saison, et le dernier aux données annuelles sans distinction des saisons. Les niveaux verticaux ne sont pris en compte que s'ils sont représentés par un mimimum de 100 données.



FIGURE 4.7 – De même que la figure 4.6 pour le CO. Les niveaux verticaux ne sont pris en compte que s'ils sont représentés par un mimimum de 50 données.

4.2.3 Etude de l'UT / la LS

De la même façon que dans le chapitre précédent, une étude a été réalisée sur l'UT et la LS. Le travail présenté ci-dessous se base sur des moyennes régionales calculées séparément dans la haute troposphère et la basse stratosphère, cette fois à partir du jeu de données IAGOS–DM. La démarche est semblable à celle suivie dans Cohen et al. (2018) : avec IAGOS–HR, nous analysons d'abord les cycles saisonniers suivis, puis les séries temporelles, pour enfin clore le chapitre par une discussion sur l'applicabilité de la méthode aux calculs de tendances. Dans cette partie, nous appliquons un filtre de 3 données minimum IAGOS–DM par maille et par mois, afin de s'assurer de la représentativité du jeu de données sans trop réduire les échantillons. A l'instar des étapes précédentes, les calculs suivants se basent sur les mêmes mailles entre IAGOS–DM et IAGOS–HR rendant compte des biais induits par la projection des observations sur la grille du modèle, suivie de la comparaison entre IAGOS–DM et MOCAGE–M.

4.2.3.1 Séparation UT/LS

Pour chaque maille entre les niveaux 23 et 27 inclus, à l'instar de la méthode utilisée dans Cohen et al. (2018), l'appartenance à l'UT ou à la LS est déterminée par la valeur du tourbillon potentiel (PV). Dans le cas présent, à la fois pour les observations et pour les simulations, le PV est disponible uniquement en moyennes mensuelles, et calculé depuis les champs météorologiques du modèle, donc d'ERA-Interim. Au cours d'un mois donné, la maille est considérée dans l'UT si son PV moyen ne dépasse pas 2 PVU, et dans la LS s'il est supérieur à 3 PVU. Les mailles dont le PV est compris entre 2 et 3 PVU sont considérées comme appartenant à la zone de transition de part et d'autre de la tropopause, et ne figurent dans aucune des deux couches. Afin d'essayer de définir une UT bien distincte de cette zone de transition, le niveau de modèle directement en dessous de l'isosurface à 2 PVU n'est également pas pris en compte dans l'UT. Ces valeurs limites ont été choisies après avoir testé la sensibilité des cycles saisonniers à la limite supérieure de l'UT, et à la limite inférieure de la LS. Une UT plafonnée à 1.5 PVU est faiblement échantillonnée dans l'Atlantique Nord et la Sibérie. A l'inverse, une UT limitée à 2.5 PVU n'affiche pas de maximum estival en O₃ dans IAGOS–DM. Concernant la LS, avec un seuil à 2.5 PVU, le maximum printanier en O_3 n'apparaît pas distinctement dans IAGOS–DM, contrairement au cas d'un seuil à 3 PVU. Cette méthode de tri présente des incertitudes liées au fait d'utiliser un PV moyen qui lisse la variabilité naturelle de l'altitude de la tropopause et, par conséquent, de l'UT et de la LS. Dans le jeu IAGOS–DM, on s'attend donc à avoir un peu de mélange résiduel des deux couches entre elles pour chaque maille identifiée UT ou LS. Ce mélange artificiel pourrait être limité davantage en élargissant la zone de transition définie dans ce paragraphe, mais les données de croisière étant réparties sur cinq niveaux de modèle seulement, cela causerait un filtrage de données trop important.

Pour une région donnée, la moyenne mensuelle d'un constituant au sein de l'UT (respectivement, de la LS) est alors calculée à partir de toutes les mailles identifiées comme UT (respectivement, LS). En supplément au filtre imposé d'un minimum de 3 données par maille et par mois dans IAGOS–DM, et de la même façon que dans Cohen et al. (2018), les statistiques au sein d'une région et d'une couche données ne sont réalisées que si le nombre total d'observations atteint un seuil de 300. Une différence entre IAGOS–HR et IAGOS–DM réside dans le traitement des moyennes mensuelles : dans IAGOS–HR, outre le seuil de 300 données, une moyenne mensuelle était considérée comme valide si la première et la dernière mesures étaient enregistrées avec un écart d'au moins une semaine. Cette condition n'étant pas applicable dans le cas de IAGOS–DM, il est possible que l'espérance (estimation de la valeur moyenne) calculée dans chaque maille soit un peu biaisée par rapport à la valeur moyenne réelle, malgré la condition d'un nombre équivalent de données supérieur à 3. Au contraire, une moyenne calculée depuis l'une des simulations de MOCAGE sera automatiquement représentative du mois entier.

4.2.3.2 Comparaison IAGOS-HR et IAGOS-DM

4.2.3.2.a Cycles saisonniers

Comme précédemment, l'étude des cycles saisonniers reprend le protocole suivi dans Cohen et al. (2018). Ils sont calculés à partir des années comptant au moins 7 mois de données d'observations valides, répartis sur au moins 3 saisons. Ce filtre permet d'éviter les biais dus à un échantillonnage inégal au cours d'une année. La figure 4.8 présente les cycles saisonniers de l'ozone d'après IAGOS–HR (Cohen et al., 2018, figure 6, (a) et (g)) et IAGOS–DM. Les données IAGOS-DM y montrent un maximum estival entre 90 et 105 ppb dans l'UT, un maximum printanier entre 250 et 350 ppb dans la LS, avec un minimum entre 110 et 160 ppb en automne. Les données IAGOS-HR, fortes de leur haute résolution, situent les maxima estivaux de l'UT entre 80 et 90 ppb, les maxima printaniers de la LS entre 350 et 450 ppb, et les minima d'automne de la LS entre 150 et 200 ppb. La résolution du modèle (donc de IAGOS-DM) permettant un tri des masses d'air moins précis qu'avec IAGOS-HR, les valeurs moyennes calculées ici ont pour effet d'atténuer les différences entre troposphère et stratosphère. Elle entraîne donc une hausse des quantités d'ozone troposphérique et une baisse des quantités d'ozone stratosphérique par rapport aux résultats de l'analyse de IAGOS-HR. De plus, elle ne permet pas de mettre en évidence les faibles quantités estivales dans l'UT à l'ouest de l'Amérique du Nord, ni dans la LS du Moyen-Orient (Cohen et al., 2018). Certes, dans cette dernière, l'influence de la troposphère subtropicale est visible, mais à la différence des résultats issus de IAGOS-HR, elle ne dépasse pas celle des autres régions du Sud (l'est des Etats-Unis, l'ouest du Bassin Méditerranéen, et le nord-est asiatique). En été également, dans IAGOS-DM, on retrouve des quantités d'ozone particulièrement élevées dans l'UT méditerranéenne et du Moyen-Orient comme dans IAGOS-HR, en lien avec la subsidence plus forte dans ces régions. Enfin, le signal dans l'UT est généralement plus bruité qu'avec les données à haute résolution, probablement du fait d'un échantillon limité par la résolution mensuelle. A défaut d'une résolution temporelle plus précise dans les sorties de modèle, il faudrait une période d'observations plus longue pour permettre de lisser les cycles dans l'UT.

La figure 4.9 présente les cycles saisonniers du CO d'après les deux jeux d'observations. Dans l'UT, IAGOS–HR et IAGOS–DM montrent un maximum printanier respectivement entre 112 et 140 ppb, et entre 104 et 128 ppb, ainsi qu'un minimum entre 78 (\pm 1) et 91 (\pm 2) ppb en automne dans les deux jeux de données. Les cycles montrent des cohérences entre IAGOS–HR et IAGOS–DM, au vu du maximum de CO qui se prolonge jusqu'en juillet au-dessus de l'Asie du Nord-Est, des fortes valeurs de CO à l'ouest de l'Amérique du Nord, et des faibles valeurs sur les deux régions en bordure méditerranéenne. Dans la LS, seules trois régions ont un cycle saisonnier visible d'après IAGOS–DM : l'est des Etats-Unis, la Sibérie et le Nord-Est asiatique, en contraste avec IAGOS–HR dont seuls le Moyen-Orient et le Nord-Est asiatique ont un cycle



FIGURE 4.8 – Cycles saisonniers de l'ozone d'après IAGOS–HR (à gauche) et IAGOS–DM (à droite) dans l'UT (en bas) et la LS (en haut) dans les huit régions d'étude, entre janvier 1995 et décembre 2013. Le nombre d'années prises en compte dans l'établissement des cycles de IAGOS–DM dans l'UT est précisé dans la légende.



FIGURE 4.9 – De même que la figure 4.8, pour le CO, de janvier 2002 à décembre 2013.

significatif. Au vu de l'ensemble des deux couches, il est à noter que, d'après IAGOS–DM et contrairement à IAGOS–HR, l'impact des feux de Sibérie du mois de juillet n'est pas visible dans l'UT mais dans la LS. Celle-ci est donc potentiellement trop influencée par la troposphère dans le nouveau jeu de données, malgré l'application d'une zone de transition.

4.2.3.2.b Séries temporelles

Les séries temporelles de l'ozone dans l'UT sont proposées en figure 4.10. Les anomalies négatives en début de période (jusqu'en 1997) sont visibles dans les deux courbes. Les anomalies positives de fin de période (à partir de 2011) se retrouvent systématiquement dans les deux jeux de données, sauf en Atlantique Nord et au Moyen-Orient, où ils n'apparaissent pas dans IAGOS–DM. L'anomalie positive de 1998, liée à l'événement extrême El Niño de l'hiver 1997, est visible aux Etats-Unis de l'Est et au Moyen-Orient dans les deux jeux de données. Le jeu



Upper tropospheric O₃

FIGURE 4.10 – Séries temporelles mensuelles de l'O₃ dans l'UT. La courbe noire correspond à IAGOS–DM et la courbe grise à IAGOS–HR (Cohen et al., 2018, figure B1). Au-dessus de chaque graphique sont précisés respectivement : la moyenne annuelle du cycle saisonnier selon IAGOS–HR, celle calculée depuis IAGOS–DM et le coefficient de corrélation de Pearson entre leurs deux séries temporelles.



Lower stratospheric O₃

FIGURE 4.11 – De même que la figure 4.10, dans la LS.



Upper tropospheric CO

FIGURE 4.12 – De même que la figure 4.10, pour le CO.



Lower stratospheric CO

FIGURE 4.13 – De même que la figure 4.10, pour le CO dans la LS.

de données IAGOS–DM ne permet pas de mettre en avant cette anomalie en Méditerranée de l'Ouest, en Sibérie, ou en Asie du Nord-Est. Les moyennes annuelles affichées au-dessus des graphiques quantifient le biais induit par la distribution des observations sur la grille à +13 ppb, en moyenne sur toutes les régions. La corrélation entre les deux jeux de données dépend des régions : elle est comprise entre 0.48 en Sibérie et 0.78 en Europe. Notons que l'échantillonnage au nord-ouest américain et en Atlantique Nord n'est pas suffisant pour établir des statistiques robustes sur toute la période d'observations.

Dans la LS (figure 4.11), les anomalies négatives en début de période, mentionnées précédemment, sont visibles à l'est des Etats-Unis, en Europe, dans l'ouest méditerranéen et en Sibérie dans les deux jeux d'observations. Le biais moyen de IAGOS–DM est de -70 ppb. Les séries temporelles sont davantage dégradées sur l'ouest de l'Amérique du Nord et sur les deux régions en bordure méditerranéenne (r $\simeq 0.5$) où la tropopause est relativement haute, et où l'influence de la troposphère est donc plus importante. Inversement, la variabilité du signal est moins dégradée dans les deux régions les plus au nord (Atlantique Nord et Sibérie), où la tropopause est plus basse et, de ce fait, où le mélange avec la troposphère a moins d'impact.

Les séries temporelles du CO dans l'UT sont proposées en figure 4.12. Comme pour la figure 4.10, la série temporelle en Atlantique Nord n'est pas suffisamment dense pour être prise en compte dans ce paragraphe. Les biais moyens demeurent faibles dans la plupart des régions, ne dépassant les -5 ppb (nord-ouest américain) que sur le nord-est asiatique (-8 ppb). Les corrélations entre les deux séries temporelles sont comprises entre 0.72 en Sibérie (0.73 au nord-est asiatique) et 0.94 en Europe. Les séries temporelles du CO dans l'UT sont donc moins dégradées par le mélange avec la LS que celles de l'ozone. Les deux courbes indiquent une décroissance depuis 2008 dans les trois régions du secteur Atlantique, potentiellement en lien avec la crise économique de cette époque. L'impact des feux de forêts canadiennes en 2007 est visible à travers les deux jeux d'observations dans l'est des Etats-Unis, en Europe et dans l'ouest du Bassin Méditerranéen. En revanche, en contraste avec IAGOS–HR, le jeu de données IAGOS–DM ne fait transparaître les feux de Sibérie de l'été 2003 ni en Sibérie, ni en Asie du Nord-Est. La non-visibilité de certains de ces événements de feux de biomasse dans l'UT est probablement liée à l'attribution des mailles impactées par les panaches à la zone de transition

plutôt qu'à l'UT. Cela peut expliquer la corrélation moins élevée dans les deux régions estasiatiques.

Enfin, le CO dans la LS est présenté en figure 4.13. Le biais annuel moyen varie entre +12 ppb (Moyen-Orient) et +18 ppb (Atlantique Nord). Les coefficients de Pearson montrent une corrélation quasi nulle dans la majorité des régions (de $-0.25 \ge 0.19$), à l'exception de l'Atlantique Nord, de l'Europe et du nord-est asiatique (0.44–0.55). La perte d'information par rapport à IAGOS–HR est donc relativement importante. On dénote toutefois quelques points communs, incluant la décroissance de CO soulignée dans l'UT. De même, les feux de forêts canadiennes de 2007 sont, comme dans l'UT, reconnaissables de par les forts rapports de mélange mesurés en Europe et dans l'ouest du Bassin Méditerranéen. En revanche, ils ne sont visibles dans la LS sur le nord-ouest américain que d'après IAGOS–DM, tout comme les feux de forêts sibériennes en 2003 sur le nord-est asiatique, où le rapport de mélange s'élève jusqu'à des valeurs extrêmes (130 ppb). Cela confirme l'influence de la troposphère sur la LS inhérente à la résolution verticale, malgré la présence d'une zone de transition.

4.2.3.3 Comparaison IAGOS–DM et simulations

4.2.3.3.a Cycles saisonniers

Dans la figure 4.14, les cycles saisonniers de l'ozone d'après MOCAGE–M montrent un maximum printanier dans l'UT entre 120 et 145 ppb, et un minimum en automne entre 72 et 82 ppb. Ce cycle de type basse stratosphère entraîne une surestimation de l'ozone en hiver et au printemps, un biais plus faible voire négatif en été, puis un biais positif en automne. Cette différence pouvait provenir du fait que le critère dynamique (tropopause à 2 PVU) utilisé ici n'était pas adapté aux champs chimiques de REF-C1SD. Nous avons donc investigué la possibilité de lui substituer un critère basé sur la chimie du modèle, en recherchant une gamme d'altitude où le cycle saisonnier de l'ozone atteint son maximum en été. En prolongeant les profils verticaux saisonniers de l'ozone montrés dans les figures B.1–B.4 jusqu'à 520 hPa (non montré dans ce manuscrit), nous avons trouvé que le maximum printanier était produit par MOCAGE à ces niveaux de pression. Ce test a montré que le cycle de type LS pour l'ozone provenait de la chimie de MOCAGE plutôt que de la méthode de sélection des données de l'UT.



FIGURE 4.14 – Cycles saisonniers de l'ozone vus par IAGOS–DM (à gauche) et MOCAGE–M (à droite) dans l'UT (en bas) et la LS (en haut) dans les huit régions d'étude, entre janvier 1995 et décembre 2013. Le nombre d'années prises en compte dans l'établissement de ces cycles dans l'UT est précisé dans la légende.



FIGURE 4.15 – De même que la figure 4.14, pour le CO, de janvier 2002 à décembre 2013.

Notons que ce schéma a connu des modifications récentes, ultérieures à la réalisation de REF-C1SD. Sur d'autres simulations de MOCAGE, elles ont permis de corriger une partie des biais en O₃ dans l'UT. Sur la figure 4.14, la variabilité inter-régionale est plus faible que dans les observations, en cohérence avec les cartes de climatologies montrées en figures 4.2, 4.3 et A.1– A.8. Cette différence était néanmoins prévisible car inhérente à la définition d'un modèle, pour lequel seules des concentrations moyennes spatiales sont simulées dans chaque maille. Cela ne permet pas de prendre en compte l'influence des valeurs extrêmes locales (et de courte durée) que l'on peut, en revanche, retrouver dans les observations IAGOS–DM. Enfin, le fait que les deux régions les plus au nord (ouest de l'Amérique du Nord, et Sibérie, en excluant l'Atlantique Nord) montrent un maximum printanier plus marqué suggère une surestimation par MOCAGE de l'influence stratosphérique sur l'UT.

Dans la LS, le cycle de l'ozone du modèle est généralement en phase avec IAGOS–DM, avec des maxima de février à avril et des minima avancés d'un mois par rapport aux observations, c'est-à-dire d'août en octobre. Les maxima printaniers s'étendent entre 228 et 320 ppb, soit un biais entre -18 et +1 % relativement aux observations. Les minima sont compris entre 107 et 135 ppb, soit une sous-estimation de -4 à -17 % parmi toutes les régions, hormis celles en bordure méditerranéenne (ouest méditerranéen et Moyen-Orient, en tracé vert). Pendant le maximum printanier, le comportement des régions les unes par rapport aux autres est similaire entre le modèle et les observations. En classant les régions d'après leur rapport de mélange durant cette saison, on obtient le même ordre d'un jeu de données à l'autre, à la seule exception de l'Asie du Nord-Est. Un autre point commun réside dans la dichotomie entre régions du Nord et régions du Sud en été. Le cas particulier de l'Est des Etats-Unis (cyan), tantôt figurant parmi les régions du Nord au printemps, tantôt celles du Sud en été, est bien reproduit par le modèle. De façon moins marquée, on retrouve une caractéristique semblable pour le Nord-Est asiatique.

Les études mettant en œuvre la chimie de MOCAGE à l'échelle globale et sur le long terme ne sont pas nombreuses. Deux comparaisons ont été effectuées dans le cadre de l'ancien programme ACCMIP, sur les champs d'ozone. Concernant MOCAGE, d'importantes différences sont à prévoir entre la simulation soumise à ACCMIP et REF-C1SD : la simulation soumise à ACCMIP était issue d'une version antérieure de MOCAGE par rapport à REF-C1SD, et ACC- MIP demandait un protocole de simulation différent de celui de CCMI. Nous pouvons cependant noter une certaine cohérence avec les résultats de ces études. En effet, le biais positif de MOCAGE en ozone, pour les moyennes latitudes de l'hémisphère Nord, est également rapporté dans l'étude de Young et al. (2013), où les modèles participant à ACCMIP ont été comparés avec une climatologie de la colonne d'ozone troposphérique par la combinaison des instruments OMI et MLS, établie dans Ziemke et al. (2011) d'octobre 2004 à décembre 2010. En moyenne géographique, MOCAGE a montré un biais de +5.9 DU pour une colonne moyenne de 40.0 DU. Dans le cadre de la même activité, Bowman et al. (2013) ont comparé les rapports de mélange en ozone entre les modèles participants et les observations TES, sur la période 2005–2010. Comme le montre leur figure 2, en moyennes zonales, MOCAGE présente un biais négatif en ozone dans la stratosphère, et positif dans la troposphère extratropicale de l'hémisphère Nord.

Enfin, les cycles saisonniers du CO calculés depuis MOCAGE–M sont présentés en figure 4.15, en comparaison avec ceux de IAGOS–DM. Dans l'UT, les maxima du modèle ont généralement lieu en février–mars, affichant donc un décalage d'un mois (voire deux) avant les observations, et les minima ont lieu d'août en octobre, en phase avec les observations. Ces maxima s'étendent entre 104 et 153 ppb, affichant des biais positifs et négatifs par rapport à IAGOS–DM (entre -10 et +20 %). Les valeurs minimales sont comprises entre 71 et 86 ppb (Nord-Est asiatique exclu), de manière semblable aux observations (77–89 ppb), avec un biais entre -17 et +3 %. IAGOS–DM et MOCAGE–M représentent communément de plus grandes quantités de CO à l'ouest de l'Amérique du Nord et au Nord-Est asiatique par rapport aux autres régions, avec de fortes valeurs estivales au Nord-Est asiatique. Dans la LS, contrairement aux observations, le CO suit un cycle saisonnier significatif dans la majorité des régions. Les maxima de mars–avril sont compris entre 76 et 91 ppb. Celui du Nord-Est asiatique, à 83 ± 1 ppb, se prolonge sur tout l'été. Celui de Sibérie en LS, dû aux feux de forêts boréales de juillet, n'est pas représenté par la simulation.

4.2.3.3.b Evolution des émissions de surface

L'aspect climatologique ayant été traité, il reste à évaluer la capacité du modèle à reproduire, au travers de REF-C1SD, l'évolution temporelle des constituants chimiques échantillonnés. Afin de donner des éléments de compréhension pour l'étude des séries temporelles de MOCAGE–M, nous présentons les données d'émissions des deux principaux précurseurs d'ozone (CO et NO_x), telles qu'utilisées dans la simulation, et qui nous serviront pour l'analyse des résultats.

La distribution des émissions de surface est présentée dans les figures 4.16 et 4.17 pour le CO et les NO_x , précisant son évolution de 1980 à 2010 d'une décennie à l'autre. Dans la simulation, les émissions sont définies tous les dix ans à partir des inventaires imposés par CCMI. La série temporelle des émissions est alors complétée par interpolation linéaire le long de chaque décennie. Pour ces deux précurseurs d'ozone, la distinction est faite entre émissions anthropiques et émissions depuis la combustion de biomasse. Les émissions anthropiques de CO ont diminué dans les régions occidentales les plus polluantes (Amérique du Nord, Europe) et au Japon, et augmenté en Inde, ainsi qu'à l'est de la Chine (particulièrement autour de la Plaine Nord de la Chine). Il en est de même pour les oxydes d'azote. Ces deux espèces ont donc vu leurs émissions anthropiques se décaler vers l'Est et le Sud asiatiques. Les feux de biomasse de l'Amérique du Nord ont aussi diminué depuis 1980, et augmenté en Sibérie et en Asie du Nord-Est. L'Asie du Sud-Est, quant à elle, a vu ses émissions diminuer entre le début et la fin de la période d'étude. On s'attend donc à ce que le modèle reproduise une décroissance du CO, au moins pour les régions en aval de l'Amérique du Nord et de l'Europe (est des Etats-Unis, Atlantique Nord, Europe, Méditerranée, Moyen-Orient).

Notons que mentionner une tendance régionale dans des émissions de feux de biomasse (comme il a été fait dans Jiang et al. (2017)) n'est pas pertinent géophysiquement, parce qu'elles varient fortement d'année en année, et de façon non linéaire. Dans notre cas, les émissions sont interpolées linéairement tous les dix ans : elles sont donc représentées en suivant des tendances décennales. Contrairement à IAGOS, le modèle ne bénéficiera pas d'émissions variant fortement d'une année à l'autre. Ainsi, une anomalie dans le rapport de mélange en CO ou en O_3 ne peut provenir d'une anomalie des émissions. En revanche, elle peut être due à une anomalie liée au champ météorologique ou à la chimie.



FIGURE 4.16 – Emissions de CO (en 10^{-9} mol.m⁻².s⁻¹) telles que configurées pour CCMI pendant les années 1980, 1990, 2000 et 2010 (de haut en bas) par la combustion de biomasse par GFED (gauche) et par les activités humaines d'après MACCity (droite).



FIGURE 4.17 – Emissions de NO_x (en 10^{-9} mol.m⁻².s⁻¹) telles que configurées pour CCMI pendant les années 1980, 1990, 2000 et 2010 (de haut en bas) par la combustion de biomasse par GFED (gauche) et par les activités humaines d'après MACCity (droite).

4.2.3.3.c Séries temporelles

Les séries temporelles de l'ozone dans l'UT sont proposées en figure 4.18. Pour évaluer la représentativité du jeu de données IAGOS-DM, nous avons aussi calculé une série temporelle sur l'intégralité des mailles de modèle dans chaque région, c'est-à-dire indépendamment de leur échantillonnage spatial par IAGOS. Par opposition à MOCAGE-M, elle est notée MOCAGE-NM. De même qu'au cours du chapitre précédent, le terme d'anomalie désigne la différence entre une moyenne mensuelle et le cycle saisonnier au cours du même mois. Les anomalies négatives en début de période (jusqu'à 1997) ne sont pas visibles dans MOCAGE-M. Les anomalies positives observées en fin de période (à partir de 2011) ne se retrouvent que dans l'est des Etats-Unis pour MOCAGE-M. L'anomalie positive de 1998, liée à l'événement extrême El Niño de l'hiver 1997, est visible aux Etats-Unis de l'Est et au Moyen-Orient dans les observations. Le modèle montre une forte anomalie positive en 1999, hormis dans l'Atlantique Nord et l'Asie du Nord-Est. Les valeurs indiquées au-dessus des graphes correspondent aux moyennes annuelles respectivement pour IAGOS-DM et pour MOCAGE-M. Elles confirment le biais positif rapporté dans le paragraphe précédent, entre 20 et 30 ppb. Les coefficients de corrélation se situent entre 0.35 et 0.41 dans les cinq régions les plus échantillonnées dans l'UT, malgré le décalage des cycles saisonniers entre modèle et observations. Dans toutes les régions sauf en Asie du Nord-Est, les deux courbes en rouge, correspondant à MOCAGE-M pour le trait plein et à MOCAGE-NM pour le trait tireté, montrent une différence négligeable sur sept des huit régions. Elles traduisent donc une bonne représentativité de l'échantillonnage de l'UT par IAGOS dans ces régions. Le cas particulier concerne le nord-est asiatique où les mailles non échantillonnées, comparées aux autres, sont drastiquement moins riches en ozone au cours du printemps, saison maximisant le rapport de mélange de ce gaz selon MOCAGE. Comparée à la plupart des autres régions, celle-ci est plus étendue sur les latitudes. Sa moitié Sud est parfois subtropicale (soit des quantités d'ozone plus typiques de la troposphère libre que de la haute troposphère) et nettement moins échantillonnée, ce qui offre une explication possible au biais positif lié à l'échantillonnage.

La comparaison entre MOCAGE–M et MOCAGE–EF (courbes rouge et bleue) révèle des différences au maximum printanier, surtout en fin de période. La seule exception reste l'Asie

du Nord-Est, où l'évolution des émissions telle que paramétrée dans REF-C1SD cause une augmentation des minima d'ozone en automne, dans l'UT. Ces différences sont cohérentes avec la diminution des émissions de précurseurs d'ozone par rapport à MOCAGE–EF, dans les moyennes latitudes.

Les séries temporelles de l'ozone en LS sont disponibles dans la figure 4.19. On retrouve les anomalies négatives en début de période mentionnées précédemment, à l'est des Etats-Unis, en Europe et en Sibérie dans la simulation. Le biais négatif moyen se situe aux alentours des 20 ppb, soit moins de 10 % du rapport de mélange moyen observé. La corrélation entre MOCAGE-M et IAGOS–DM est très élevée, à raison d'un coefficient de Pearson r entre 0.6 dans l'ouest de l'Amérique du Nord et 0.85 à l'est des Etats-Unis, et aux alentours de 0.75 dans quatre autres régions. La simulation permet donc d'expliquer au moins 50 % de la variabilité du signal dans ces cinq dernières régions ($r^2 > 0.5$). En comparant les deux courbes relatives à REF-C1SD, on constate peu de différences sur toutes les régions sauf l'ouest de l'Amérique du Nord et la Sibérie, suggérant des données IAGOS-DM représentatives de l'intégralité de la LS. Le biais induit par l'échantillonnage devient significatif exclusivement lors du pic printanier sur le nord-ouest américain et en Sibérie, atteignant les -50 ppb. Ces cas de biais négatifs importants ont donc lieu dans deux des trois régions nordiques où la tropopause est plus basse et où, par conséquent, les niveaux supérieurs du modèle sont particulièrement riches en ozone. De ce fait, les mailles non échantillonnées des niveaux supérieurs du modèle ont un impact plus élevé sur les valeurs moyennes calculées, et peuvent expliquer ces différences (MOCAGE-M/MOCAGE-NM) liées à la distribution spatiale des observations au sein de ces régions. L'Atlantique Nord n'est pas concernée par cette constatation probablement car elle contient peu de mailles non échantillonnées, étant une région relativement petite et extrêmement riche en données d'observations.

La comparaison entre MOCAGE–M et MOCAGE–EF résulte en des maxima printaniers d'ozone plus élevés lorsque l'on conserve les émissions de précurseurs de 1980. De façon similaire à l'UT, les différences augmentent dans le temps, comme les différences entre les émissions de MOCAGE–M et MOCAGE–EF. Les autres saisons sont peu impactées par leur évolution dans la simulation.



Upper tropospheric O₃

FIGURE 4.18 – Séries temporelles mensuelles de l' O_3 dans l'UT. La courbe noire correspond à IAGOS–DM. La courbe rouge en trait plein représente MOCAGE–M, celle en trait tireté, MOCAGE–NM et celle en bleu, MOCAGE–EF. Au-dessus de chaque graphique sont précisés respectivement : la moyenne annuelle d'après IAGOS–DM, celle calculée depuis MOCAGE–M et le coefficient de corrélation de Pearson entre leurs deux séries temporelles.

Dans le cas du CO, précisons que les anomalies calculées depuis REF-C1SD peuvent provenir des anomalies dans les processus de transport (les champs météorologiques étant issus d'une réanalyse, donc affectés d'une variabilité réaliste), mais pas dans les émissions. En effet, leur variabilité interannuelle est réduite à une interpolation linéaire reliant des moyennes décennales et ne peut donc présenter d'anomalies mensuelles. Dans la figure 4.20, les rapports de mélange en CO sont mieux corrélés entre modèle et observations qu'en O₃. De plus, l'impact des feux de forêts canadiennes en 2007 est visible à travers les observations dans l'est des Etats-Unis, en Europe et dans l'ouest du Bassin Méditerranéen, caractéristique que le modèle ne parvient pas à reproduire de par la configuration de ses émissions de feux de biomasse. Parmi les cinq régions comportant le plus de moyennes mensuelles retenues dans l'UT, la corrélation entre MOCAGE–M et IAGOS–DM est bonne, si l'on tient compte des hypothèses sur les émissions dans le modèle, toujours en dehors du nord-est asiatique. Son coefficient s'étend de 0.4 au Moyen-Orient jusqu'à 0.58 en Europe. La différence entre les deux courbes relatives au modèle étant négligeable sur la quasi-globalité des mois, on peut conclure positivement quant à la représentativité de l'échantillonnage sur les rapports de mélange du CO au sein des régions.

Dans la plupart des régions, le CO du modèle est sensiblement plus élevé lorsque l'on conserve les émissions de 1980. La différence est relativement faible dans le nord-ouest américain, et opposée dans le nord-est asiatique, autour de laquelle les émissions ont augmenté. Cela caractérise l'impact de la redistribution géographique des zones de fortes émissions an-thropiques, c'est-à-dire de l'Amérique du Nord et de l'Europe à l'est et au sud asiatiques, sur la composition de l'UT.

De façon globale, le modèle surestime légèrement les moyennes mensuelles par rapport aux observations, généralement de 5 ppb en moyenne sur l'année. Au vu des différences entre MOCAGE–M et MOCAGE–NM, on remarque toutefois que l'échantillonnage génère un biais positif. Si ce diagnostic de la simulation REF-C1SD peut s'appliquer sur les observations, en dehors des événements de grands feux de forêts que le modèle ne reproduit pas (par construction), on peut conclure que l'échantillonnage dans la LS n'est pas toujours robuste. Il peut



Lower stratospheric O₃

FIGURE 4.19 – De même que la figure 4.18, dans la LS.



Upper tropospheric CO

FIGURE 4.20 – De même que la figure 4.18, pour le CO.

générer un biais positif jusqu'à 20 ppb, soit plus d'un quart de la moyenne annuelle. L'évolution des émissions ayant une résolution temporelle de 10 ans dans la simulation, il est probable qu'elle contribue à la sous-estimation de la variabilité interannuelle du CO. Il serait intéressant d'appliquer des émissions mieux résolues dans le temps, afin d'estimer cet impact.

La comparaison entre les résultats de REF-C1SD et de SEN-C1SD montre que, de même que dans l'UT, l'évolution des émissions provoque une diminution des quantités de CO. La différence est que, pour la LS, cette baisse concerne la totalité des régions. Parmi les régions des moyennes latitudes, l'impact des émissions de surface sur le CO en LS est quasiment uniforme d'ouest en est, d'après la faible variabilité inter-régionale du CO dans cette couche.



Lower stratospheric CO

FIGURE 4.21 – De même que la figure 4.20, dans la LS.

La dernière partie de l'étude de Cohen et al. (2018) était consacrée à l'analyse des tendances. Nous closons donc cette section par une discussion sur la possibilité d'un calcul de tendances à partir de la modélisation. Dans la simulation REF-C1SD, la fréquence de variation des émissions injectées dans le modèle (10 ans), combinée avec leur interpolation linéaire pour en faire un inventaire annuel, induit une tendance décennale forte par construction. Celle-ci est susceptible de dominer la tendance observée et donc d'en empêcher la détection. La longueur des observations (une vingtaine d'années pour l'O₃, une douzaine pour le CO) est, dans le cas présent, incompatible avec la fréquence de variation des émissions injectées dans le modèle. Nous devons donc nous abstenir d'interpréter des éventuelles tendances calculées par MOCAGE sur une aussi "courte" période. La méthode mise en place pour comparer les observations et la simulation REF-C1SD rencontre donc des limites au niveau du calcul de tendances, mais elle s'est avérée utile pour l'étude des climatologies et des séries temporelles.

4.3 Conclusion sur la méthode

La méthode mise en place dans ce travail de thèse a permis de rendre les observations IA-GOS comparables aux moyennes mensuelles issues de concentrations en ozone et CO des simulations REF-C1SD et SEN-C1SD de MOCAGE. Même si cette méthode tend à lisser les observations par construction, la comparaison entre IAGOS–HR et IAGOS–DM a montré que les grandes caractéristiques étaient conservées entre les deux jeux. C'est un peu moins le cas lorsque l'on analyse les données en séparant UT et LS. En effet, l'utilisation du PV moyen mensuel pour faire la distinction entre UT et LS et le faible nombre de niveaux verticaux du modèle dans l'UTLS (cinq niveaux) ne permet pas d'éviter complètement le mélange entre UT et LS dans le jeu de données IAGOS–DM.

La méthode a aussi permis d'effectuer des comparaisons entre IAGOS–DM et MOCAGE– M sur les cartes de climatologies, sur les profils verticaux moyens, sur les cycles saisonniers et sur les séries temporelles mensuelles, permettant une évaluation de la simulation REF-C1SD de MOCAGE. Elle ne peut pas être appliquée à un calcul de tendances dans notre cas, étant données la résolution décennale des émissions de surface utilisées dans la simulation REF-C1SD et la relativement "courte" série temporelle de IAGOS par rapport à cette résolution décennale. Toutefois, si l'on réalisait des simulations avec des émissions à plus haute résolution temporelle prenant en compte la variabilité interannuelle, l'utilisation de la méthode pour la comparaison des tendances entre le modèle et les observations serait possible.

En bref, la méthode mise en place peut être utilisée pour différents types d'analyses, mais il convient de vérifier la pertinence de ces analyses en fonction de la configuration des simulations choisies.