

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Discipline :

Océan, Atmosphère et Surfaces Continentales

Présentée et soutenue le 19 Novembre 2012 par :

Jérôme Barré

Titre :

Assimilation de données satellites au limbe et au nadir dans un modèle de chimie-transport

---

Jury :

Rapporteurs :	M. Slimane Bekki	LATMOS
	M. François Vial	LMD
Président du jury :	M. Jean-Luc Attié	LA
Examinateurs :	M. Henk Eskes	KNMI
	M. William Lahoz	NILU
	M. Philippe Ricaud	CNRM-GAME
Directeurs de thèse :	Mme. Florence Rabier	CNRM-GAME
	M. Vincent-Henri Peuch	ECMWF

École doctorale :

Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace (SDU2E)

Unité de recherche :

Groupe d'études de l'Atmosphère Météorologique - CNRM-GAME

Résumé

Études par assimilation de données satellites au limbe et au nadir dans un modèle de chimie-transport

L'assimilation de données permet de combiner d'une manière optimale un modèle numérique décrivant l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère et les mesures disponibles. Dans cette thèse, l'assimilation de données est utilisée afin de caractériser les distributions troposphériques et stratosphériques de l'ozone (O_3) et du monoxyde de carbone (CO). Le Modèle de Chimie Transport (CTM) MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle) est utilisé dans une configuration à deux domaines imbriqués avec les résolutions de 2° (global) et de 0.2° (régional). La technique variationnelle du 3D-FGAT est utilisée pour toutes les études que constituent cette thèse. Nous avons évalué la complémentarité des mesures satellites au limbe et au nadir aujourd'hui disponibles pour la caractérisation de l'UTLS (Haute Troposphère Basse Stratosphère) en assimilant ces deux types de mesures simultanément. Nous nous sommes en particulier intéressé à la propagation de l'information provenant des mesures assimilés dans le modèle et plus particulièrement, aux impacts de l'assimilation de mesures stratosphérique d'ozone en troposphère aux moyennes latitudes. Les principaux objectifs de cette thèse ont été de montrer la valeur ajoutée de l'augmentation de la résolution modèle pour l'assimilation de données et les effets synergiques de l'assimilation combinée d'un sondeur au limbe et au nadir. Des développements au niveau du système d'assimilation en domaine imbriqué à 0.2° ont été effectués. L'assimilation des données dans le domaine global est maintenant prise en compte et les conditions aux bords provenant des champs assimilés montre un impact significatif sur le domaine imbriqué.

Dans un premier temps, nous avons assimilé les profils d'ozone stratosphériques mesurés au limbe provenant de MLS (Microwave Limb Sounder) afin d'étudier deux cas d'Échange entre la Stratosphère et la Troposphère (STE). L'étude compare les résultats obtenus deux résolution horizontales 2° et 0.2°. L'assimilation de MLS montre une meilleure description des champs d'ozone à l'UTLS que celle obtenue avec le modèle seul en particulier à haute résolution où les filaments et les structures stratifiées dans les profils verticaux sont fidèlement représentés. Les résultats des rétro-trajectoires et des prévisions d'ozone démontrent que l'assimilation des profils stratosphériques MLS à haute résolution ont un impact sur les champs d'ozone troposphérique. L'étude montre aussi l'intérêt de disposer de tels instruments pour les applications troposphériques comme la prévision de la qualité de l'air et les études du bilan de l'ozone troposphérique. L'étude est complétée par l'estimation du flux d'ozone à la tropopause et sa sensibilité par rapport à la résolution et à l'assimilation de données.

Les profils d'ozone de MLS et les colonnes troposphériques de IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) ont ensuite été assimilés à haute résolution horizontale (0.2°). Cette étude compare les assimilations séparés et combinées des colonnes troposphériques IASI et profils stratosphériques MLS, afin de mettre en évidence les effets synergiques de l'assimilation combinée. Les comparaisons avec des données indépendantes

montrent que l'assimilation combinée de MLS et IASI donne les champs d'ozone particulièrement réalistes au niveau de la stratosphère l'UTLS et la troposphère. L'assimilation combinée montre aussi d'excellents résultats en comparaison avec les mesures indépendantes de colonnes totales par OMI (Ozone Monitoring Instrument).

Enfin la dernière partie de ce travail à été consacrée à l'étude du comportement de la couche de mélange à l'UTLS en termes d'épaisseur et d'altitude. L'étude se situe à l'échelle locale et globale en assimilant les mesures d'O_3 de MLS les mesures de CO de MOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere). Des diagnostiques utilisant les corrélations entre O_3 et CO ont permis de quantifier l'effet de l'assimilation sur l'altitude et l'épaisseur de la couche de mélange. Nous nous sommes d'abord intéressé à un cas d'étude STE ; l'assimilation de MOPITT permet d'affiner la couche de mélange alors que l'assimilation de MLS étale la couche de mélange vers la troposphère. Quand les champs issu de l'assimilation de MOPITT et de MLS sont utilisés en même temps dans les diagnostiques, la couche de mélange montre un comportement beaucoup plus réaliste et se trouve localisée au niveau de la tropopause thermique. A l'échelle globale, les mêmes effets sont observés. Quand les champs issu de l'assimilation de MOPITT et de MLS sont utilisés en même temps dans les diagnostiques, la couche de mélange correspond à la tropopause thermique au delà de 50°. Cette étude montre que l'assimilation de données permet de fournir des analyses chimiques de bonne qualité malgré la résolution verticale relativement faible du modèle (et des modèles chimiques de l'état de l'art en général).

Mots-Clés : Assimilation de données, ozone, UTLS, troposphère, stratosphère, satellite, limbe, nadir, monoxyde de carbone.

Abstract

Data assimilation studies in a chemistry transport model using limb and nadir satellite geometries.

Data assimilation combines in an optimal way a numerical model describing the evolution of the atmospheric chemical composition and the available trace gases measurements. In this thesis, data assimilation is used to characterize the ozone (O_3) and the carbon monoxide (CO) distributions in the stratosphere and in the troposphere. The Chemistry Transport Model (CTM) MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle) is used in a configuration with two nested domains at 2° (global) and at 0.2° (regional). To perform the assimilation experiments a 3D-FGAT variational method is used. We evaluate the complementarity of limb and nadir measurements available at the present day at characterizing the UTLS (Upper Troposphere Lower Stratosphere) region by assimilating simultaneously the two type of measurements. We particularly focus on the impacts of data assimilation of stratospheric ozone measurements on troposphere and conversely of tropospheric data assimilation on stratosphere. Showing the added value of the increased horizontal resolution in the UTLS assimilated fields and the synergistic effects of limb and nadir assimilation were the main objectives of this work. Development in the assimilation system have been made in the assimilation system with the nested domain. Data assimilation in the global domain is now taken in account and the boundary condition from the assimilated fields show significant impacts on the regional domain.

Firstly, we assimilate stratospheric ozone profiles from MLS (Microwave Limb Sounder) to investigate two Stratosphere-Troposphere Exchange (STE) case studies. This study compares the results at two horizontal grid resolutions 2° and 0.2°. MLS ozone analyses show a better description of the UTLS region than the free model run. In particular, at high horizontal resolution the MLS ozone analyses present realistic filamentary ozone structures in the UTLS and laminae structures in the ozone profile. Results from backward trajectories and ozone forecasts show that assimilation at high horizontal resolution of MLS stratospheric ozone profiles has an impact on tropospheric ozone fields. This study also shows the interest of such instruments for tropospheric applications as air quality forecasts and tropospheric ozone budget studies.

Secondly, stratospheric ozone profiles from MLS and tropospheric ozone columns from IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) have been assimilated at high horizontal resolution (0.2°). This study compares the separate and combined analysis of IASI tropospheric columns and MLS stratospheric profiles, in order to investigate possible synergistic effects. These comparisons with independent data show that the IASI and MLS combined assimilation analyses provides the most realistic ozone fields of the stratosphere, UTLS and troposphere. Through neither instrument covers the entire atmospheric column alone, the combined MLS and IASI analyses also show the best agreement with the independent total column data provided by OMI (Ozone Monitoring Instrument).

Lastly, the behavior in terms of height and depth of the extra-tropical mixing layer in the lowermost stratosphere is investigated at local and global scale using MLS O_3 and

MOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere) CO assimilation. We apply diagnostics using O_3-CO correlations to quantify the effect of the assimilation on the height and depth of the mixing layer. We firstly focused on a STE case study where MOPITT CO analyses have the capability to sharpen the mixing layer distribution whereas MLS O_3 analyses provide a tropospheric expansion of the mixing layer distribution with its maximum close to the thermal tropopause. When MLS O_3 analyses and MOPITT CO analyses are used together for the diagnostics, the mixing layer shows more realistic results and matches the thermal tropopause. At global scale, MOPITT CO analyses still shows a sharper chemical transition between stratosphere and troposphere than the free model run. MLS O_3 analyses lower and spread the mixing layer toward the troposphere. When MLS O_3 analyses and MOPITT CO analyses are used together the mixing layer matches the thermal tropopause poleward to 50°. This study shows that data assimilation can provide good quality chemical analyses despite a relatively low vertical model resolution.

Keywords : Data assimilation, ozone, UTLS, troposphere, stratosphere, satellite, limb, nadir, carbon monoxide.

Table des matières

Introduction **11**

1 Processus physico-chimiques dans la moyenne et basse atmosphère. **17**
1.1 Introduction . . . 18
1.1.1 Structure de l'atmosphère terrestre . . . 18
1.1.2 Distribution de l'ozone dans l'atmosphère . . . 18
1.2 Chimie de l'ozone stratosphérique . . . 20
1.2.1 Photo-dissociation de l'oxygène moléculaire . . . 20
1.2.2 Production de l'ozone . . . 20
1.2.3 Photo-dissociation de l'ozone . . . 21
1.3 Chimie de l'ozone troposphérique . . . 22
1.3.1 Production de l'ozone . . . 22
1.3.2 Destruction de l'ozone . . . 23
1.4 Le monoxyde de carbone . . . 24
1.5 Processus dynamiques entre la stratosphère et la troposphère . . . 25
1.5.1 Définitions de la tropopause . . . 25
1.5.1.1 Tropopause thermique . . . 25
1.5.1.2 Tropopause dynamique . . . 26
1.5.1.3 Tropopause chimique . . . 27
1.5.2 Échanges entre la stratosphère et la troposphère . . . 28

2 Modélisation de la chimie de atmosphere et assimilation de données **33**
2.1 La modélisation de la chimie atmosphérique : le modèle MOCAGE . . . 34
2.1.1 La modélisation numérique . . . 34
2.1.2 Le modèle MOCAGE . . . 34
2.1.2.1 Schémas physiques et chimiques . . . 34
2.1.2.2 Caractéristiques principales . . . 36
2.2 L'assimilation de données . . . 38
2.2.1 Le 3D-VAR . . . 41
2.2.2 Le 4D-VAR . . . 42
2.2.3 Le 3D-FGAT . . . 44
2.2.4 MOCAGE-PALM . . . 44
2.3 Les mesures chimiques assimilées . . . 45
2.3.1 AURA/MLS . . . 46
2.3.2 MetOp-A/IASI . . . 46

2.3.3 TERRA/MOPITT 47
2.4 Les conditions aux limites avec l'assimilation de données en domaine à air limitée 47

3 Étude sur les échanges d'ozone entre la stratosphère et la troposphère à haute résolution au dessus de l'Europe. 53
3.1 Résumé long de l'article 1 54
3.2 Article 1 - Stratosphere-troposphere ozone exchange from high resolution MLS ozone analyses. 56
3.2.1 Introduction 56
3.2.2 Methodology 57
3.2.2.1 CTM model 57
3.2.2.2 Data assimilation system 58
3.2.2.3 Aura/MLS ozone observations 59
3.2.3 MLS assimilation 59
3.2.4 Meteorological situation and ozone fields analysis 61
3.2.4.1 Filamentary processes 61
3.2.4.2 Case 1 : stratospheric intrusion on 23 June 2009 62
3.2.4.3 Case 2 : stratospheric intrusion on 17 July 2009 66
3.2.4.4 Impact in the troposphere 71
3.2.5 Discussion 72
3.2.5.1 Backward trajectories : impact of high resolution 72
3.2.5.2 Ozone forecasts at high resolution : impact of MLS ozone analyses 73
3.2.6 Conclusions 74
3.3 Étude sur l'estimation des flux d'ozone à la tropopause 77
3.4 Conclusions et perspectives 82

4 Assimilation combinée de colonnes troposphériques et de profils stratosphériques d'ozone dans un CTM régional. 83
4.1 Résumé long de l'article 2 84
4.2 Article 2 - Combined data assimilation of ozone tropospheric columns and stratospheric profiles in a regional CTM 87
4.2.1 Introduction 87
4.2.2 Model, data and methodology 90
4.2.2.1 Chemistry Transport Model 90
4.2.2.2 Data assimilation system 90
4.2.2.3 Assimilated observations 91
4.2.3 Assimilation experiments set up 92
4.2.3.1 χ^2 diagnostic 92
4.2.3.2 IASI 0-6km ozone assimilation (IASI-R) 94
4.2.3.3 MLS ozone assimilation (MLS-R) 96
4.2.3.4 IASI ozone and MLS ozone combined assimilation (Combined-R) 97
4.2.3.5 Observation minus forecast and observation minus analysis 98

4.2.4 Evaluation against independent data . . . 101
4.2.4.1 MIPAS . . . 101
4.2.4.2 IAGOS . . . 103
4.2.4.3 OMI total ozone column . . . 105
4.2.4.4 Ozone variability . . . 107
4.2.5 Conclusions . . . 110
4.3 Conclusions et perspectives . . . 112

5 Étude sur la couche de transition dans l'UTLS extra-tropicale par l'assimilation de données MLS O_3 et MOPITT CO. 113
5.1 Résumé long de l'article 3 . . . 114
5.2 Article 3 - Diagnosing the mixing layer in the etra-tropical lowermost stratosphere using MLS O_3 and MOPITT CO analyses. . . . 117
5.2.1 Introduction . . . 117
5.2.2 Methodology . . . 119
5.2.2.1 CTM Model and data assimilation system . . . 119
5.2.2.2 Aura/MLS O_3 and Terra/MOPITT CO observations . . . 119
5.2.2.3 Assimilation experiments . . . 120
5.2.3 STE case study on 15 August 2007 . . . 120
5.2.3.1 Diagnostic 1 : O_3-CO correlation . . . 123
5.2.3.2 Diagnostic 2 : Profile comparisons using relative altitude coordinates . . . 126
5.2.3.3 Diagnostic 3 : Sharpness of the transition . . . 128
5.2.4 Global mixing layer for the month of August 2007 . . . 130
5.2.5 Discussions and conclusions . . . 134
5.3 Conclusions et perspectives . . . 137

Conclusions et perspectives 139

Annexe A : Claeyman et al., 2011 143

Annexe B : Liste des publications 165

Liste des acronymes 167

Bibliographie 169

Introduction

La stratosphère et la troposphère sont deux régions de l'atmosphère qui ont des propriétés physico-chimiques bien distinctes. La dynamique de ces deux régions sont très différentes : la stratosphère présente des vents horizontaux forts avec des vitesses verticales faibles, la troposphère à l'inverse montre des vitesses verticales élevées. On parle aussi de stabilité verticale plus élevée en stratosphère qu'en troposphère. L'ozone (O_3) qui est un composant minoritaire très important de l'atmosphère rend aussi bien compte des différences entre stratosphère et troposphère. A peu près 90 % de l'ozone atmosphérique se trouve en stratosphère, et seulement 10 % se trouve en troposphère. Dans la stratosphère et donc en altitude (au dessus de 12 km environ), l'ozone absorbe le rayonnement solaire ultraviolet et permet ainsi le maintient de la vie sur Terre. Celle ci était menacée par la pollution, en particulier par les émissions croissantes de gaz CFC (Chloro Fluoro Carbures) [World Meteorological Organization, 2007] jusque dans les années 1990. Les CFC montent dans la haute atmosphère et catalysent la destruction de l'ozone, étant ainsi à l'origine du trou dans la couche d'ozone. Dans la troposphère (entre la surface et environ 10 km d'altitude) l'ozone, bien qu'en quantités beaucoup plus faibles, contribue à l'effet de serre additionnel, équivalent à 24 % de celui généré par le dioxyde de carbone (CO_2) [Ramaswamy et al., 2001]. L'ozone est aussi un des principaux polluants toxiques pour les écosystèmes [Cooper et al., 2010] et la santé humaine [Organization, 2005]. Il s'agit d'un gaz irritant et nocif pouvant générer des maladies respiratoires et cardio-vasculaires. Les fortes quantités d'ozone que l'on trouve aux alentours des régions urbaines sont dues aux émissions de précurseurs par les activités humaines.

En plus de la production chimique d'ozone par les émissions des polluants primaires depuis la surface (oxydes nitriques (NO_x), composées organiques volatils (COV), monoxyde de carbone (CO)), les échanges de masses d'air entre la troposphère et la stratosphère contribuent à environ 30% du bilan de l'ozone troposphérique [Lelieveld et Dentener, 2000]. Aux moyennes latitudes les masses d'air stratosphériques fortement concentrées en ozone qui entrent en troposphère constituent l'apport majeur des sources d'ozone naturelles en troposphère. La région à l'interface que constitue la haute troposphère - basse stratosphère (UTLS : Upper Troposphere - Lower Stratosphere) présente donc un grand intérêt pour les études et les applications portant sur l'ozone troposphérique. La région de l'UTLS qui est régie par des processus de transport à fine échelle et des processus

chimiques microphysiques et multiphasiques restent encore incertains. La contribution chimique de la stratosphère sur la troposphère reste encore mal estimée et de grandes incertitudes persistent au niveau de l'estimation des flux entre la stratosphère et la troposphère. Cette région qui est caractérisée par une forte variabilité spatio-temporelle de l'ozone (ou d'autres espèces chimiques comme par exemple le CO) nécessite des mesures et des modélisations numériques de très bonne qualité.

Les mesures in-situ (aéroportés et ballons-sondes) des composés chimiques de l'atmosphère tels que l'ozone sont très précises dans le temps et l'espace. L'échantillonnage de ces mesures permet de détecter les variations caractéristiques du champ d'ozone à l'UTLS. Cependant, la couverture des mesures in-situ est très peu dense et ne permet pas d'appréhender complètement les phénomènes de mélange et d'échanges entre la stratosphère et la troposphère. Comparativement au réseau de mesures in-situ, les observations satellites, de manière générale, ont l'avantage de fournir une couverture globale avec un fort échantillonnage spatio-temporel. Depuis maintenant plus d'une dizaine d'années, les observations de la composition chimique de l'atmosphère depuis l'espace s'intensifient et deviennent un outil indispensable à l'étude de la composition chimique de l'atmosphère et de son évolution malgré certaines limites décrites ci-après. Deux principaux types de géométries de visée existent le limbe et le nadir.

Les instruments au limbe balayent l'atmosphère sur la verticale au cours de leur orbite autour de la Terre. Ce type d'instrument qui permet d'obtenir des profils verticaux est limité aux domaines d'altitude stratosphérique (et mésosphérique) ; en troposphère l'incertitude de la mesure devient trop grande pour être utilisable. Les mesures au limbe fournissent des profils verticaux avec couverture globale mais l'échantillonnage horizontal reste faible. Les instruments au nadir visent le sol depuis l'espace. Dans ce type de mesure toutes les couches de l'atmosphère ont le même poids Le nadir produit des données en contenu intégré en verticale sur toute ou une partie de l'atmosphère avec souvent un fort échantillonnage horizontal. Bien que la couverture des mesures satellites soit globale leurs résolutions spatiales restent bien inférieure à celles des mesures in-situ. Bien que la géométrie de mesure soit cruciale suivant les différentes applications scientifiques, les propriétés d'absorption de molécule mesurée et sa répartition dans l'atmosphère déterminera la précision de la mesure suivant la région d'intérêt considérée. Par exemple, compte tenu de la structure verticale de l'ozone dans l'atmosphère, les contenus intégrés d'ozone troposphériques sont souvent sujet à un bruit d'origine stratosphérique qui augmente l'erreur de la mesure. Pour ces différentes raisons, les mesures satellites ont souvent une erreur de mesure supérieure aux mesures in-situ.

Une autre outil pour l'étude de la composition chimique de l'atmosphère réside dans la modélisation numérique et l'utilisation de modèles de chimie transport (CTM). Les CTM apportent une contribution fondamentale à l'étude de la composition chimique atmosphérique puisqu'ils permettent d'intégrer les connaissances acquises, de tester des hypothèses sur le rôle des processus individuels et de suivre ainsi l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère. En 1998, le modèle MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle) à vu le jour. Au fil des années, il a été développé pour différentes applications ; de l'étude des interaction entre la chimie et le climat à la

prévision régionale de la qualité de l'air [Peuch et al., 1999]. Plusieurs schémas chimiques, du schéma linéarisé d'ozone [Cariolle et Déqué, 1986] au schéma détaillé troposphérique et stratosphérique RACMOBUS [Dufour et al., 2005], sont alors utilisables dans différentes configurations De manière générale les CTM, sont basé sur de nombreuses approximations dues aux complexités du système physico-chimique de l'atmosphère. Bien que de grand avancements on été faits durant les 30 dernières années dans la compréhension et dans la modélisation numérique de la physique et de la chimie de l'atmosphère, la connaissance des processus dynamiques et chimiques reste encore incomplète.

Les limites qui concernent aussi bien les mesures spatiales que la modélisation numérique peuvent être surmontés par la technique d'assimilation de données, qui combine de manière optimale l'information provenant des modèles et des observations en tenant compte de leurs incertitudes respectives. Cette technique à été introduite dans les années 1990 en chimie atmosphérique par Austin [1992],Fisher et Lary [1995] et par Elbern et al. [1997] en stratosphère comme en troposphère. L'assimilation de données permet de contraindre le modèles avec les observations disponibles dans la troposphère, la stratosphère mais aussi à l'interface que constitue l'UTLS. Les contributions des données au modèle pour l'étude de processus physico-chimiques ainsi que les limites de la modélisation peuvent être mises en évidence et être identifiés précisément. Le système d'assimilation utilisé dans ce travail de thèse, MOCAGE-PALM est le fruit d'une collaboration entre Météo-France et le CERFACS (Centre Européen de Recherche et de Formation Avancée en Calcul Scientifique). MOCAGE-PALM utilise la méthode d'assimilation variationnelle 3D-FGAT (First Guess at Appropriate Time, Fisher et Andersson [2001]) qui est un compromis entre la technique tri-dimensionnelle classique 3D-Var et la technique quadri-dimensionnelle 4D-Var numériquement très coûteuse. Le système MOCAGE-PALM à été validé au cours du projet ASSET [Lahoz et al., 2007] et à produit des résultats de bonne qualité en comparaison de données indépendantes in-situ (radiosondages) et d'autres systèmes d'assimilation [Geer et al., 2006].

Un des objectifs préliminaires de la thèse était d'étudier et de caractériser les échanges d'ozone entre la stratosphère et la troposphère à haute résolution. Hauchecorne et al. [2002], Marchand et al. [2003] et Tripathi et al. [2006] ont montré que ces échanges requièrent une résolution horizontale fine. Semane et al. [2007] et El Amraoui et al. [2010] ont aussi montré que l'assimilation de données de mesures d'ozone au limbe (profils stratosphériques d'ozone) permet la représentation réaliste des intrusions stratosphériques. Cependant, ces études ont été réalisées à l'échelle globale pour une faible résolution horizontale (2°). Dans ce cadre, le premier objectif de cette thèse fût d'utiliser le système d'assimilation MOCAGE-PALM dans une configuration régionale qui permet d'avoir une haute résolution horizontale (0.2°). L'impact de la haute résolution et de l'assimilation des profils d'ozone MLS (Microwave Limb Sounder) au niveau de l'UTLS et de la troposphère est présenté dans cette première étude [Barré et al., 2012a].

L'objectif principal de cette thèse était d'étudier l'assimilation simultanée de données d'ozone d'un sondeur au limbe et d'un sondeur au nadir. De précédentes études ont utilisé la combinaison des ces deux types de mesures d'ozone dans des expériences d'assimila-

tion. Struthers et al. [2002] a montré que l'assimilation des profils stratosphériques MLS et des colonnes totales GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) donne de meilleurs résultats que l'assimilation séparée des ces deux produits. Wargan et al. [2010] a aussi utilisé les mesures MLS et les colonnes totales de OMI (Ozone Monitoring Instrument) pour l'étude de la distribution de l'ozone au niveau de l'UTLS. L'étude montre que les champs d'ozone sont fortement améliorés. Cependant ces études, comme d'autres études du même type (par exemple Massart et al. [2009]), utilisent un modèle à échelle globale et donc à faible résolution horizontale ainsi que des schémas chimiques linéarisés pour l'ozone. Ces configuration trouvent leurs limites pour représenter efficacement les échanges au niveau de l'UTLS ainsi que les champs d'ozone au niveau de la troposphère. Notre approche ici est d'utiliser un modèle représentant la chimie complète en stratosphère et en troposphère à une résolution horizontale élevée de 0.2°. De plus les mesures au nadir utilisées dans ces études ne restituent que de mesures de la colonne totale d'ozone dont l'information principale se trouve en stratosphère. Par les progrès des techniques d'inversion, l'instrument IASI (Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge) permet de fournir des colonnes troposphériques d'ozone [Eremenko et al., 2008]. Une expérience d'assimilation des colonnes partielles de IASI dans un CTM montre que l'ozone troposphérique du modèle est fortement amélioré [Coman et al., 2012]. Ainsi, dans une seconde étude nous avons voulu combiner les colonnes troposphériques IASI avec les profils stratosphériques MLS dans une expérience d'assimilation à haute résolution en prenant en compte la chimie stratosphérique et troposphérique afin d'identifier les possibles synergies et les impacts respectifs des deux instruments sur les différentes couches de l'atmosphère [Barré et al., 2012b].

Enfin dans une dernière étude, nous avons voulu quantifier l'apport de l'assimilation de données d'ozone et de monoxyde de carbone pour la caractérisation de la couche de mélange au niveau de l'UTLS. Les méthodes traceurs-traceurs se trouvent être un bon moyen de caractériser les processus de mélange au niveau de l'UTLS. Les forts gradients des espèces chimiques qui existent dans cette région sont une limite bien connue des modèles de chimie transport [Law et al., 2000]. Une étude d'inter-comparaison de modèles [Hegglin et al., 2010] montre la mauvaise estimation en hauteur et en épaisseurs de la couche de mélange (ou encore couche de transition chimique) dans la plupart des modèles. La trop faible résolution de ces modèles pour la modélisation des champs chimiques à l'UTLS en est la principale cause. En se servant de diagnostics permettant de quantifier les caractéristiques de la couche de transition, nous avons estimé précisément l'apport de l'assimilation des données de CO et d'O_3 provenant du sondeur au nadir MOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere) et du sondeur au limbe MLS, respectivement. L'étude montre comment l'assimilation des données peut surmonter le manque de résolution verticale dans les modèles de chimie. Cette étude constituera la dernière partie de cette thèse [Barré et al., 2012a].

Le premier chapitre de cette thèse est consacré à des rappels concernant les structure de l'atmosphère, la chimie de l'ozone troposphérique et stratosphérique ainsi qu'aux processus dynamiques de l'atmosphère, notamment à l'UTLS.

Le second chapitre présente les caractéristiques du modèle MOCAGE. Un rappel des différentes techniques d'assimilation variationnelles sont présentés. La technique mise en place dans ce travail pour l'assimilation chimique sur un domaine à aire limitée dans MOCAGE-PALM est détaillée.

Le troisième chapitre présente un résume de l'article Barré et al. [2012a] publié en juillet 2012 dans la revue *Atmospheric Chemistry and Physics* ainsi qu'une partie discutant de l'estimation des flux d'ozone entre la stratosphère et la troposphère.

Le quatrième chapitre présente un résumé de l'article Barré et al. [2012b] soumis dans la revue *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society.*

Le cinquième chapitre présente un résumé de l'article Barré et al. [2012a] publié dans la revue *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*

En annexe A est présentée une autre étude à laquelle j'ai contribué, mais qui n'est pas très directement reliée au sujet principal de cette thèse.

Chapitre 1

Processus physico-chimiques dans la moyenne et basse atmosphère.

Sommaire

1.1 Introduction 18

1.1.1 Structure de l'atmosphère terrestre 18

1.1.2 Distribution de l'ozone dans l'atmosphère 18

1.2 Chimie de l'ozone stratosphérique 20

1.2.1 Photo-dissociation de l'oxygène moléculaire 20

1.2.2 Production de l'ozone 20

1.2.3 Photo-dissociation de l'ozone 21

1.3 Chimie de l'ozone troposphérique 22

1.3.1 Production de l'ozone 22

1.3.2 Destruction de l'ozone 23

1.4 Le monoxyde de carbone 24

1.5 Processus dynamiques entre la stratosphère et la troposphère 25

1.5.1 Définitions de la tropopause 25

1.5.2 Échanges entre la stratosphère et la troposphère 28

1.1 Introduction

1.1.1 Structure de l'atmosphère terrestre

L'atmosphère terrestre est composé de différentes couches successives en altitude. On les distinguent généralement par la variation du profil vertical de température (figure 1.1). La troposphère (du grec $\tau\rho\epsilon\pi\omega$ qui signifie faire le tour), la couche la plus proche de la surface, est caractérisée par un profil vertical de température qui décroît avec l'altitude. Cette couche contient plus de 80% de la masse totale de l'atmosphère et la grande majorité de la vapeur d'eau. De manière générale, la forte décroissance de la température avec l'altitude (gradient négatif de température) -6,5°K par kilomètre d'altitude favorise l'instabilité des masses d'air et permet ainsi des processus de mélange par convection. Au dessus de la troposphère, là où la température cesse de décroître avec l'altitude, se situe la tropopause. Cette limite se situe à des altitudes variables suivant la latitude et la définition précise qu'on lui attribue (voir partie 1.5.1). Le minimum de température qui caractérise la tropopause thermique se situe entre 15 et 18 km aux tropiques et entre 7 et 9 km aux pôles. La tropopause marque la limite entre la troposphère et la stratosphère. La stratosphère (du latin *stratus* qui signifie étaler), au dessus de la tropopause, est caractérisée par un gradient positif de température avec l'altitude. Cette augmentation de température est dû à la forte concentration d'ozone dans cette couche de l'atmosphère qui absorbe avec le rayonnement solaire Ultra Violet (UV). Le gradient de température positif tend à bloquer les échanges verticaux et conduit à une stratification horizontale de la couche atmosphérique. Des vents zonaux rapides (dirigés suivant les longitudes), ainsi qu'un transport méridien à grande échelle de l'équateur vers les pôles (circulation de Brewer-Dobson), assurent les processus de mélange. La stabilité de la stratosphère (faibles échanges verticaux) en regard des instabilités troposphériques (processus dynamiques verticaux), provoque une barrière dynamique à la tropopause. Au delà, de la stratosphère se situe la stratopause, qui marque la frontière avec la mésosphère. La mésosphère est caractérisée par un gradient de température négatif. Ensuite vient la thermosphère ou la température croit de nouveau. Au delà, l'atmosphère devient très ténue.

1.1.2 Distribution de l'ozone dans l'atmosphère

L'ozone est un constituant minoritaire de l'atmosphère. Sa distribution verticale (figure 1.2) est très différente des autres composés chimiques atmosphériques, comme l'azote, la vapeur d'eau, l'oxygène moléculaire, le dioxyde de carbone ou le méthane, qui présentent un maximum de concentration vers la surface suivi d'une décroissance avec l'altitude. Le profil d'ozone présente des concentration faibles à la surface et dans la troposphère. La concentration d'ozone augmente brusquement au niveau de la tropopause pour atteindre un maximum vers la basse stratosphère, qu'on appelle communément la couche d'ozone. Ainsi plus de 90% de la quantité totale de l'ozone atmosphérique se situe dans la stratosphère. L'altitude de la couche d'ozone varie en fonction de la latitude. Elle est plus basse aux pôles, entre 15 et 20 km, et plus haute à l'équateur, entre 25 et 30 km. L'altitude de la couche d'ozone varie aussi avec la saison, plus basse dans l'hémisphère d'hiver et plus haute dans l'hémisphère d'été. Au dessus de 30 km la concentration d'ozone

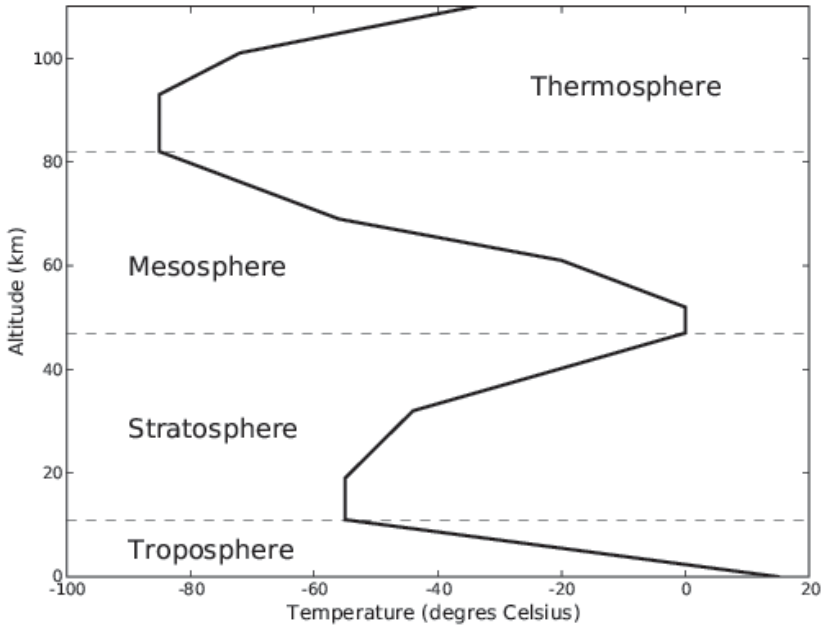


Figure 1.1 – Profil de température dans l'atmosphère en °C.

décroît rapidement. Cette distribution verticale particulière est le résultat d'une source d'ozone stratosphérique. L'ozone stratosphérique est majoritairement formé au niveau de l'équateur. Cependant l'examen de la distribution verticale de l'ozone stratosphérique révèle des concentrations maximales aux hautes latitudes en hiver. Cela illustre l'importance de la circulation méridienne moyenne dite de Brewer-Dobson [Brewer, 1949; Dobson, 1956] qui transporte l'ozone depuis les régions équatoriales vers le pôle d'hiver. Ce transport horizontal s'accompagne d'un lent mouvement de subsidence : c'est pourquoi l'altitude du maximum de concentration d'ozone décroît à mesure qu'on approche des régions polaires. L'ozone stratosphérique est d'une importance capitale, car en absorbant les rayonnements solaires UV-B (détruisant les structures moléculaires du vivant), permet le maintient de la vie sur Terre. L'ozone troposphérique est quant à lui formé par différentes sources. Une partie provient des intrusions masses d'air stratosphériques, riches en ozone, en troposphère [Danielsen, 1968]. Ces phénomènes ponctuels mais certes assez fréquents ont lieu aux moyennes latitudes. L'ozone en haute troposphère contribue à l'effet de serre en absorbant le rayonnement infrarouge terrestre et provoque un chauffage radiatif à la surface [IPCC 1996]. L'autre partie de l'ozone troposphérique est produit par la réaction de polluants, tels que les oxydes d'azote et les composés organiques volatils, et le rayonnement solaire. Ces polluants sont émis par les activités humaines et naturelles. On appelle alors l'ozone un polluant secondaire. À la surface, en concentrations élevées l'ozone est extrêmement nocif pour les poumons, les reins, le cerveau et les yeux. De manière générale, la distribution verticale de l'ozone montre de fortes valeurs d'ozone en stratosphère et de faibles valeurs d'ozone en troposphère. Un fort gradient d'ozone est donc observé au niveau de la tropopause.

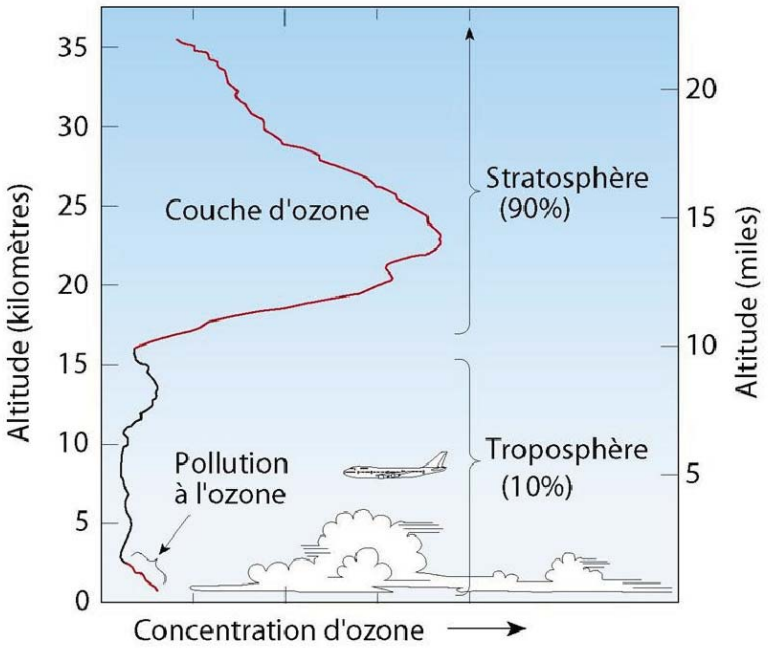


FIGURE 1.2 – Distribution verticale de l'ozone dans la troposphère et la stratosphère.

1.2 Chimie de l'ozone stratosphérique

1.2.1 Photo-dissociation de l'oxygène moléculaire et production de l'ozone

La photo-dissociation de l'oxygène moléculaire dans la stratosphère par le rayonnement solaire ultraviolet (inférieure à 242 nm) produit des atomes d'oxygène qui sont à l'origine de la production de l'ozone :

$$O_2 + h\nu \rightarrow O + O \tag{1.1}$$

La production d'ozone dans la stratosphère est naturelle et résulte de la réaction suivante :

$$O + O_2 + M \rightarrow O_3 + M \tag{1.2}$$

avec $M = O_2$ ou N_2 qui sont des stabilisants des produits de la réaction précédente. Cette réaction se produit essentiellement dans la haute stratosphère équatoriale à des altitudes supérieures à 30 km, où l'ensoleillement est maximum. Elle entraîne également une libération de chaleur qui correspond à l'énergie de liaison O-O_2. Ce processus explique le gradient positif de température observé dans la stratosphère.

1.2.2 Photo-dissociation de l'ozone

L'ozone produit peut ensuite être réduit par photo-dissociation nécessitant un rayonnement ultraviolet de longueur d'onde inférieur à 320 nm :

$$O_3 + hv \rightarrow O_2 + O \tag{1.3}$$

Par recombinaison avec l'oxygène atomique, l'ozone participe à la reformation de l'oxygène moléculaire :

$$O_3 + O(1D) \rightarrow 2O_2 \tag{1.4}$$

Ce mécanisme introduit par [Chapman, 1930] n'opère que le jour puisque les photodissociation de l'oxygène moléculaire et de l'ozone ne sont plus assurés la nuit. Il faut aussi noter que ce cycle de destruction et de production de l'ozone conduit à une surestimation de la quantité d'ozone dans la stratosphère. La destruction d'ozone décrite par ces équations n'équilibrent pas la production d'ozone par le rayonnement solaire. D'autres mécanismes catalytiques de destruction de l'ozone et de l'oxygène atomique doivent alors êtres pris en compte. Les catalyseurs de ces réactions, qui sont des constituants minoritaires présents à des concentrations bien inférieures à celle de l'ozone (n'étant pas consommés par les réactions), peuvent jouer un rôle quantitatif dans la destruction d'ozone [Crutzen, 1970]. Dans le cas de l'ozone, les cycles catalytiques sont du type :

$$O_3 + X \rightarrow XO + O_2 \tag{1.5}$$

$$XO + O \rightarrow O_2 + X \tag{1.6}$$

Il en résulte donc :

$$O_3 + O \rightarrow 2O_2 \tag{1.7}$$

Où X représente H, OH, NO, N, Cl et Br. Dans la chimie stratosphérique on inclut donc les composés suivants :

- les composés hydrogénés (HO_x = H + OH + HO_2)
- les composés azotés (NO_x = N + NO + NO_2 + NO_3)
- les composés bromés (BrO_x = Br + BrO_x)
- les composés chlorés (ClO_x = Cl+ ClO)

Il est à noter que la distribution spatio-temporelle de l'ozone dans la stratosphère n'est pas simplement déterminée par l'équilibre photochimique entre sa production et sa destruction. En effet l'examen de la répartition latitudinale de l'ozone stratosphérique relève des quantités maximales aux latitudes polaires, et non dans sa principale région de production à l'équateur. Cela illustre l'importance des processus de transport notamment la circulation méridienne moyenne de Brewer-Dobson qui transporte l'ozone depuis les régions équatoriales vers les pôles.

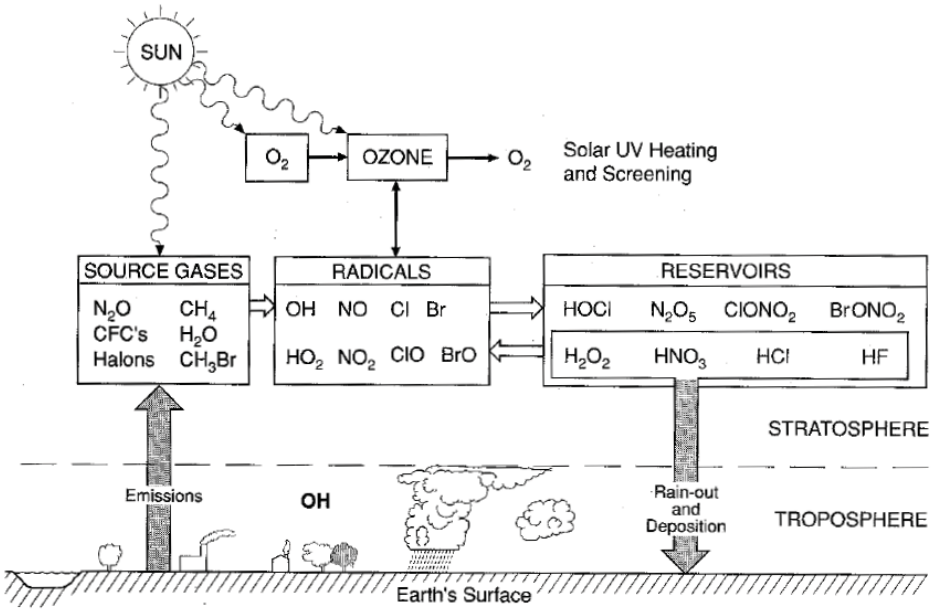


FIGURE 1.3 – Schéma de principe de la chimie de l'ozone stratosphérique (d'après Brasseur et al. [1999])

1.3 Chimie de l'ozone troposphérique

La distribution spatiale et temporelle de l'ozone dans la troposphère est contrôlée par cinq processus : la production photochimique dans la troposphère, la destruction photochimique, la destruction par photolyse, le dépôt au sol et les échanges entre la stratosphère et la troposphère.

1.3.1 Production de l'ozone

Dans la troposphère le rayonnement solaire ultraviolet fortement atténué ne permet plus la photolyse de l'oxygène moléculaire. En revanche le rayonnement de longueurs d'onde comprises entre 290 et 430 nm qui pénètre jusqu'à la surface dissocie les molécules de dioxyde d'azote pour donner des atomes d'oxygène nécessaires pour la formation de l'ozone :

$$NO_2 + h\nu \longrightarrow NO + O \tag{1.8}$$

$$O + O_2 + M \longrightarrow O_3 + M \tag{1.9}$$

avec M représentant une tierce molécule stable, capable d'absorber l'excédent d'énergie vibrationnelle.

Le monoxyde d'azote NO réagit alors rapidement avec l'ozone, pour reformer du dioxyde d'azote NO_2 :

$$O_3 + NO \longrightarrow NO_2\ (+\ O_2) \tag{1.10}$$

Ce cycle présente donc un bilan nul si la reconversion de NO en NO_2 met en jeu O_3. Cependant la présence d'autres oxydants en particulier les radicaux libres RO_2 (où R représentant soit un atome d'hydrogène, soit un composé organique) sont capables de

reformer du dioxyde d'azote NO_2 sans consommer de molécules d'ozone. Ces radicaux proviennent de l'oxydation des composés carbonés tels que le monoxyde de carbone (CO), le méthane (CH_4) et d'autres hydrocarbures tels que les composés organiques volatils (COV). Les NO_x (NO et NO_2) sont essentiellement d'origine anthropique bien que certaines contributions naturelles soient aussi significatives (éclairs et feux de biomasse). Le CO est émis directement dans l'atmosphère lors des processus de combustion incomplète des hydrocarbures fossiles ou de la biomasse. Les COV sont quant à eux à la fois d'origine anthropique et d'origine biogénique. La production photochimique de l'O_3 par l'oxydation du CO est réalisée suivant la suite de réactions suivantes :

$$CO + OH \rightarrow HO_2 + CO_2 \tag{1.11}$$

$$HO_2 + NO \rightarrow OH + NO_2 \tag{1.12}$$

$$NO_2 + h\nu \rightarrow NO + O \tag{1.13}$$

$$O + O_2 + M \rightarrow O_3 + M \tag{1.14}$$

aboutissant au bilan :

$$CO + 2O_2 + h\nu \rightarrow O_3 + CO_2 \tag{1.15}$$

La production photochimique de l'O_3 par l'oxydation des composés organiques volatils (COVs) est plus complexe et conduit à la production de H_2O et O_3 de la manière suivante :

$$OH + RH \rightarrow R + H_2O \tag{1.16}$$

$$R + O_2 + M \rightarrow RO_2 + M \tag{1.17}$$

$$RO_2 + NO \rightarrow RO + NO_2 \tag{1.18}$$

$$RO + O_2 \rightarrow HO_2 + R'CHO \tag{1.19}$$

$$HO_2 + NO \rightarrow HO + NO_2 \tag{1.20}$$

$$2(NO_2 + h\nu \rightarrow NO + O) \tag{1.21}$$

$$O + O_2 + M \rightarrow O_3 + M \tag{1.22}$$

1.3.2 Destruction de l'ozone

Outre le dépôt sec à la surface, l'ozone est également éliminé par destruction photochimique en réaction avec NO et par photolyse, en proportion largement moindre que dans la stratosphère. La photolyse de l'O_3 libère un atome d'oxygène soit dans son état fondamental, noté O ou $O(^3P)$, lors d'un rayonnement à des longueurs d'ondes inférieures à 1000 nm soit dans un état excité, noté $O(^1D)$, pour un rayonnement à des longueurs d'ondes inférieures à 320 nm. En effet, seules les longueurs d'ondes supérieures à 290 nm pénètrent l'atmosphère jusqu'à proximité de la surface.

$$O_3 + h\nu(< 320nm) \rightarrow O(^1D) + O_2 \tag{1.23}$$

$$O_3 + h\nu(< 1000nm) \rightarrow O(^3P) + O_2 \tag{1.24}$$

Une fraction importante de $O(^1D)$ (90%) est alors ramenée rapidement en $O(^3P)$ par collision avec les molécules d'azote et d'oxygène (notées M simplement ci-dessous).

$$O(^1D) + M \rightarrow O(^3P) + M \tag{1.25}$$

Les atomes d'oxygène dans l'état fondamental se recombinent rapidement avec O_2 pour former O_3.

$$O(^3P) + O_2 + M \rightarrow O_3 + M \tag{1.26}$$

Les 10% restants d'atomes d'oxygène excités réagissent alors avec H_2O pour former deux radicaux hydroxyle OH

$$O(^1D) + H_2O \rightarrow 2OH \tag{1.27}$$

La photolyse de l'O_3 est donc, avec la photolyse des composés organiques volatils et l'oxydation des hydrocarbures, une des principales sources de concentration de OH dans la troposphère.

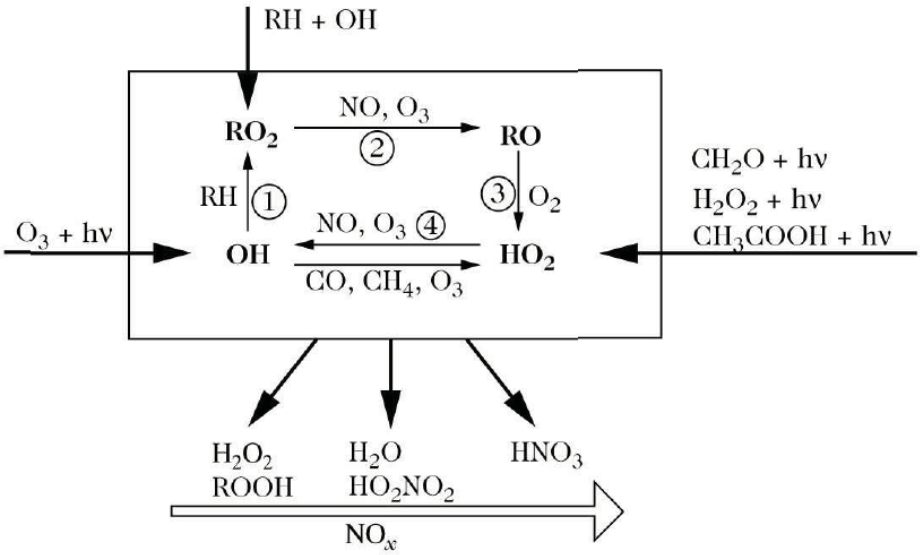


FIGURE 1.4 – Schéma des sources, des puits et des inter-conversions chimiques rapides des radicaux HO_x. Le cycle constitué par les réactions 1, 2, 3 et 4 produit ou détruit de l'ozone en fonction des concentrations de NO présentes dans l'atmosphère (d'après Delmas et al. [2005]).

1.4 Le monoxyde de carbone

Le monoxyde de carbone est émis directement dans l'atmosphère depuis la surface lors des processus de combustion incomplète des hydrocarbures fossiles ou de la biomasse. Il est de plus produit dans l'atmosphère lors de l'oxydation du méthane ou d'autres hydrocarbures. Deux tiers du CO provient des émissions de surfaces et un tiers du CO est produit dans l'atmosphère. Son principal puits provient de sa réaction avec OH. Son rapport de mélange dans la troposphère est de l'ordre de 90 ppb (parties par milliards) mais les concentrations de CO peuvent être cinq à dix fois plus élevées au voisinage des

sources de combustion et dans les panaches. Son temps de vie (qui dépend de la latitude et de l'altitude), de l'ordre de un à deux mois dans la troposphère, lui permet d'être un bon traceur des sources d'hydrocarbures qu'il s'agisse de pollution anthropique ou de feux de biomasse. De par sa production troposphérique, le profil vertical de CO (à l'opposé du profil vertical de O_3) montre de fortes concentrations en troposphère et de très faibles concentrations en stratosphère. Un fort gradient de CO est observé à la tropopause.

1.5 Processus dynamiques entre la stratosphère et la troposphère

Comme cela à été décrit dans l'introduction de ce chapitre, les différentes couches atmosphériques sont définies à l'aide du profil thermique moyen. La tropopause est la limite entre la partie haute de la troposphère et la partie basse de la stratosphère (UTLS : upper troposphere lower stratosphere). Cette délimitation que constitue la tropopause a plusieurs définitions (que nous détaillerons par la suite) variant suivant la latitude et les différents régimes météorologiques. La tropopause peut aussi être conceptualisée comme une couche de transition et non comme une limite bien définie en altitude. L'UTLS est une région s'étendant à environ ± 5 km autour de la tropopause marquant la transition entre la troposphère et la stratosphère.

D'autre part les échanges entre la stratosphère et la troposphère (STE : stratosphère-troposphère exchanges) sont des processus bidirectionnels qui influencent la chimie de l'UTLS [Holton et al., 1995]. La chimie et la dynamique de l'UTLS sont d'un grand intérêt pour l'environnement car ils affectent aussi bien le bilan radiatif de la troposphère que la persistance des régimes météorologiques. On comprend alors qu'une bonne connaissance de la chimie et de la dynamique de l'UTLS permet une meilleure prédictibilité des rétroactions climatiques mais aussi de la situation météorologique.

1.5.1 Définitions de la tropopause

1.5.1.1 Tropopause thermique

Une première définition de la tropopause peut être fixée sur le critère thermique. On définit la tropopause thermique comme l'altitude la plus basse à laquelle le gradient vertical de la température ($\Gamma = -\frac{\partial T}{\partial z}$) remplit la condition $\Gamma < 2^o K/km$ et reste en dessous de cette valeur sur une épaisseur d'au moins 2 km [World Meteorological Organization, 1957]. La tropopause thermique marque le changement dans le gradient vertical de température d'environ $-6^o K/km$ en haute troposphère à une basse stratosphère quasi isotherme. Cette définition de la tropopause est utile pour détecter la discontinuité verticale de la stabilité verticale de l'atmosphère représentée par :

$$N^2 = \frac{g}{\theta}\frac{\partial \theta}{\partial z} = \frac{g}{T}(\Gamma_d - \Gamma) \tag{1.28}$$

où N est la fréquence de Brunt-Väisälä, g l'accélération de la pesanteur, θ la température potentielle (voir partie 1.5.1.2 equation 1.30) potentielle et $\Gamma_d = g/C_p$ est le gradient

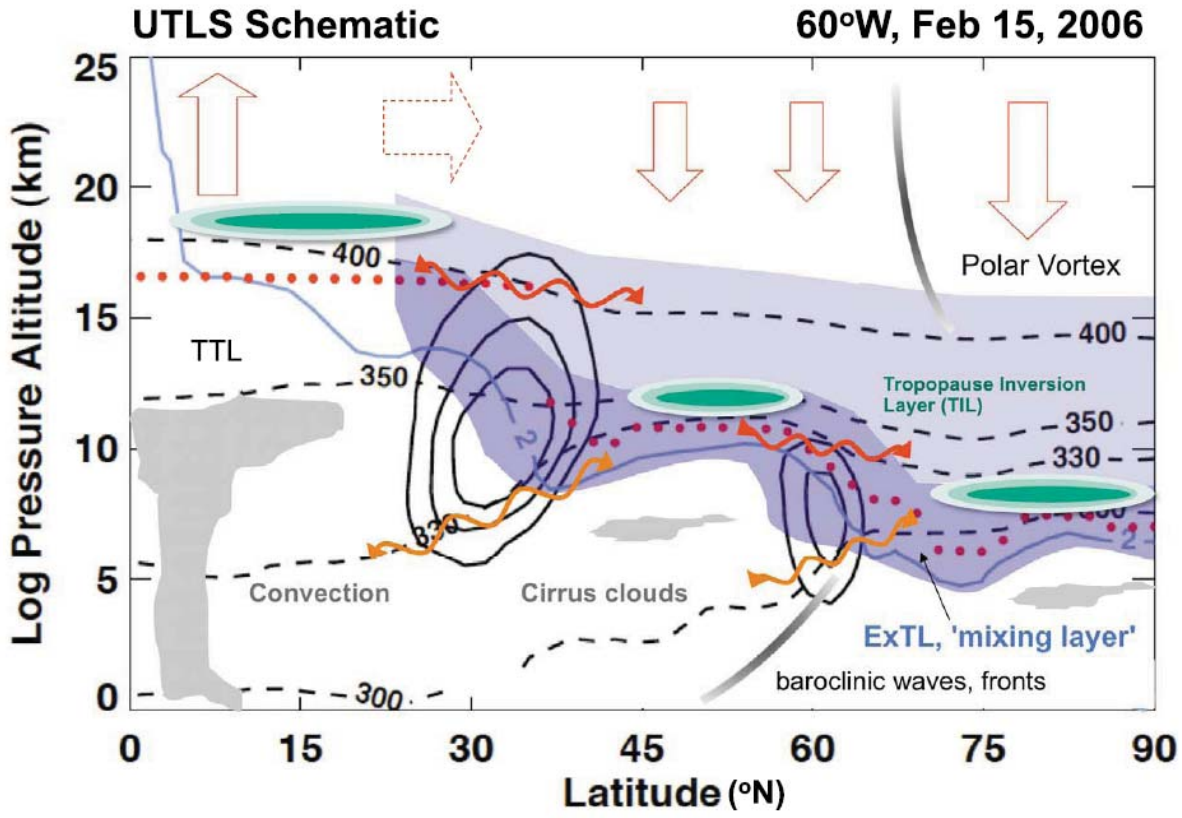


FIGURE 1.5 – Représentation schématique de l'UTLS extra-tropicale de l'hémisphère Nord sur la longitude 60°W le 15 Février 2006. Les contours de vents (lignes noires par intervalles de 10m.s^{-1}), les surfaces de température potentielle (lignes noires en tirets), la tropopause thermique (points rouges), et la tropopause dynamiques (ligne bleu claire) sont représentés. La région en bleu clair représente l'UTLS extra-tropicale, en bleu foncé la couche de transition, en vert les maxima de stabilité verticale et en gris les nuages et les fronts. Les flèches rouge et oranges ondulés montrent les échanges quasi-isentropiques qui, respectivement franchissent ou non la tropopause. Les flèches rouges plus larges montrent la circulation stratosphérique moyenne de Brewer-Dobson (d'après Gettelman et al. [2011]).

de température adiabatique de l'air sec. La tropopause thermique détermine donc la limite entre l'air stratifié ayant une forte stabilité verticale (N^2 grand) caractéristique de la stratosphère et l'air ayant une faible stabilité verticale (N^2 faible) caractéristique des fortes vitesses verticales observés en troposphère. La définition de la tropopause thermique donne souvent plusieurs occurrences sur un même profil vertical. Par ce fait il est souvent difficile d'obtenir une surface tridimensionnelle continue de la tropopause thermique, ce qui la rend assez mal adaptée pour l'étude de certain phénomènes dynamiques comme la caractérisation des échanges de masses d'air entre la stratosphère et la troposphère.

1.5.1.2 Tropopause dynamique

Une définition dynamique de la tropopause à été introduite par [Hoskins et al., 1985]. Elle est basée sur la vorticité potentielle d'Ertel (noté PV pour Potential Vorticity) qui s'écrit sous la forme :

$$PV = \frac{\xi_a . \nabla\theta}{\rho} \tag{1.29}$$

où ρ est la masse volumique et ξ_a la vorticité absolue qui correspond au rotationnel du champ de la vitesse absolue. $\nabla\theta$ est le gradient de la température potentielle θ, température prise par une particule d'air sec amenée de façon adiabatique au niveau de pression standard P_s (1000 hPa) :

$$\theta = T\frac{P_s}{P}^{\frac{R}{C_p}} \tag{1.30}$$

avec T la température de la particule au niveau de pression P, R la constante spécifique de l'air sec (287.15 $J.kg^{-1}.K^{-1}$) et C_p la chaleur massique à pression constante de l'air sec (1005 $J.kg^{-1}.K^{-1}$). De manière générale la PV est, de manière conventionnelle, calculée à partir des coordonnées verticales isentropiques. La PV sur une surface isentrope est calculée de la manière suivante :

$$PV = \frac{\xi_{r\theta} + f}{\rho}\frac{\partial\theta}{\partial P} = N^2\frac{\theta}{\rho g}(\xi_{r\theta} + f) \tag{1.31}$$

où f est le paramètre de Coriolis, $\xi_{r\theta}$ représente la composante verticale la vorticité relative sur une surface isentrope θ. Cette relation montre clairement que la PV est proportionnelle à la stabilité statique N^2. La PV est un bon traceur dynamique du mouvement des masses d'air car elle est conservée lors de tout mouvement sans frottement et adiabatique (mouvement sur une surface à θ constante). Les valeurs de PV qui marquent la tropopause aux latitudes extra-tropicales se situent entre 1 PVU et 3 PVU (avec l'unité de vorticité potentielle définie par 1 PVU = $10^-6 m^2.s^{-1}.K.kg^{-1}$) là où se trouve de forts gradient de PV isentropes.

Les deux definitions de la tropopause que nous avons vues sont illustrés par la figure 1.5, qui montre leurs localisations caractéristiques en altitude suivant la latitude.

1.5.1.3 Tropopause chimique

Comme nous l'avons vu dans ce chapitre, la stratosphère et la troposphère sont deux régions de l'atmosphère chimiquement très distinctes. Le changement abrupt de la concentration des gaz trace entre la haute troposphère et la basse stratosphère dans les régions extra-tropicales, met en évidence un minimum de mélange vertical au niveau de la tropopause. Le fort gradient de stabilité verticale à la tropopause associé à une basse stratosphère quasi isotherme crée un barrière naturelle aux déplacements verticaux. Cela implique que des processus diabatiques sont nécessaires pour franchir la barrière dynamique que constitue la tropopause. La tropopause va donc appliquer une forte contrainte sur les processus de mélange verticaux et donc générer de fort gradients verticaux sur les composés chimiques de l'atmosphère, qu'ils soient plutôt d'origine troposphériques (par exemple CO) ou stratosphériques (par exemple O_3). Bethan et al. [1996] a proposé un jeu de diagnostics pour définir le gradient d'ozone caractéristique de la tropopause en utilisant les valeurs d'ozone et le gradient vertical de temperature. En utilisant ces méthodes le gradient caractéristique d'ozone définissant la tropopause à été trouvé à 800 m en dessous

de la tropopause thermique, pour un ensemble de mesures au dessus de l'Europe.

L'étude du changement chimique à la tropopause à été approfondi en étudiant les corrélations entre un 'traceur' troposphérique et un 'traceur' stratosphérique dans la région de l'UTLS. Par exemple, Zahn et al. [2000] à utilisé les corrélations entre O_3 et CO pour localiser l'altitude caractéristique du changement dans la corrélation O_3-CO qui peut être considérée comme la localisation de la tropopause chimique. Pan et al. [2004] à ensuite examiné de manière plus statistique les corrélation entre traceurs troposphérique et stratosphérique et met évidence que la tropopause chimique se situe aux alentours de la tropopause thermique aux moyennes latitudes (voir figure 1.6).

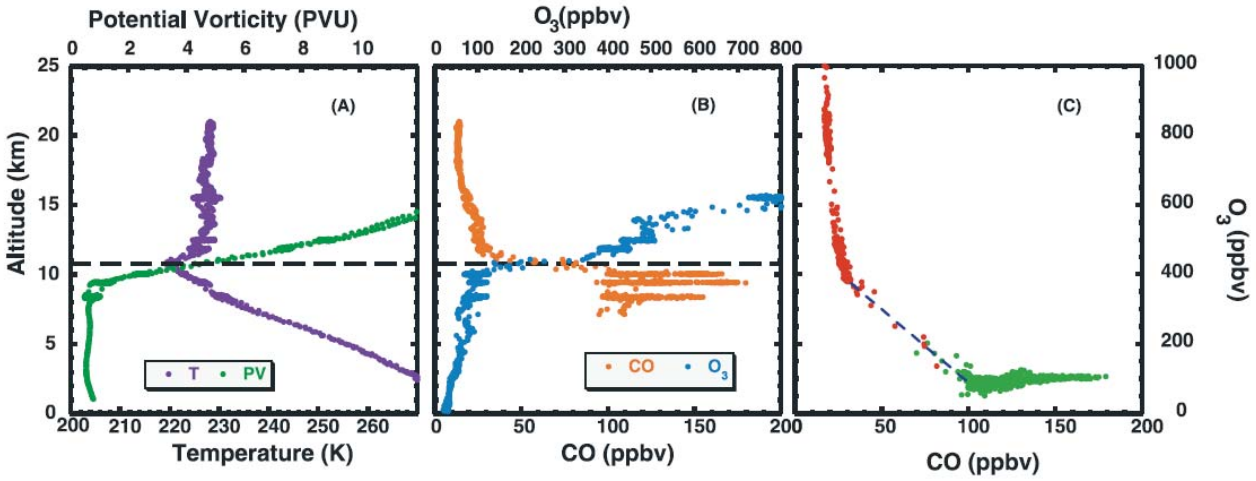


FIGURE 1.6 – Profils issus de mesures aéroportés montrant la region de transition dynamique et chimique au niveau de la tropopause. La tropopause thermique est représentée en pointillées (d'aprés Pan et al. [2004]).

1.5.2 Échanges entre la stratosphère et la troposphère

Les processus d'échanges de masses d'air entre la troposphère et la stratosphère (STE) produisent des modifications considérables dans les profils verticaux des gaz dans l'atmosphère. Ces échanges traduisent, par exemple, une source naturelle d'ozone en troposphère depuis la stratosphère. La redistribution des gaz minoritaires provoque des effets radiatifs et dynamiques secondaires, qui influencent les température de la basse stratosphère et donc la hauteur de la tropopause. Ces STE se développent sur de petites échelles spatiales mais sont globalement importants et ont une forte influence sur les bilans de nombreuses espèces. Bien que la tropopause constitue au premier ordre une barrière dynamique entre la stratosphère et la troposphère, des échanges lents de matière se produisent à travers la tropopause. Ils sont de 5 à 10 ans pour les échanges de la troposphère vers la stratosphère, qui se produisent surtout dans les tropiques et, de 1 à 2 ans pour les échanges de la stratosphère vers la troposphère, qui se produisent surtout aux moyennes latitudes.

Aux tropiques, l'atmosphère est généralement potentiellement instable, moyennant un déplacement initial de la masse d'air sur la verticale. Le chauffage y est dominé par le relâchement de chaleur latente dans les nuages convectifs. Le développement continuel des

nuages convectifs provoque des échanges de chaleur et d'humidité entre les ascendances nuageuses et les subsidences voisines. Le passage de l'air troposphérique vers la stratosphère peut se faire via le phénomène d'*overshoot* : dans un nuage convectif, l'énergie cinétique des particules ascendantes peut être suffisante pour que celles ci dépasse le sommet du nuage et pénètre dans la basse stratosphère. L'*overshoot* convectif observé dans les cumulonimbus bien développés est sans doute une voie de passage importante de la troposphère vers la stratosphère.

Aux moyennes latitudes, ce sont les mouvements quasi-horizontaux (isentropiques) de grande échelle (perturbations baroclines) qui transportent la plus grande part de la chaleur, la convection profonde n'occupant qu'une petite fraction de la troposphère des moyennes latitudes. La tropopause beaucoup plus basse qu'aux tropiques, est ainsi façonnée par les perturbations baroclines, par un processus proche des effets du déferlement des ondes de Rossby planétaires sur le vortex polaire. Les dépressions peuvent 'décrocher' un tourbillon potentiel du vortex polaire sous la forme de longs filaments qui se mélangent ensuite de manière irréversible avec de l'air des plus basses latitudes. Ce processus tend à renforcer la transition entre le vortex de la stratosphère polaire (fortes valeurs de PV) et l'air de la haute troposphère subtropicale (faibles valeurs de PV), donc à accentuer la délimitation de la tropopause. Par ailleurs, on observe parfois des foliation de tropopause. Ces processus de déformation de la tropopause ont pour origine la formation de zones frontales en altitude au voisinage des courants-jets dominant la circulation d'ouest des masses d'air dans les sub-tropiques (30°) et aux moyennes latitudes (50-60°). Ces zones frontales permettent à l'air stratosphérique, dont l'origine se situe au-dessus de 10-12 km d'altitude, de pénétrer assez profondément dans la troposphère en dessous de 5 km d'altitude. Aussi, il faut noter que les échanges entre la stratosphère et la troposphère sont très localisés dans le temps et l'espace. Par exemple, le déferlement des ondes de Rossby aux moyennes latitudes génèrent le processus de filamentation. Ces filaments s'étendent en longueur sur 2000 à 3000 km avec des largeurs inférieures à 100 km. Ces échanges sont en partie réversibles et une partie de l'air peut retourner vers la stratosphère. Cependant l'étirement de ces filaments d'air stratosphériques sur de grandes distances permet à l'air stratosphérique, riche en ozone, de se mélanger à l'air troposphérique par l'intermédiaire de mouvements turbulents à la "frontière" entre stratosphère et troposphère. Pour l'étude des échanges de la stratosphère vers la troposphère aux moyennes latitudes via la modélisation numérique, on comprend alors mieux l'intérêt de l'augmentation de la résolution des modèles représentant l'atmosphère.

Dans la troposphère libre (3 à 10 km), on observe une variabilité temporelle de l'ozone significative de l'ordre de quelques jours. Les mesures par télédétection laser (LiDAR, voir figure 1.8) des concentrations d'ozone montrent assez régulièrement, aux moyennes latitudes, un doublement en quelques heures des concentrations d'ozone entre 5 km d'altitude et la tropopause. Sur la figure 1.8, cela se traduit par une brusque augmentation d'ozone avec l'altitude qui résulte du transport quasi-horizontal des masses d'air de la basse stratosphère polaire chargées en ozone aux moyennes latitudes dans la troposphère libre. Ce transport quasi-horizontal se développe sur des échelles de temps de quelques jours (figure 1.7). On comprend alors le rôle que joue l'ozone au niveau de l'UTLS au niveau de la variabilité et du bilan d'ozone troposphérique. En effet la composition chimique

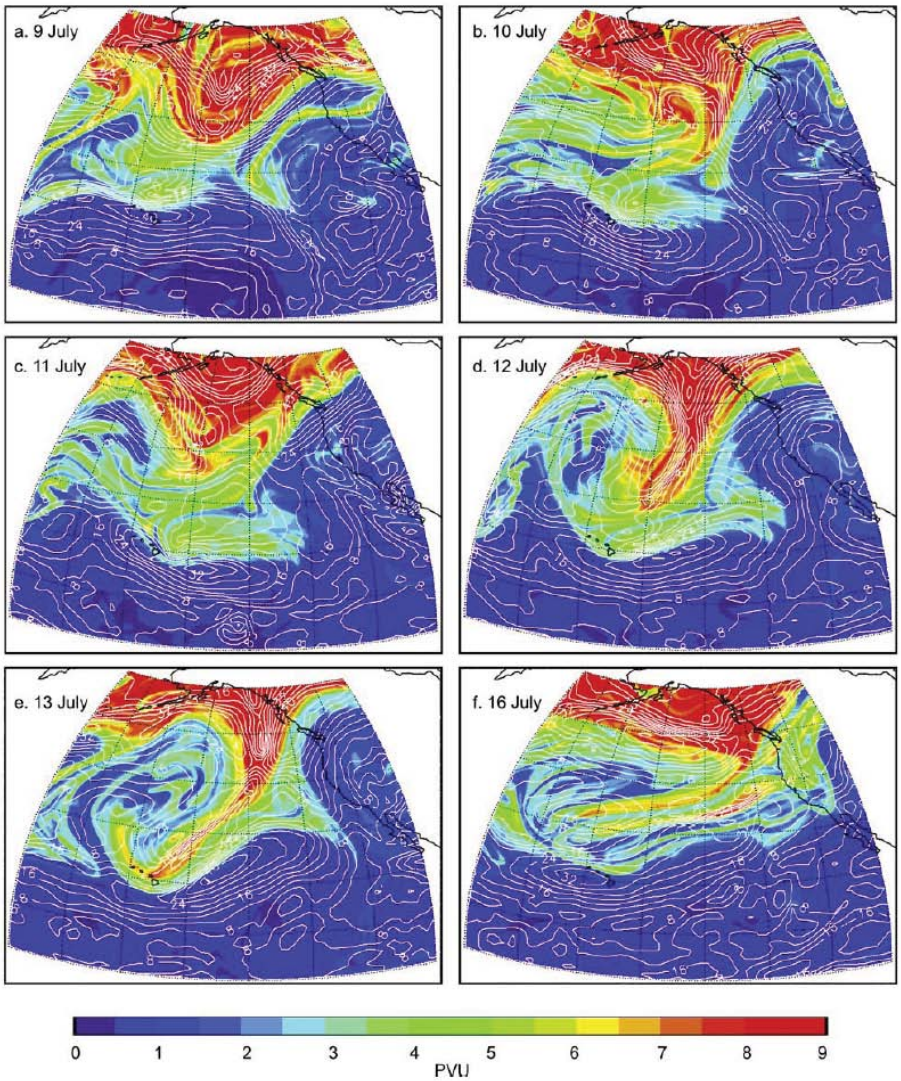


FIGURE 1.7 – Evolution de la PV sur 7 jours au dessus du pacifique nord sur le niveau isentrope 350 K. Au cours du déferlement des ondes de Rossby, les fortes valeurs de PV stratospheriques montrent s'étendent vers l'équateur sous formes de filaments (d'après Leblanc et al. [2004]).

de la troposphère est soumise à la fréquente redistribution des espèces par les phénomènes météorologiques. Ainsi les échanges stratosphère-troposphère aux moyennes latitudes qui suivent les zones frontales sont une composante non négligeable du bilan d'ozone troposphérique. En effet la contribution du transport de l'ozone depuis la stratosphère dans le budget troposphérique est de l'ordre de grandeur de la production nette et du dépôt au sol (figure 1.9).

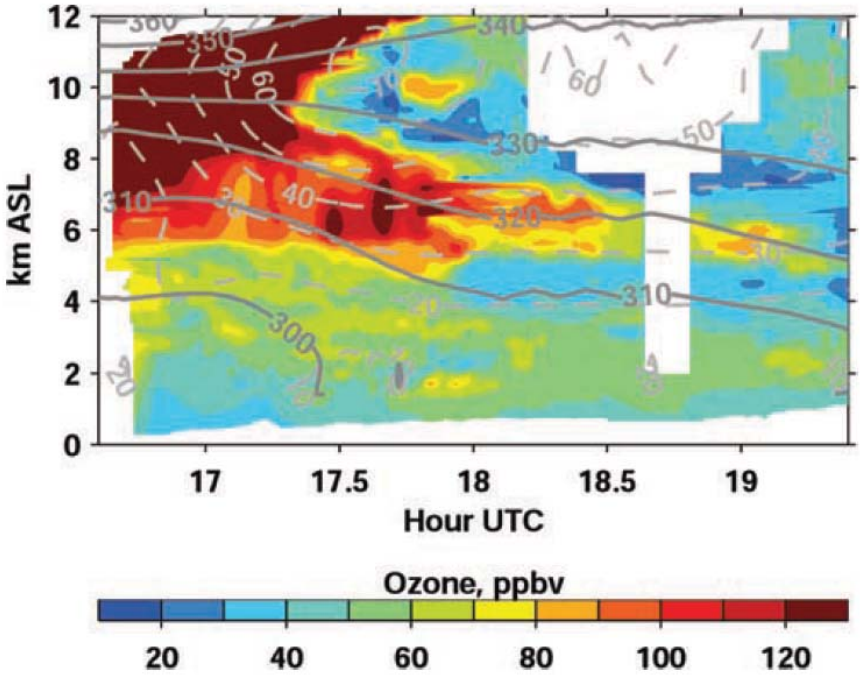


FIGURE 1.8 – Distribution verticale de l'ozone obtenu a partir d'un LiDAR aéroporté. Le vol traverse les États-Unis du nord vers le sud et montre un évènement STE. Les lignes grises en trait plein sont les températures potentielles (K), les lignes grises pointillées est la vitesse du vent en $m.s^{-1}$ (d'après Wimmers et al. [2003]).

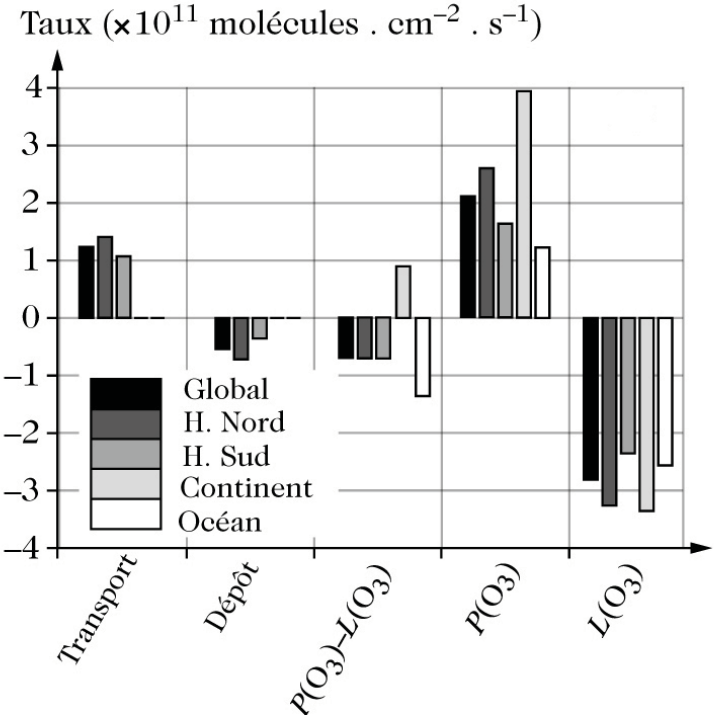


FIGURE 1.9 – Composantes du bilan de l'ozone troposphérique qui incluent le transport depuis la stratosphère et le transport inter-hémisphérique, le dépôt au sol et la production chimique nette $P(O_3)$-$L(O_3)$ (production moins destruction). Figure d'après Delmas et al. [2005] et Crutzen et al. [1999].

Chapitre 2

Modélisation de la chimie de atmosphere et assimilation de données

Sommaire

2.1 La modélisation de la chimie atmosphérique : le modèle MOCAGE 34

2.1.1 La modélisation numérique 34

2.1.2 Le modèle MOCAGE 34

2.2 L'assimilation de données 38

2.2.1 Le 3D-VAR 41

2.2.2 Le 4D-VAR 42

2.2.3 Le 3D-FGAT 44

2.2.4 MOCAGE-PALM 44

2.3 Les mesures chimiques assimilées 45

2.3.1 AURA/MLS 46

2.3.2 MetOp-A/IASI 46

2.3.3 TERRA/MOPITT 47

2.4 Les conditions aux limites avec l'assimilation de données en domaine à air limitée 47

2.1 La modélisation de la chimie atmosphérique : le modèle MOCAGE

2.1.1 La modélisation numérique

La modélisation numérique est un outil important pour comprendre la physique et la chimie de l'atmosphère. Un modèle numérique est constitué d'équations mathématiques ou de relations empiriques, qui permettent de représenter l'état et l'évolution de l'atmosphère, résolues de manière plus ou moins approchée dépendant des moyens de calcul numérique. Les premiers modèles numériques représentant la physique et la chimie de l'atmosphère ont vu le jour il y a une trentaine d'années. Depuis les efforts de recherche et la puissance de calcul en constante évolution ont permis de passer d'une représentation moyenne de l'atmosphère très simplifiée à la modélisation de phénomènes atmosphériques complexes et très localisés dans le temps et l'espace. La finalité de la modélisation de la physico-chimie de l'atmosphère est d'une part, la vérification des hypothèses scientifiques et une connaissance de l'état de l'art par une confrontation des simulations numériques avec une réalité observée, d'autre part la prévision de l'état de l'atmosphère. En physique et chimie de l'atmosphère deux domaines d'applications sont liés à la prévision numérique : la prévision à court terme sur quelques jour voit une application sur les thématiques de pollution et de qualité de l'air alors que la prévision sur plusieurs décennies permet d'avoir une estimation du climat futur. Durant ce travail de thèse le modèle de chimie-transport (figure 2.1) ou "chemical transport model" (CTM) MOCAGE est utilisé.

2.1.2 Le modèle MOCAGE

MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle) est un modèle de chimie-transport développé depuis plus d'une dizaine d'année à Météo-France. Ce modèle permet un représentation tridimensionnelle de l'atmosphère évoluant au cours du temps. Le premier modèle de chimie atmosphérique à Météo-France, MOBIDIC (MOdèle BIDImensionnel de Chimie) [Cariolle, 1982], était un modèle bidimensionnel qui est toujours utilisé pour mettre au point des paramétrisation chimiques. Avec l'augmentation de la puissance de calcul, la représentation tridimensionnelle de la stratosphère chimique devient possible avec le modèle REPROBUS (Reactive Procecesses Ruling the Ozone Budget in the Stratosphere, Lefèvre et al. [1994]). Un schéma chimique adapté à la troposphère RACM (Regional Atmospheric Chemistry Mechanism) sera ensuite ajouté pour constituer le schéma chimique RACMOBUS. Ainsi le modèle MOCAGE est capable de simuler les interactions entre dynamique, physique et chimie dans la stratosphère et dans la troposphère.

2.1.2.1 Schémas physiques et chimiques

Le transport aux échelles résolues et sous-maille est pris en compte dans MOCAGE. Pour le transport résolu, l'advection est basée sur un schéma semi-Lagrangien de [Williamson et Rasch, 1989]. Le schéma complètement Lagrangien suit des parcelles d'air individuelles qui sont transportées par les champs de vents tri-dimensionnels au cours du temps. Cela n'est généralement pas adapté pour une représentation globale de l'atmosphère sur de

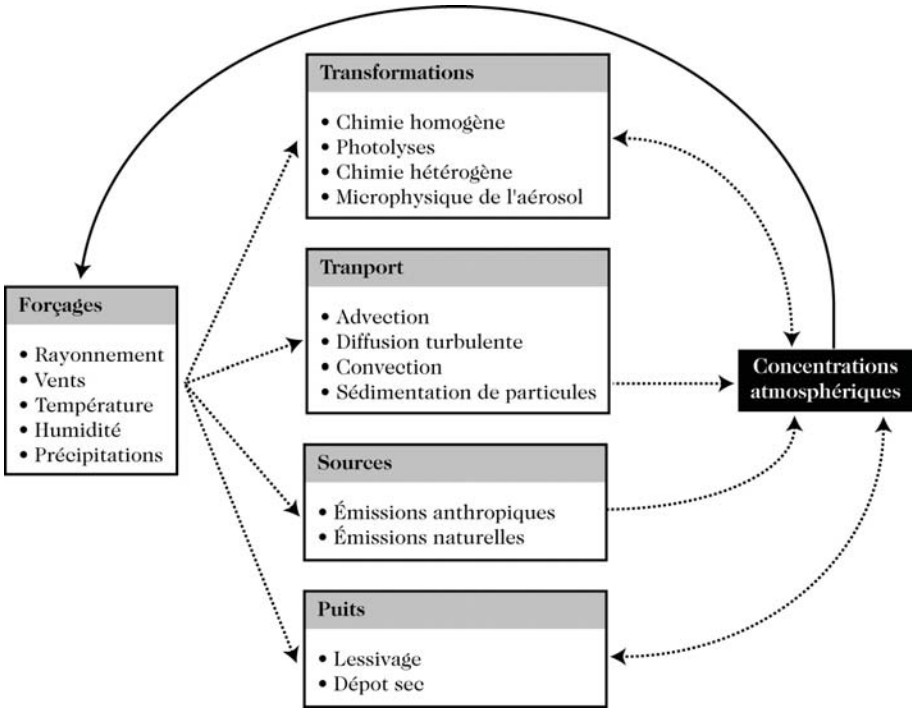


Figure 2.1 – Principaux processus physico-chimiques mis en jeu pour la modélisation numérique de la composition chimique de l'atmosphère d'après Delmas et al. [2005]

longues périodes car il faut advecter un grand nombre de parcelles individuelles, et qui au cours du temps peuvent s'accumuler dans certaines régions de l'atmosphère et laissent d'autres régions sans parcelles à advecter. Le schéma semi-Lagrangien permet d'éviter ce problème en utilisant une grille régulière. A chaque nouveau pas de temps on cherche où se situe la parcelle arrivant sur un point de grille (AP : arrival point) qui provient du précédent pas de temps (DP : departure point, voir figure 2.2). La valeur de DP est obtenue en interpolant les valeurs de la grille autour du point de départ.

La convection et la diffusion turbulente ne sont pas résolues explicitement. Les processus convectifs sont assurés par deux schémas possibles : [Tiedtke, 1989] ou [Bechtold et al., 2001]. La diffusion turbulente est basée sur le schéma de [Louis, 1979]. Ces schémas sont présentés et évalués dans Josse et al. [2004] et dans Pisso et al. [2008].

Les processus d'échange de surface, les émissions et le dépôt sont pris en compte et traités de manière externalisée [Michou et 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 [Giorgi et Chameides, 1986; Mari et al., 2000].

Plusieurs schémas chimiques sont implémentés dans MOCAGE et peuvent être utilisés en fonction des applications envisagées. Pour des applications à de longues simulations ou pour l'assimilation de données sur de longues périodes, deux schémas linéaires pour l'ozone [Cariolle et Déqué, 1986] et le monoxyde de carbone [Claeyman et al., 2010] sont intégrés dans MOCAGE. Ces paramétrisations sont basées sur une linéarisation des tendances chimiques autour d'un état d'équilibre issues d'un schéma photochimique bidimensionnel (MOBIDIC, Cariolle et al. [2008]). Pour des applications de modélisations plus

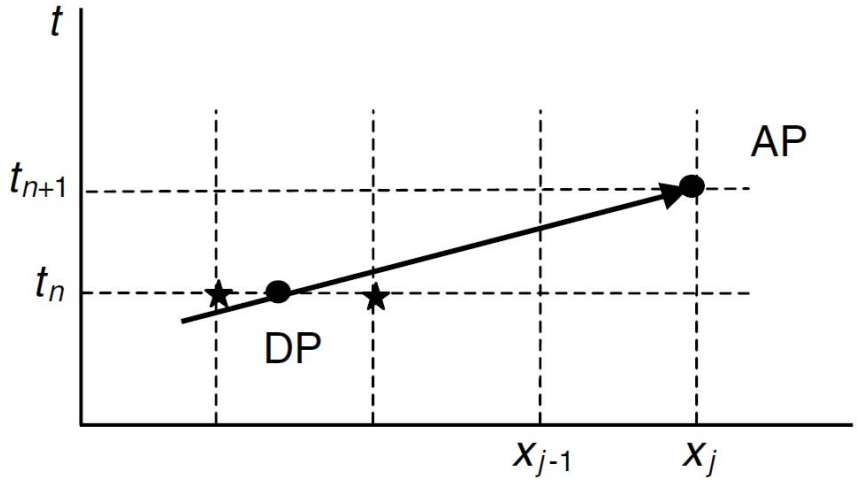


Figure 2.2 – Diagramme schématique du schéma semi-lagrangien. AP (arrival point) représente le point d'arrivée au nouveau pas de temps. DP (departure point) représente le point de départ au précédent pas de temps. La flèche représente l'advection depuis DP jusqu'a AP (d'après Kalnay [2003]).

détaillées de la chimie de l'atmosphère, plusieurs schémas complets sont implémentés. Le schéma stratosphérique REPROBUS contient plus d'une centaine de réactions chimiques en phase hétérogène et homogène et le schéma troposphérique RACM prend en compte les espèces et les réactions chimiques primordiales pour la chimie troposphérique. Le schéma RACMOBUS qui est une combinaison de REPROBUS et de RACM est valable dans la troposphère et dans la stratosphère et contient 119 espèces et 372 réactions.

2.1.2.2 Caractéristiques principales

MOCAGE est donc un modèle tridimensionnel en points de grille avec la possibilité d'effectuer des zooms afin d'augmenter la résolution horizontale sur une région d'intérêt. Le modèle permet de traiter jusqu'à 4 domaines imbriqués (figure 2.3) dont la résolution, dans la configuration, actuelle varie entre 2° (∼200 km) et 0.02° (∼2 km). La configuration multi-échelle permet de couvrir un spectre très large d'applications depuis la qualité de l'air [Dufour et al., 2005; Honoré et al., 2008; Hollingsworth et al., 2008] jusqu'aux simulations stratosphériques climatiques [Teyssèdre et al., 2007].

Dans cette thèse, les configurations retenues sont 2° sur le domaine global et 0.2° sur le domaine Europe (32°N - 72°N ; -16°W - 36°E) (figure 2.4). Le "two-ways nesting" (couplage remontant et descendant) à été implémenté dans MOCAGE. Quand une rétro-trajectoire du schéma semi-Lagrangien a son origine en dehors du domaine imbriqué des interpolation spatiales sont effectuées sur le domaine à plus grande échelle. Le domaine imbriqué est alors influencé par le domaine qui l'entoure. Autrement dit, les conditions aux bords du domaine imbriqué proviennent du domaine à plus grande échelle. On parle alors de couplage descendant. De manière réciproque, une maille de résolution plus basse est modifiée selon les valeurs de toutes les mailles de résolution plus fine qu'elle contient. Par conséquent les structures qui apparaissent dans le domaine imbriqué peuvent alors

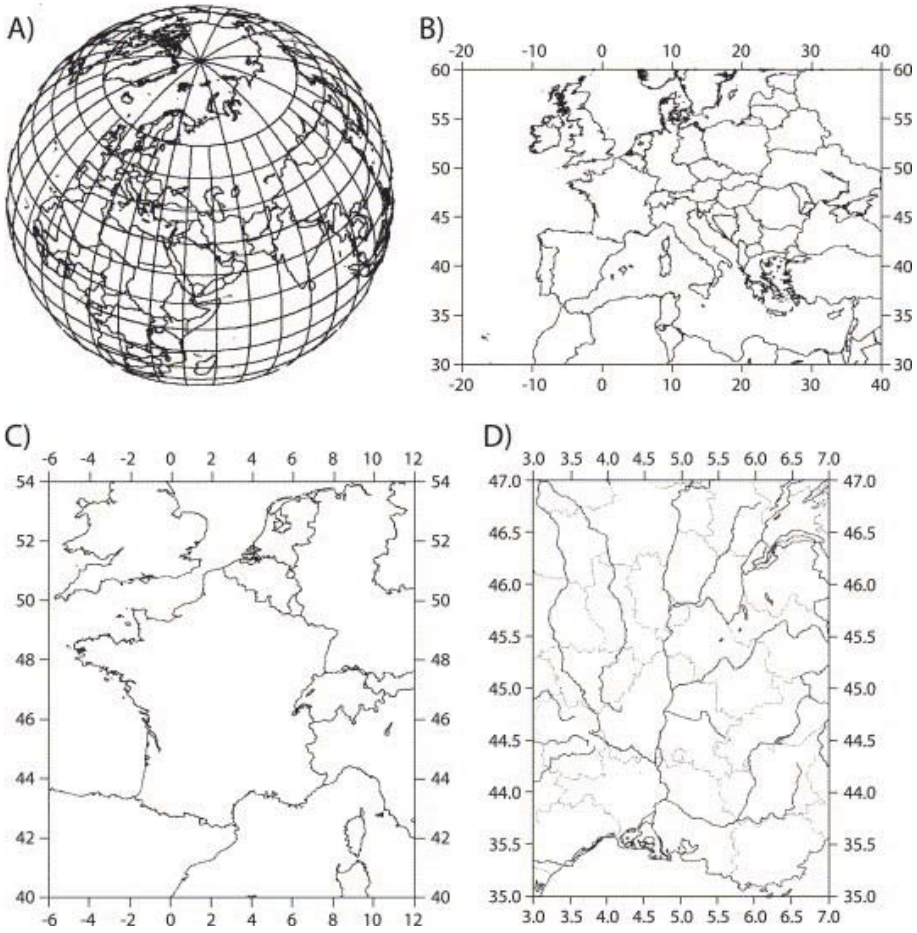


Figure 2.3 – Domaines MOCAGE de l'échelle globale à méso-échelle : (A) domaine "global" à 2° de résolution horizontale ; (B) domaine "continental" à 1° ; (C) domaine "régional" à 0.25° ; et (D) domaine "zoom" à 0.08° (d'après Dufour et al. [2005]).

avoir un impact sur le domaine à plus grande échelle (voir chapitre 2 partie 2.4). On parle alors de couplage remontant.

MOCAGE est un CTM "offline" : nécessitant des champs météorologiques archivés issus de modèles de prévisions du temps, ou de modèles de climat pour alimenter son schéma d'advection semi-Lagrangien (par exemple, le vent pour le transport) et ses paramétrisations physiques et chimiques (par exemple, la température pour le calcul des vitesses des réactions chimiques). Les champs de vents horizontaux, de température, de pression et d'humidité proviennent des modèles ARPEGE, ALADIN (Aire Limitée et Adaptation Dynamique) et AROME (Applications de la Recherche à l'Opérationnel à Méso-Echelle), les modèles de prévision numérique du temps de Météo-France ou du modèle du Centre Européen de Prévisions Météorologiques à Moyen Terme. Dans ce travail de thèse, les forçages atmosphériques proviennent de ré-analyses ARPEGE. Ce qui signifie que le modèle ARPEGE est corrigé par des mesures (vent, température, humidité, pression) par l'utilisation de l'assimilation de données (dont nous expliquerons le principe dans la suite du chapitre). ARPEGE est dans une configuration de grille horizontale gaussienne T798, ce qui correspond à une résolution variant de 10.5 km au dessus de la France à 60 km au dessus du Pacifique-Sud. Les forçages atmosphériques sont ensuite interpolés aux différentes résolutions du Modèle MOCAGE. La vitesse verticale du vent est recalculée par MOCAGE pour s'assurer de la non divergence afin de conserver la masse des constituants chimiques. MOCAGE recalcule également la nébulosité et l'humidité de la stratosphère puisque ce paramètre météorologique est également un paramètre chimique important à ces altitudes. Sur la verticale, dans sa version standard, MOCAGE possède 47 niveaux de la surface jusqu'à 5 hPa (figure 2.5). Il existe une version en 60 niveaux étendue dans la stratosphère jusqu'à 0.1 hPa. Dans ce travail de thèse, la version à 47 niveaux est utilisée. Les coordonnées verticales sont des coordonnées hybrides combinant les systèmes à coordonnées de pression et à coordonnées σ de telle sorte que la couche la plus proche de la surface épouse le relief. La résolution verticale du modèle varie de quelques mètres à la surface pour atteindre 800 m au niveau de l'UTLS.

2.2 L'assimilation de données

L'objectif des méthodes d'assimilation de données est de combiner de façon statistiquement optimale une information *a priori*, appelée "ébauche" et qui provient généralement des simulations d'un modèle numérique, avec des observations [Talagrand, 1997]. Ces deux sources d'information sont caractérisées par leurs erreurs associées. Le produit de cette opération est appelée "analyse". L'analyse correspond à une correction de l'ébauche en mesurant l'écart entre la prévision et les observations. La correction de l'ébauche prend en compte les incertitudes liées à l'ébauche et aux observations. L'analyse présente un grand intérêt car elle représente un diagnostic cohérent de l'atmosphère, plus près de la réalité qu'une sortie de modèle et plus complet qu'un ensemble d'observations généralement hétérogène en espace et en nature. De plus l'analyse peut également être utilisée comme état initial d'une prévision ou pour évaluer la qualité d'une prévision.

L'assimilation de données a été introduite en chimie atmosphérique par Fisher et Lary [1995] dans la stratosphère puis par Elbern et al. [1997] dans la troposphère. Lahoz

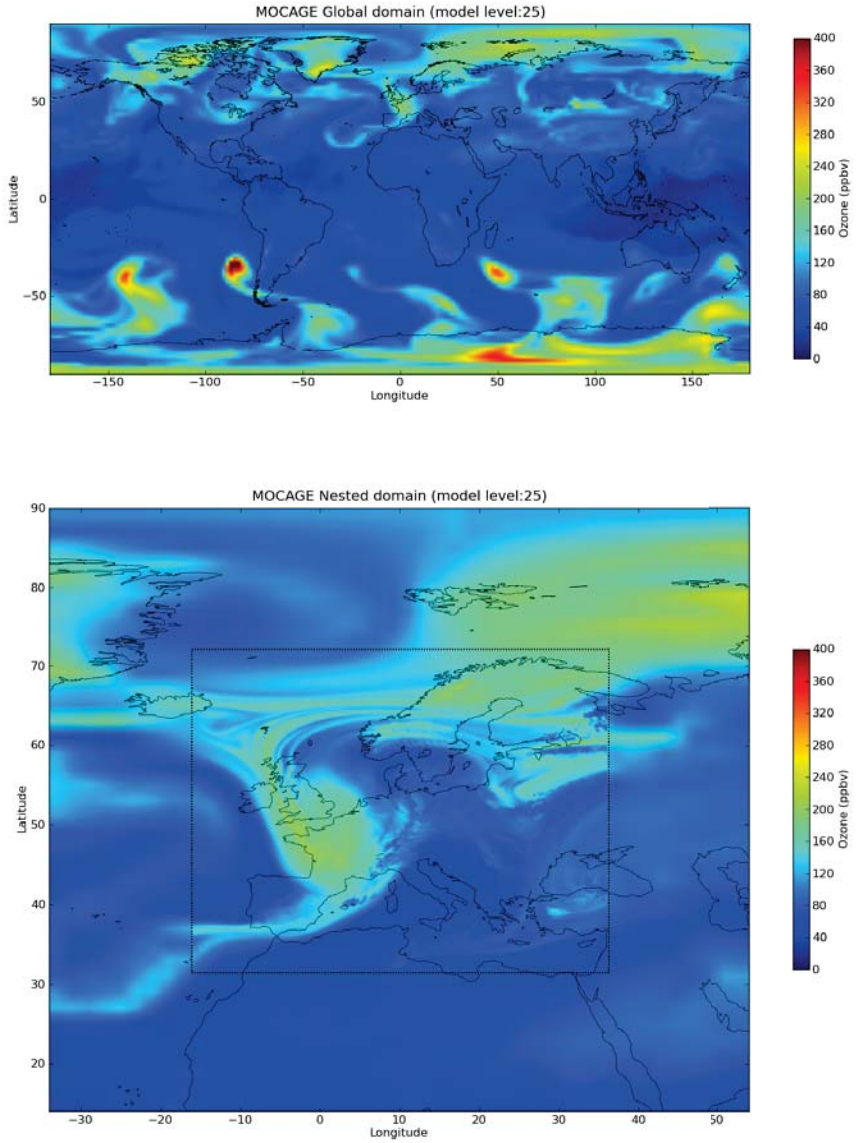


Figure 2.4 – Champs d'ozone au niveau modèle 25 (qui se situe entre 200 et 300 hPa) pour le domaine global (haut) et le domaine imbriqué (bas) le 17 juillet 2009 à 15 :00 UT. La concordance des champs entre le domaine global et le domaine imbriqué illustrent le "two-ways nesting".

.

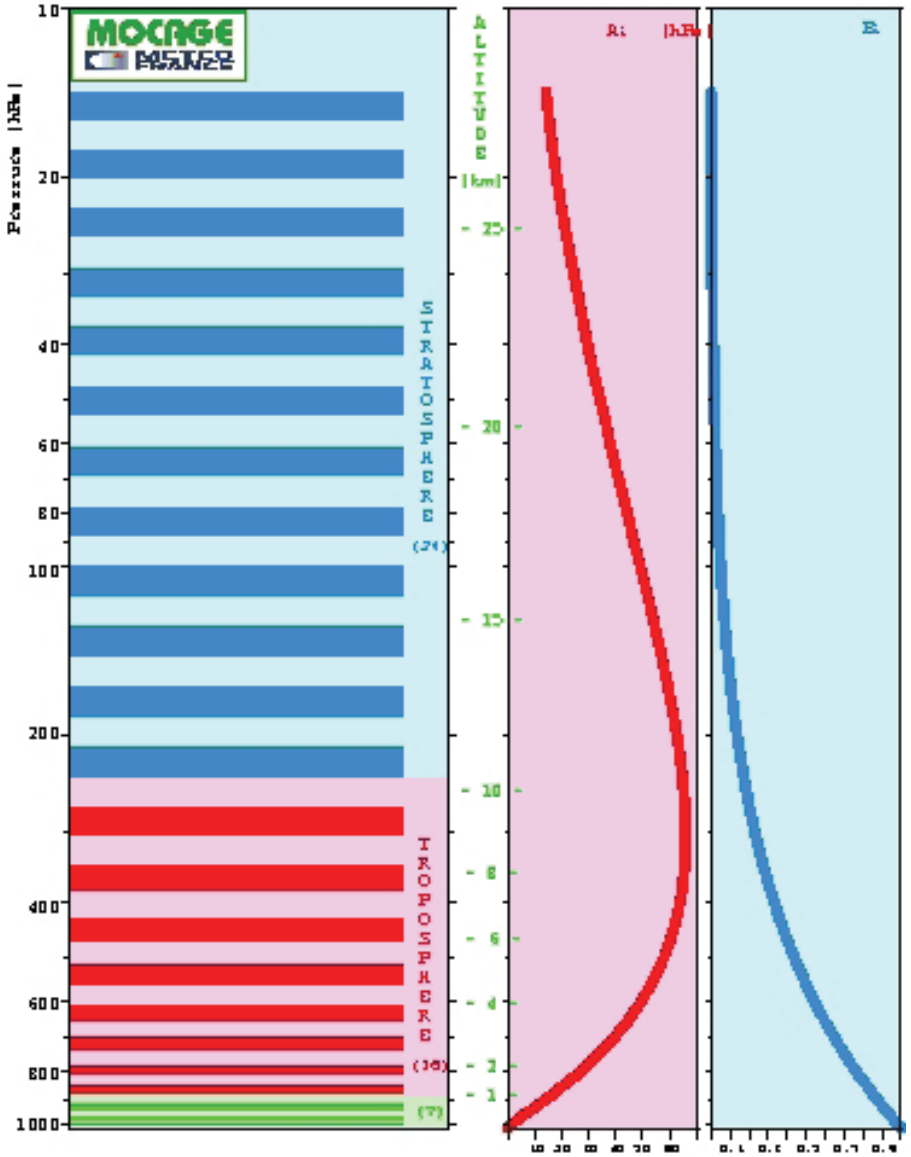


Figure 2.5 – Les 47 niveaux verticaux hybrides (σ,P) dans la version standard du modèle *MOCAGE*. A gauche le découpage de l'atmosphère en 47 couches, à droite les coefficients A_i et B_i permettant de calculer la pression de chaque niveau i suivant la formule A_i+B_i.P_s, avec P_s la pression de surface.

et al. [2007] montrent que l'assimilation de données observées dans un modèle de chimie transport permet d'obtenir un état plus réaliste de l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère.

Il existe deux grandes familles de techniques d'assimilation de données :

- l'assimilation séquentielle est basée sur la théorie d'estimation linéaire statistique. Elle consiste à ajuster une ou plusieurs variables du modèle par rapport aux observations au fur et à mesure de leur disponibilité dans le temps, sans jamais utiliser d'observations futures [Kalman, 1960]
- l'assimilation variationnelle est basée sur la théorie de l'optimisation. Elle consiste à utiliser l'ensemble des observations passées et futures sur une période déterminée, appelée fenêtre d'assimilation, pour obtenir un état initial optimum permettant une trajectoire du modèle la plus proche des observations [Dimet et Talagrand, 1986].

Dans ce travail de thèse, l'approche variationnelle est la méthode utilisée. Cette méthode consiste à minimiser une fonctionnelle $J(x)$, appelée fonction coût.

$$J(x) = J_b + J_o + J_c \tag{2.1}$$

L'analyse x_a correspond à la valeur de x qui minimise cette fonctionnelle J. Cette fonction coût est décomposée en trois fonctions coût partielles : J_b est relative à l'écart à l'ébauche (ou background), J_o est relative à l'écart aux observations et J_c est optionnelle et correspond à la prise en compte de contraintes physiques. Il existe différentes méthodes variationnelles dont le 3D-VAR, le 4D-VAR et le 3D-FGAT.

2.2.1 Le 3D-VAR

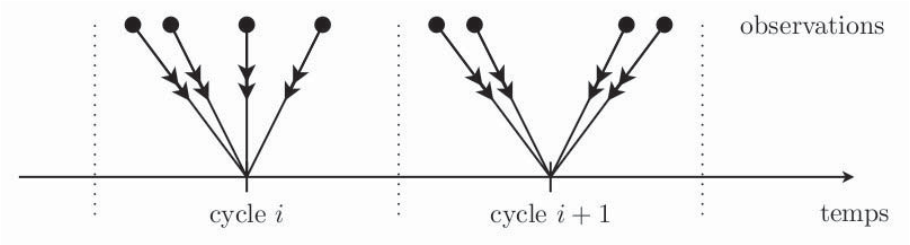


Figure 2.6 – Répartition des observations dans un schéma 3D-VAR classique d'après [Dajet, 2007]

Pour la méthode variationnelle du 3D-VAR (figure 2.6), on ne considère pour chaque assimilation que l'ensemble des observations réalisées au voisinage de l'instant où l'on réalise l'assimilation [Courtier et al., 1991]. La procédure de minimisation permet de modifier l'état initial x_b, pour obtenir l'analyse x_a qui minimise l'écart avec les observations. La fonction coût peut s'écrire sous la forme :

$$J(x) = \frac{1}{2}(x - x_b)^T B^{-1}(x - x_b) + \frac{1}{2}(y - Hx)^T R^{-1}(y - Hx) \tag{2.2}$$

où B et R correspondent respectivement à la matrice de variances-covariances d'erreur d'ébauche et d'observation. H est l'opérateur d'observation : il permet de passer de l'espace du modèle vers l'espace des observations.
Pour minimiser la fonction coût, il est préférable de connaître son gradient. Ce gradient est donné par la relation :

$$\nabla J(x) = B^{-1}(x - x_b) - \mathbf{H}^T R^{-1}(y - Hx) \tag{2.3}$$

L'opérateur H^T représente la matrice transposée de la matrice associée à l'opérateur linéaire H. Lorsque l'opérateur d'observation n'est pas linéaire, alors $\mathbf{H}^T$ correspond à la matrice transposée de l'opérateur tangent linéaire à H en x, noté $\mathbf{H}$:
Il est également possible de substituer à l'état x, l'incrément :

$$\delta x = x - x_b \tag{2.4}$$

On va alors chercher l'écart δx qui minimise la fonction coût J qui, dans le cas linéaire peut se réécrire :

$$J(\delta x) = \frac{1}{2}(\delta x)^T B^{-1}(\delta x) + \frac{1}{2}(d - \mathbf{H}\delta x)^T R^{-1}(d - \mathbf{H}\delta x) \tag{2.5}$$

où $d = y - Hx_b$ représente la distance, dans l'espace des observations, entre les observations et l'ébauche. d est appelé vecteur d'innovation ou *misfit*. Le gradient de la fonction coût est alors calculé de la façon suivante :

$$\nabla J(\delta x) = B^{-1}(\delta x) - \mathbf{H}^T R^{-1}(d - \mathbf{H}\delta x) \tag{2.6}$$

La valeur analysée est alors calculée par la formule $x_a = x_b + \delta x$. La méthode du 3D-VAR ne prend pas en compte la dimension temporelle afin de réaliser l'analyse. Il s'agit donc d'une limitation car elle ne peut pas prendre en compte la cohérence des observations qui sont successivement assimilées dans le temps.

2.2.2 Le 4D-VAR

La méthode variationnelle du 4D-VAR (figure 2.7) correspond à une extension temporelle complète du 3D-VAR. Elle vise à obtenir une trajectoire optimale sur une fenêtre temporelle [Thépaut et Courtier, 1991]. Cette technique permet de prendre en compte l'ensemble des observations au sein d'une fenêtre temporelle. La minimisation de la fonction coût permet d'optimiser l'écart entre la simulation et l'ensemble des observations de la fenêtre d'assimilation. La méthode du 4D-VAR implique l'adjoint du modèle linéaire-tangent $\mathbf{M}^*$ pour prendre en compte la distribution temporelle des observations et propager l'information apportée par les observations à l'instant initial de la fenêtre d'assimilation. Dans la forme incrémentale, l'opérateur d'observation et le modèle sont également linéarisés au premier ordre au voisinage de l'ébauche :

$$x_i \sim x_b + \mathbf{M}_{i,0}\delta x \tag{2.7}$$

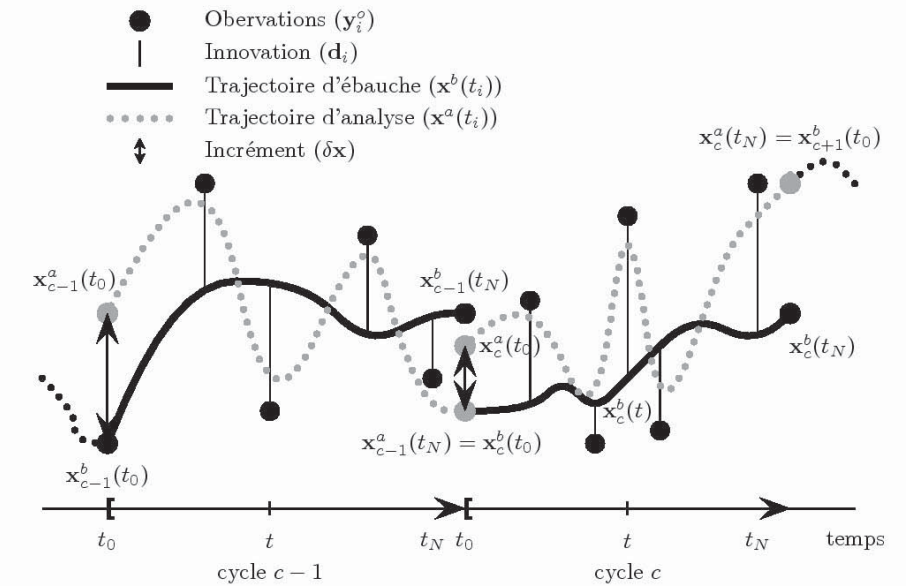


FIGURE 2.7 – Principe de la technique variationnelle du schéma 4D-VAR d'après [Dajet, 2007].

$$Hx \sim Hx_b + \mathbf{H}_i\mathbf{M}_{i,0}\delta x \tag{2.8}$$

Pour chaque observation y_i, on calcule l'équivalent modèle $M_{i,0}$ entre le temps 0 et le temps i à partir de l'ébauche x_b. Le vecteur d'innovation est alors égal à :

$$d_i = H_i M_{i,0} x_b - y_i \tag{2.9}$$

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

$$J(\delta x) = \frac{1}{2}(\delta x)^T B^{-1}(\delta x) + \frac{1}{2}\sum_i (d_i - \mathbf{H}_i\mathbf{M}_{i,0}\delta x)^T R_i^{-1}(d_i - \mathbf{H}_i\mathbf{M}_{i,0}\delta x) \tag{2.10}$$

et son gradient :

$$\nabla J(\delta x) = B^{-1}\delta x - \sum_i \mathbf{M}_{i,0}^*\mathbf{H}_i^T R_i^{-1}(d_i - \mathbf{H}_i\mathbf{M}_{i,0}\delta x) \tag{2.11}$$

Dans la méthode incrémentale du 4D-VAR, l'incrément est propagé dans le temps avec le modèle linéaire-tangent. Le calcul du gradient nécessite l'intégration de l'adjoint du modèle linéaire-tangent sur toute la fenêtre d'assimilation. A la fin de la minimisation, l'incrément obtenu est ajouté à l'ébauche au début de la fenêtre. Le modèle est ensuite intégré sur la fenêtre d'assimilation, prenant comme état initial l'ébauche plus l'incrément, pour obtenir la trajectoire analysée.

2.2.3 Le 3D-FGAT

A mi-chemin entre le 3D-VAR et le 4D-VAR, il est possible d'établir une méthode qui prend en compte non pas une seule mesure à l'instant t mais un ensemble de mesures effectuées dans une fenêtre temporelle. Cette méthode se nomme 3D-FGAT (First Guess

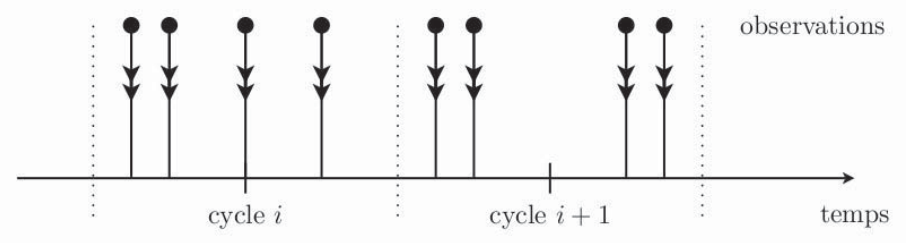


Figure 2.8 – Répartition des observations dans un 3D-FGAT d'après [Dajet, 2007]

at Appropriate Time) car on y fait l'hypothèse que l'incrément est constant sur toute la fenêtre d'assimilation [Fisher et Andersson, 2001]. Le 3D-FGAT calcule l'écart entre le modèle et les observations au temps des observations mais propose une correction valable sur toute la fenêtre d'assimilation contrairement au 4D-VAR qui utilise l'adjoint du modèle (figure 2.8).
L'opérateur d'observation H_i est linéarisé au premier ordre au voisinage de l'ébauche :

$$Hx \sim Hx_b + \mathbf{H}_i \delta x \tag{2.12}$$

La fonction coût prend alors en compte l'ensemble des vecteurs d'innovation aux différents temps i, et peut alors s'écrire de la façon suivante en utilisant la formulation incrémentale :

$$J(\delta x) = \frac{1}{2}(\delta x)^T B^{-1}(\delta x) + \frac{1}{2}\sum_i (d_i - \mathbf{H}_i \delta x)^T R_i^{-1}(d_i - \mathbf{H}_i \delta x) \tag{2.13}$$

Son gradient s'écrit alors :

$$\nabla J(\delta x) = B^{-1}\delta x - \sum_i \mathbf{H}_i^* R_i^{-1}(d_i - \mathbf{H}_i \delta x) \tag{2.14}$$

L'incrément obtenu lors de la minimisation est alors ajouté à l'ébauche, généralement au début ou au milieu de la fenêtre d'assimilation, puisqu'il est supposé constant sur la fenêtre. L'approximation faite dans le 3D-FGAT implique que le modèle linéaire-tangent vaut l'identité. L'adjoint du modèle linéaire-tangent n'intervient pas dans la minimisation, bien que l'innovation soit toujours calculée avec le modèle direct non-linéaire contrairement au 4D-VAR, dont la formulation a été présentée dans la section précédente. C'est cette méthode variationnelle qui est utilisée dans ce travail de thèse.

2.2.4 MOCAGE-PALM

La technique d'assimilation utilisée dans cette thèse est le 3D-FGAT qui est piloté par le logiciel PALM (Projet d'Assimilation par Logiciel Multi-Méthodes)[Buis et al., 2006]. PALM est un coupleur dynamique basé sur un formalisme modulaire décrivant l'algorithme d'assimilation en terme de flux de données entre des objets appelés unités. Les unités peuvent être intégrées dans une chaîne appelée branche. Dans le cas présent, une branche est consacrée au modèle et une deuxième branche est consacrée au traitement des observations. Chaque branche utilise un nombre ajustable de processeurs ce qui permet

d'optimiser le fonctionnement parallèle de l'application. MOCAGE-PALM est développé conjointement à Météo-France, au CERFACS et au Laboratoire d'Aérologie avec le soutien d'Ether et du LEFE (projets ADOMOCA 1 et 2). Massart et al. [2005 2007] présentent de manière détaillée les éléments de la méthode du 3D-FGAT appliquée à l'ozone stratosphérique. MOCAGE-PALM a également été utilisé dans différentes études de l'atmosphère en relation avec le trou d'ozone du vortex polaire Arctique [El Amraoui et al., 2008b], les échanges entre tropiques et moyennes latitudes [Bencherif et al., 2007], les échanges entre stratosphère et troposphère [Semane et al., 2007], et les échanges entre le vortex polaire et les moyennes latitudes [El Amraoui et al., 2008b]. Deux études ont également été faites en utilisant l'ozone [Massart et al., 2009] et l'acide nitrique de IASI [Ricaud et al., 2009]. Plus récemment, [El Amraoui et al., 2010], a permis de diagnostiquer un échange entre la stratosphère et le troposphère par assimilation de données satellites de CO dans la troposphère et de O_3 mesuré dans la stratosphère Cette étude a montré que l'assimilation de mesures satellites de CO et O_3 permet de mieux représenter dans le modèle MOCAGE, un air pauvre en CO et riche en O_3 descendant depuis la stratosphère. Une partie du travail de cette thèse reprend les travaux de [El Amraoui et al., 2010] afin de quantifier l'apport de l'assimlation de données pour la caractérisation de la couche de transition entre la stratosphère et la troposphère extra-tropicale (ExTL : Extra-tropical Transition Layer).

2.3 Les mesures chimiques assimilées

Les différentes aspects environnementaux abordés dans le chapitre précédent ont fait de l'ozone, l'un des constituants atmosphériques les plus mesurés. Dans ce travail de thèse nous avons assimilé des mesures satellite. Celles ci permettent d'obtenir une couverture globale mais aussi un échantillonnage spatio-temporel très important. Les principes de mesure sont divers et il existe deux principales familles de visée pour des instruments à bord de satellites (figure 2.9) : les visées au nadir qui concernent toute visée d'instrument atteignant la surface de la Terre, et les visées au limbe, pour lesquelles le cheminement du rayonnement ne heurte pas la surface terrestre.

Les visées au nadir fournissent des renseignements sur les couches troposphériques, et les visées au limbe sur les couches plus élevées, de la haute troposphère à la mésosphère, en passant par la stratosphère. De manière générale la visée au limbe donne une information détaillé sur la verticale alors que l'échantillonnage horizontal est pauvre. Dans la visée au limbe, 90% du signal provient de la couche à hauteur tangente de la normale terrestre (située à environ 300 km d'une plate forme orbitant à 800 km d'altitude). Pour accéder à une information discrète sur la verticale, certains détecteurs doivent par conséquent balayer le limbe atmosphérique. La visée au nadir procure des mesures fortement échantillonnées sur l'horizontale alors que l'information verticale est limitée (colonne intégrée sur la verticale). Un procédure de balayage sur la surface terrestre peut être appliquée afin d'élargir le domaine horizontal détecté par l'instrument.

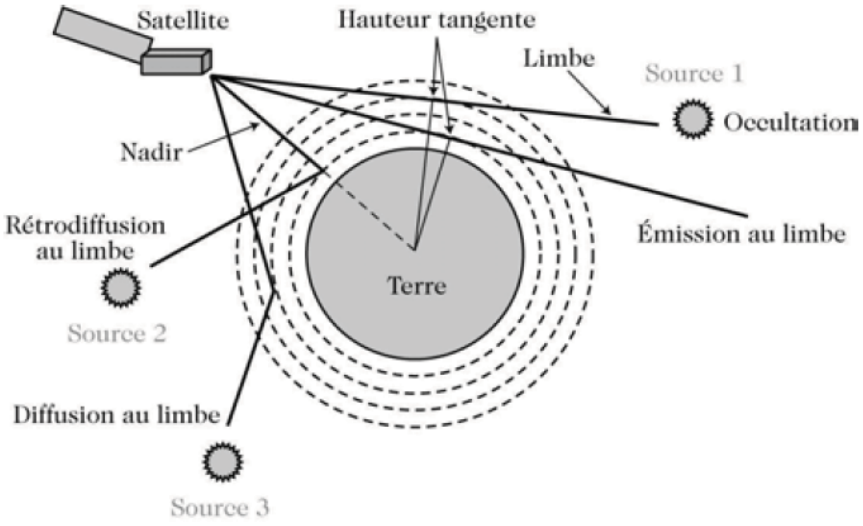


Figure 2.9 – Visées au nadir et au limbe associées à diverses méthodes des mesures : occultation, émission au limbe, rétro-diffusion et diffusion au limbe (d'après [Delmas et al., 2005])

2.3.1 AURA/MLS

Le satellite AURA a pour mission d'étudier la qualité de l'air, l'ozone stratosphérique et l'évolution du climat. En orbite à 705 km de la surface terrestre depuis le 15 Juillet 2004, quatre instruments sont embarqués à bord de ce satellite dont le radiomètre au limbe en hyperfréquence MLS (Microwave Limb Sounder). MLS mesure les radiances émises dans le domaine des micro-ondes et fournit des profils verticaux des constituants chimiques depuis la haute troposphère jusqu'à la mésosphère. L'ozone est restitué entre 13 et 70 km avec une précision de 5 à 15 % avec une résolution verticale de 2 à 3 km [Waters et al., 2006]. Les mesures d'ozone issues de MLS restituent environ 3500 profils par jour repartis sur tout le globe.

2.3.2 MetOp-A/IASI

Le satellite MetOp-A, a été mis en orbite à 800 km d'altitude le 19 octobre 2006. Il embraque onze instruments de mesure dont le capteur IASI (Interféromètre atmosphérique de sondage dans l'infrarouge). L'instrument IASI est un spectromètre à transformée de Fourrier opérationnel depuis Juin 2007 [Clerbaux et al., 2009]. IASI observe deux fois par jour la totalité de l'atmosphère terrestre et fournit des profils de températures et d'humidité qui sont utilisés par les centres de prévisions météorologiques et pour l'étude du climat. Ses objectifs scientifiques sont également de surveiller la répartition de l'ozone dans l'atmosphère et le taux des principaux gaz à effet de serre : dioxyde de carbone et méthane. IASI balaye la surface terrestre sur une largeur de 2200 km avec des tailles de pixel de 12 km ce qui le rend intéressant pour l'étude de phénomènes qui se produisent à fine échelle horizontale. L'instrument IASI est capable de fournir des colonnes intégrées d'ozone entre 0 et 6 km avec une erreur comprise entre 10 et 20 % [Eremenko et al., 2008].

Les mesures d'ozone issues de IASI peuvent restituer jusqu'à 300000 colonnes par jour sur tout le globe.

2.3.3 TERRA/MOPITT

L'instrument MOPITT (Measurement Of Pollution In The Troposphere) à été lancé sur le satellite TERRA de la NASA en décembre 1999 [Drummond et Mand, 1996] et à été opérationnel dès mars 2000. MOPITT mesure au nadir le CO troposphérique [Deeter et al., 2003 2007] depuis 2000 jusqu'à nos jours. Il s'agit d'un radiomètre à corrélation de gaz qui mesure l'émission thermique et le rayonnement solaire réfléchi par la Terre. Il fournit une couverture globale de la Terre en ∼3 jours avec une résolution horizontale de 22 km par 22 km. L'instrument MOPITT permet de restituer des profils de CO sur 7 niveaux de la surface jusqu'à la basse stratosphère. L'erreur de mesure est d'environ 20% dans les tropiques et aux moyennes latitudes, de 30 à 40% dans les régions polaires.

2.4 Les conditions aux limites avec l'assimilation de données en domaine à aire limitée

Dans cette thèse nous avons utilisé l'assimilation de données sur un domaine imbriqué à aire limitée. Des développements spécifiques ont été effectués par le CERFACS pour interfacer directement l'un des sous-domaines à aire limitée de MOCAGE avec l'assimilation. Cependant au début de la thèse, l'assimilation avait un effet direct que sur le domaine à aire limitée ; seules les mesures comprises dans ce domaine étaient assimilées. Seulement une faible part de la totalité des profils MLS sont pris en compte, soit moins de 4% de la totalité des profils (figure 2.10).

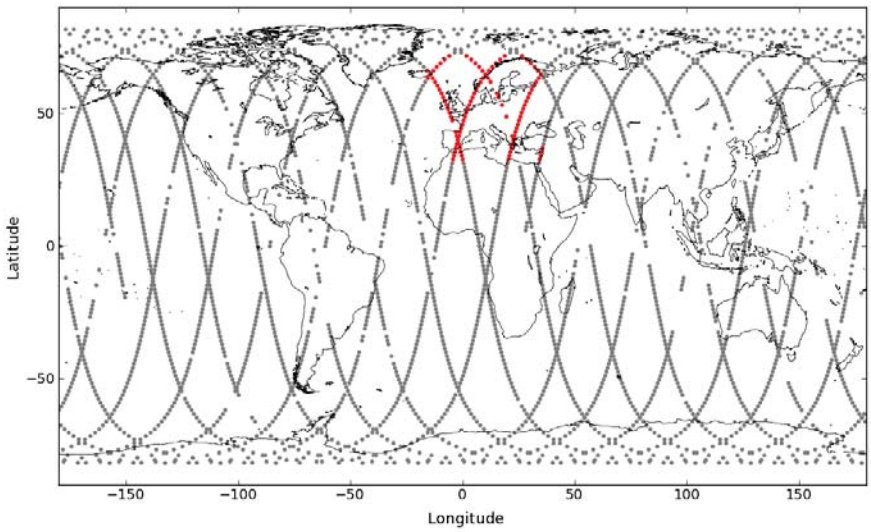


Figure 2.10 – Localisation géographique des profils MLS sur une journée (1^{er} juillet 2009). Le points gris sont ceux qui sont en dehors du domaine à aire limitée, les points rouges sont ceux qui sont compris dans le domaine à aire limitée.

L'assimilation dans le sous domaine impacte indirectement le domaine global au travers du couplage remontant (le couplage est bidirectionnel dans MOCAGE : "two-ways nesting", voir partie 2.1.2) et ultérieurement, par le transport. Mais comme l'assimilation n'est effectuée que sur le domaine à aire limitée il se pose alors le problème des conditions aux limites. C'est particulièrement le cas en dans la stratosphère et la haute troposphère où les vitesses horizontales sont élevées. L'importance des conditions aux limites peut être simplement mis en évidence par une série d'expériences avec l'assimilation des profils d'ozone MLS (figure 2.11) :

- une simulation où le modèle n'est pas contraint par l'assimilation de données (Run 1)
- une simulation où les profils d'ozone MLS sont assimilés dans le domaine régional seulement (Run 2)
- une simulation où les profils d'ozone MLS sont assimilés dans le domaine régional et où on force les conditions aux bords (toutes les 3 heures) par des champs d'ozone assimilés (profils MLS aussi) dans le domaine global (Run 3).

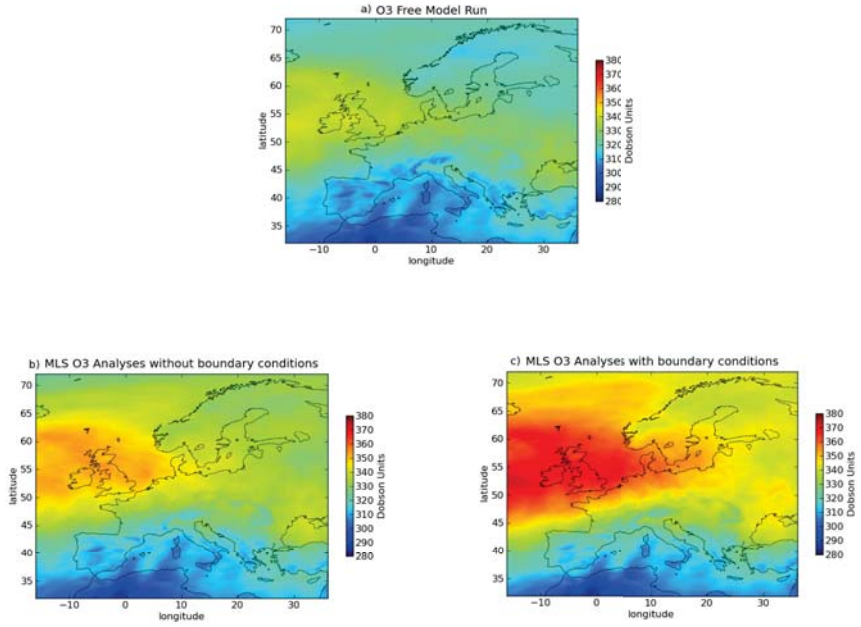


Figure 2.11 – Champs moyens de la colonne totale d'ozone (Unités Dobson) pour les Run 1 **(a)**, Run 2 **(b)** et Run 3 **(c)** au dessus de l'Europe entre le 10 Juillet 2009 et le 25 Juillet 2009.

En comparaison, on remarque que l'impact de l'assimilation des profils MLS stratosphériques sur la colonne totale d'ozone diffère suivant la définition des conditions aux bords. L'impact de l'assimilation de MLS sur les champs d'ozone est beaucoup moins marquée dans le Run 2 que dans le Run 3. Dans le cas du Run 2, les champs d'ozone aux bords du domaine seront conditionnés par les champs d'ozone du modèle seul. On comprend alors mieux le peu d'impact qu'a l'assimilation de données pour le Run 2 en

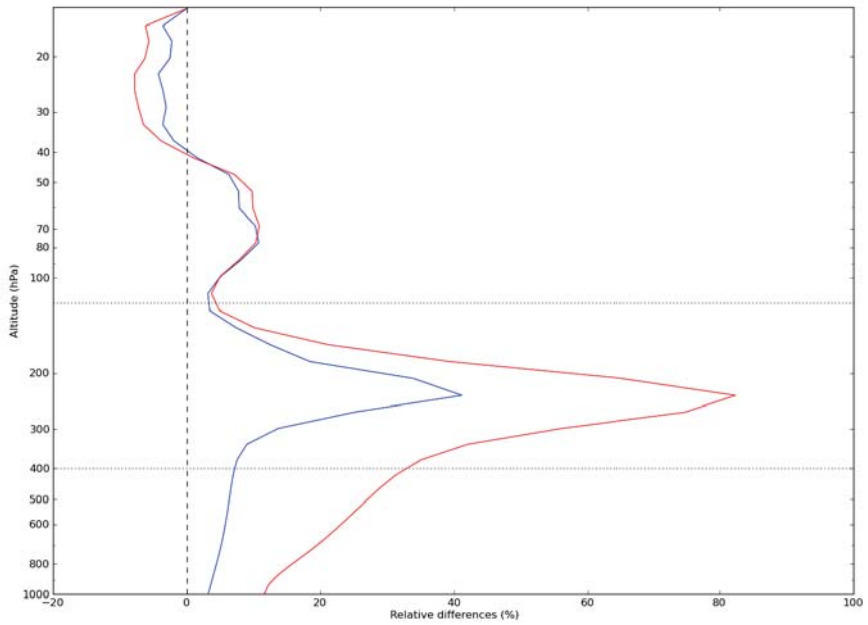


Figure 2.12 – Profil des différences relatives moyennées sur le domaine régional entre Run1 et Run2 (bleu) et entre Run1 et Run3 (rouge). Un maximum de différence est observé au niveau de l'UTLS entre 400 et 120 hPa.

comparaison du Run 3. En contraignant les condition aux bords avec des champs assimilés globaux, le domaine imbriqué ne subira pas les effets du modèle seul aux bords du domaine. L'analyse des différences relatives entre les runs assimilés et le run non assimilé (voir figure 2.12) montre un maximum de différence relative au niveau de l'UTLS entre 400 et 120 hPa (figure 2.12). L'impact du Run3 est bien plus marqué à l'UTLS que celui du Run2, montrant toute l'importance des conditions aux bords dans la modélisation à aire limitée. Comme cela à été décrit dans la partie 2.1.5.3, les champs d'ozone dans la région de l'UTLS sont majoritairement pilotés par la dynamique ; les temps de vie de l'ozone sont longs et les vents horizontaux sont soumis aux courants jets de la haute troposphère. Un impact troposphérique similaire peut aussi être noté, celui ci met en évidence les échanges entre la stratosphère et la troposphère. Ce point sera détaillé dans les chapitres 4 et 5. Afin d'illustrer le couplage entre le domaine à aire limitée et le domaine global, nous avons affiché les mêmes cartes que pour la figure 2.4.

La figure 2.13 montre l'effet de l'assimilation des données MLS dans le domaine imbriqué seulement (Run2). En comparaison de la figure 2.4 les champs d'ozone à l'UTLS sont augmentés dans le domaine imbriqué. L'impact sur les champs d'ozone à l'UTLS dans le domaine global au niveau de l'hémisphère nord montre le couplage remontant. Au bout d'un certain temps d'assimilation ce couplage remontant a un impact sur les conditions aux bords du domaine imbriqué. Les champs d'ozone assimilés ont été advectés d'ouest en est pour finalement impacter les bords ouest du domaine imbriqué. En examinant les champs d'ozone de la figure 2.14 , on se rend compte que l'impact de l'assimilation de données par le couplage remontant sur le domaine imbriqué est négligeable par rapport à l'impact de l'assimilation de données sur le domaine global. A l'échelle globale aux

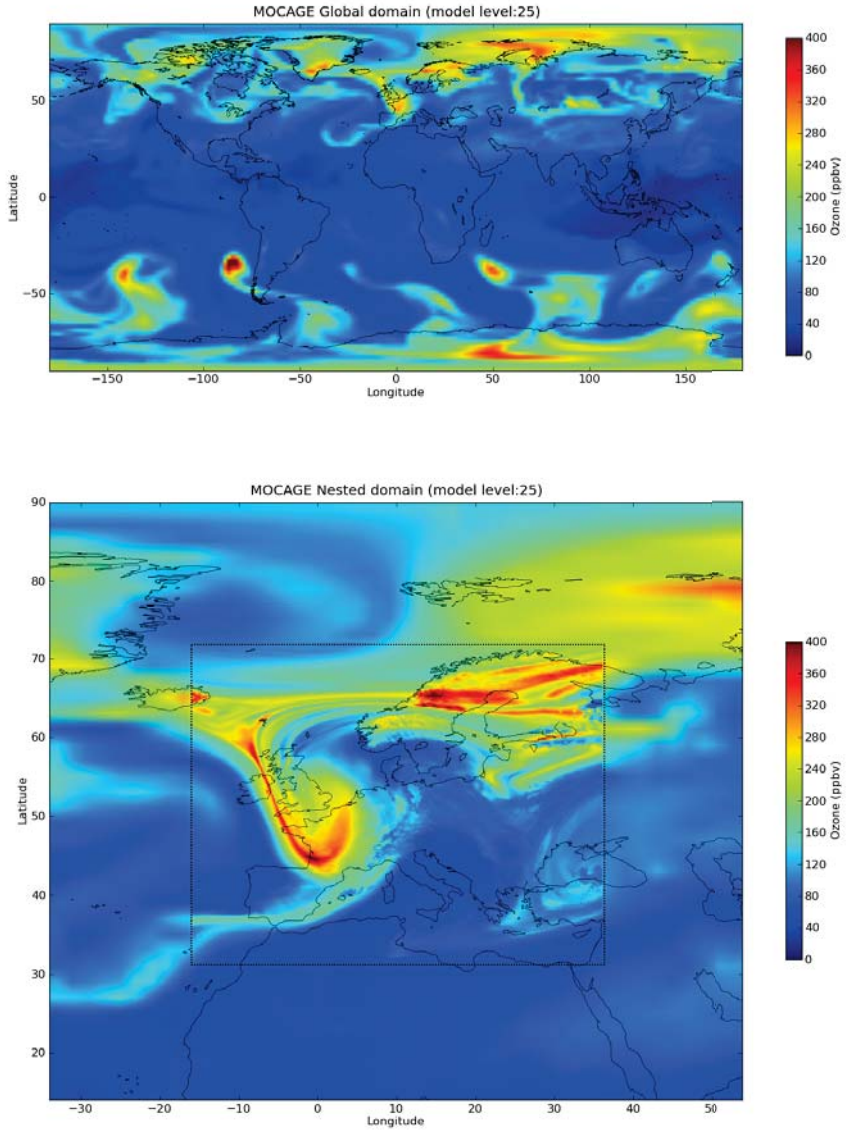


Figure 2.13 – Champs d'ozone au niveau modèle 25 (qui se situe entre 200 et 300 hPa) pour le domaine global (haut) et le domaine imbriqué (bas) le 17 juillet 2009 à 15 :00 UT. Les champs d'ozone montrent l'expérience du Run2, où les données MLS ont été assimilées seulement dans le domaine imbriqué.

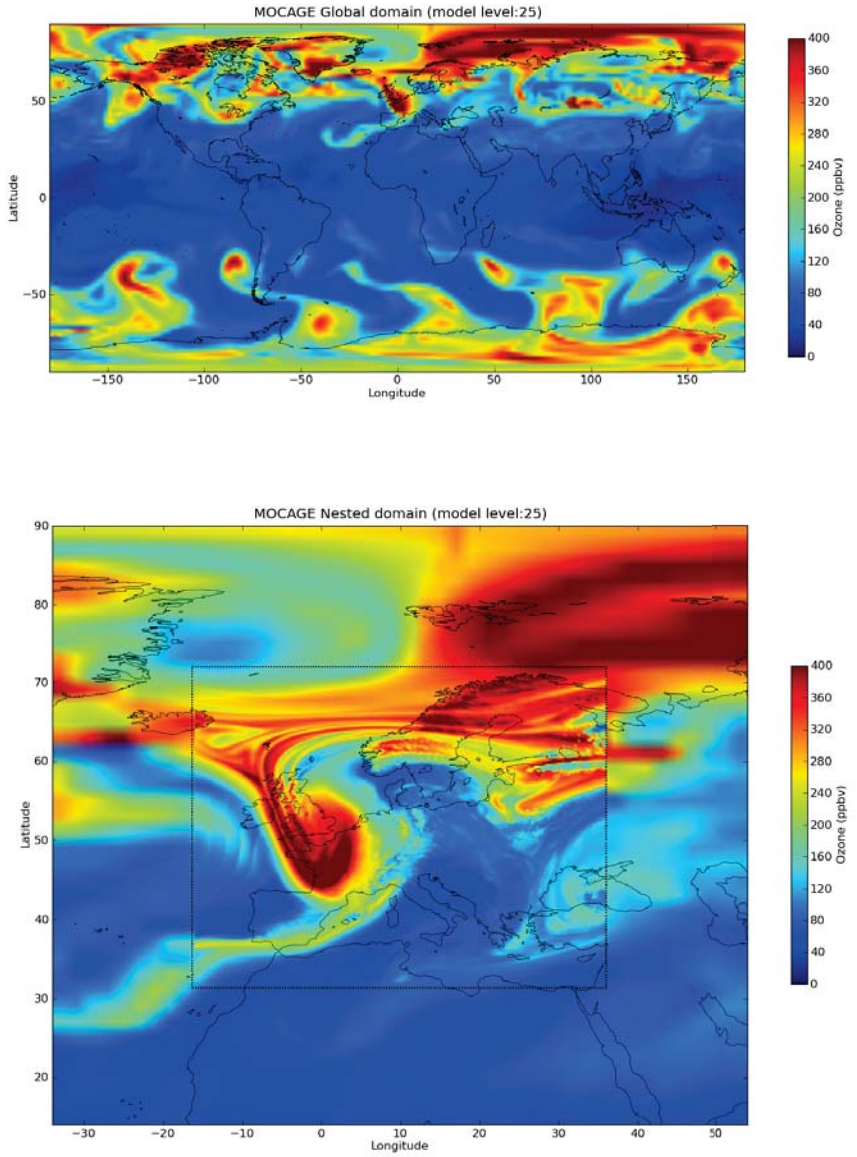


Figure 2.14 – Champs d'ozone au niveau modèle 25 (qui se situe entre 200 et 300 hPa) pour le domaine global (haut) et le domaine imbriqué (bas) le 17 juillet 2009 à 15 :00 UT. Les champs d'ozone montrent l'expérience du Run3, où les données MLS ont été assimilées dans le domaine global et dans le domaine imbriqué.

moyennes latitudes et aux latitudes polaires l'assimilation des profils d'ozone de MLS augmente significativement les valeurs des champs d'ozone au niveau de l'UTLS. Cela conduit à l'augmentation des valeurs d'ozone dans les structures en filaments qui correspondent aux déferlements des ondes de Rossby caractéristiques des échanges entre la stratosphère et la troposphère. Ces structures qui sont visibles à la résolution du domaine global (2°) sont finement représentés avec la résolution du domaine imbriqué (0.2°). Les conditions aux bords du domaine à aire limitée permet donc de fortement augmenter les valeurs d'ozone dans les structures en filaments à l'UTLS.

L'impact de l'assimilation de MLS sur les structures filamentaires et les échanges d'ozone entre la stratosphère et la troposphère fera l'objet du prochain chapitre.

Chapitre 3

Étude sur les échanges d'ozone entre la stratosphère et la troposphère à haute résolution au dessus de l'Europe.

Sommaire

3.1 Résumé long de l'article 1 54

3.2 Article 1 - Stratosphere-troposphere ozone exchange from high resolution MLS ozone analyses. 56

3.2.1 Introduction 56

3.2.2 Methodology 57

3.2.3 MLS assimilation 59

3.2.4 Meteorological situation and ozone fields analysis 61

3.2.5 Discussion 72

3.2.6 Conclusions 74

3.3 Étude sur l'estimation des flux d'ozone à la tropopause . . . 77

3.4 Conclusions et perspectives 82

Ce chapitre s'appuie sur l'article Barré et al. [2012a] publié dans la revue *Atmospheric Chemistry and Physics*. Le texte et les figures sont exactement ceux qui ont été publiés. L'article est mis en page ici pour faciliter la lecture.

Un résumé en français est développé dans la section 3.1, ensuite l'article en anglais est introduit dans la section 3.2. La section 3.3 présente un travail complémentaire sur l'estimation des flux d'ozone à la tropopause. La section 3.4 présente les conclusions et perspectives de l'étude.

3.1 Résumé long de l'article 1

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, la stratosphère et la troposphère sont caractérisées par différentes propriétés chimiques et dynamiques, avec de forts gradients de vorticité potentielle (PV) et d'ozone au niveau de la tropopause [Holton et al., 1995]. Les échanges entre la stratosphère et la troposphère (STE) jouent un rôle clef dans le contrôle du budget d'ozone dans la haute troposphère / basse stratosphère (UTLS) qui a son tour affecte le bilan radiatif de l'atmosphère [IPCC 1996]. La stratosphère est caractérisée par de fortes valeurs de PV et d'ozone et donc les intrusions d'air stratosphérique sont supposés transporter de l'air riche en PV et en ozone dans la troposphère. Ces intrusions forment des structures filamentaires à méso-échelle [Holton et al., 1995], qui apparaissent comme des maxima très localisés dans les profils d'ozone. Les structures filamentaires d'ozone et de PV ont étés simulés par le passé par Hauchecorne et al. [2002], Marchand et al. [2003] et Tripathi et al. [2006] et montrent que des simulation à haute résolution sont requises pour une étude détaillée des STE.

Dans la basse stratosphère, les champs de PV et d'ozone sont quasi-conservatifs dans les échelles de temps synoptiques [Appenzeller et al., 1996]. De plus, Beekmann et al. [1994] à montré que les champs d'ozone et de PV sont fortement corrélés au niveau de l'UTLS. Il est connu que les forts gradients d'ozone existant dans cette région de l'atmosphère sont mal représentés par la plupart des modèles de chimie-transport (CTM) [Law et al., 2000]. Le sondeur MLS qui restitue des profils d'ozone entre 215 hPa and 0.46 hPa est capable de détecter les intrusions d'air stratosphérique dans la troposphère. Cependant, à cause du faible échantillonnage horizontal de ces profils, MLS n'est pas capable de représenter la variabilité synoptique au niveau de la tropopause. Pour remédier à cela nous utilisons dans cette étude l'assimilation des données MLS dans le modèle MOCAGE à haute résolution. Pour illustrer l'impact de la résolution sur la représentation des STE nous avons fait varier la résolution horizontale du modèle de 2° à 0.2° au dessus de l'Europe. Nous avons focalisé notre étude sur deux cas d'étude d'évènement STE (23 Juin 2009 et 17 Juillet 2009).

A haute résolution les structures filamentaires d'air stratosphérique peuvent être représentés par le modèle alors qu'elles sont beaucoup moins évidentes à basse résolution. Pour tester l'impact de l'assimilation de MLS et de l'augmentation de la résolution, nous avons comparé les différentes sorties modèles avec des données indépendantes. L'assimilation des données MLS permet une bien meilleure représentation des champs d'ozone à l'UTLS que le modèle sans assimilation. En particulier, les analyses de MLS à haute résolution présentent des structures filamentaires d'ozone très réalistes ainsi que des maxima d'ozone à l'UTLS et dans la troposphère sur les profils d'ozone. Pour vérifier l'impact de l'assi-

milation de MLS sur la troposphère nous avons simulé des rétro-panaches à partir des maxima d'ozone trouvés en troposphère. L'expérience montre que ces maxima proviennent de l'UTLS polaire. Nous avons aussi utilisé les analyses MLS d'ozone à haute résolution comme conditions initiales pour des expériences de prévision. Après 2.5 jours de prévision le profil troposphérique d'ozone reste quasiment inchangé conservant les structures verticales d'ozone. Seulement après 7 jours la différence entre la prévision et les analyses MLS d'ozone devient significative (supérieure à 5 %). Cependant, l'assimilation de MLS induit un biais positif en troposphère plus fort en basse résolution qu'a haute résolution. La trop faible résolution du modèle n'arrive pas à conserver les forts gradient d'ozone qui existent à l'UTLS. L'assimilation de MLS et la trop forte diffusion numérique ont pour effet de biaiser positivement les champs d'ozone à l'UTLS aux endroits où de forts gradients doivent être représentés. Une partie de l'ozone à l'UTLS est ensuite transportée dans la troposphère. Ce transport "artificiel" au travers de la tropopause semble alors être dû à la résolution. Pour cela nous avons ajouté une section en plus de l'article où nous avons estimé les flux d'ozone à la tropopause pour des résolutions horizontales variables. L'assimilation augmente le flux net d'ozone de manière irrégulière suivant les cas. L'augmentation de la résolution diminue le flux net d'un facteur assez constant (pour deux cas d'études différents et avec ou sans assimilation) d'environ 70%.

3.2 Article 1 - Stratosphere-troposphere ozone exchange from high resolution MLS ozone analyses.

Abstract

We assimilate stratospheric ozone profiles from MLS (Microwave Limb Sounder) into the MOCAGE Chemistry Transport Model (CTM) to study Stratosphere-Troposphere Exchange (STE). This study uses two horizontal grid resolutions of 2° and 0.2°. The combined impacts of MLS ozone assimilation and high horizontal resolution are illustrated in two case studies where STE events occurred (23 June 2009 and 17 July 2009). At high resolution the filamentary structures of stratospheric air which characterise STE events are captured by the model. To test the impact of the assimilation and the resolution, we compare model outputs from different experiments (high resolution and low resolution ; MLS assimilation run and free run) with independent data (MOZAIC aircraft ozone data ; WOUDC ozone sonde network data). MLS ozone analyses show a better description of the Upper Troposphere Lower Stratosphere (UTLS) region and the stratospheric intrusions than the free model run. In particular, at high horizontal resolution the MLS ozone analyses present realistic filamentary ozone structures in the UTLS and laminae structures in the ozone profile. Despite a low aspect ratio between horizontal resolution and vertical resolution in the UTLS at high horizontal resolution, MLS ozone analyses improve the vertical structures of the ozone fields. Results from backward trajectories and ozone forecasts show that assimilation at high horizontal resolution of MLS ozone profiles between 10 hPa and 215 hPa has an impact on tropospheric ozone.

3.2.1 Introduction

In the stratosphere, ozone (O_3) is known to shield the surface from harmful ultraviolet radiation. In the middle and high troposphere ozone is the third most important greenhouse gas after carbon dioxide (CO_2) and methane (CH_4). Its forcing is equivalent to about 24 % of that from carbon dioxide [Ramaswamy et al., 2001]. The troposphere and stratosphere are characterised by different dynamical and chemical properties, with strong gradients of potential vorticity (PV) and ozone at the tropopause [Holton et al., 1995]. Stratosphere-troposphere exchange (STE) events play a key role in controlling the ozone budget in the Upper Troposphere Lower Stratosphere (UTLS), which in turn affects the radiation budget [IPCC 1996]. The stratosphere is characterised by high values of PV and ozone concentrations, so intrusion of stratospheric air is expected to bring PV and ozone rich air into the troposphere. These intrusions typically form filamentary structures [Holton et al., 1995], which appear as laminae in the ozone profiles [Stohl et al., 2003] and often exhibit mesoscale features. Filamentary structures of PV and ozone at lower stratosphere have been simulated by Hauchecorne et al. [2002], Marchand et al. [2003] and Tripathi et al. [2006] ; these papers show that high resolution simulations are needed for detailed investigation of STE.

In the lower stratosphere, PV and ozone are nearly conserved on the synoptic time scale [Appenzeller et al., 1996]. In addition, Beekmann et al. [1994] have shown that ozone

fields and PV fields are strongly correlated in the UTLS layers of the atmosphere. Ozone fields in the UTLS region have strong vertical gradients. The representation of these gradients is a well-known limitation of most of the chemical transport models (CTM) as described by Law et al. [2000]. Ozone measurements from the Microwave Limb Sounder (MLS) instrument on-board the Aura satellite give global coverage, and are able to detect stratospheric profiles between 215 hPa and 0.46 hPa. Comparisons of simulated ozone fields with MLS ozone observations show good agreement in the UTLS spatial structure [Leblanc et al., 2006] and suggest that stratospheric intrusions can be captured by MLS. Due to the sparse horizontal sampling of these profiles, MLS ozone products are not able to resolve synoptic-scale variability in the tropopause region. To address this issue we use data assimilation which combines observational information with a priori information from a model in an objective way [Kalnay, 2003]. Data assimilation of stratospheric ozone profiles from satellite data has been used extensively to study the UTLS distribution of ozone [Semane et al., 2007; El Amraoui et al., 2010; Wargan et al., 2010]. These studies show that ozone analyses from assimilation of limb sounder ozone data can capture the signature of stratospheric intrusions in a realistic way.

In this paper we use the MOCAGE-PALM system of Météo-France to assimilate MLS ozone data into the MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmospherique à Grande Echelle) CTM [Peuch et al., 1999]. The aim is to have a better representation of the STE by increasing the horizontal grid model resolution from 2° to 0.2°. In addition, we improve the representation of the STE by assimilating MLS ozone data. In order to investigate STE in detail, two typical cases studies are presented and validated with independent aircraft and balloon data. Finally, we show the impact of MLS analyses on tropospheric ozone using backward trajectories and ozone forecasts. The outline of the paper is as follows : Section 3.2.2 describes the MOCAGE CTM and the assimilation method. Section 3.2.3 presents the impact of MLS ozone assimilation on the MOCAGE model. In Section. 3.2.4, results of two case studies of STE are presented. The validation with independent data is discussed. Before concluding in Section. 3.2.6, we discuss in Section. 3.2.5 the impact of model high resolution and MLS ozone assimilation on tropospheric ozone.

3.2.2 Methodology

3.2.2.1 CTM model

The MOCAGE model is a three-dimensional CTM for the troposphere and the stratosphere [Peuch et al., 1999] which simulates the interactions between the physical and chemical processes. It uses a semi-Lagrangian advection scheme [Josse et al., 2004] to transport the chemical species. It has 47 hybrid levels from the surface to ∼5 hPa with a vertical resolution of about 150 m in the lower troposphere increasing to 800 m in the higher troposphere. Turbulent diffusion is calculated with the scheme of Louis [1979] and convective processes with the scheme of Bechtold et al. [2001]. The chemical scheme used in this study is RACMOBUS. It is a combination of the stratospheric scheme REPROBUS [Lefèvre et al., 1994] and the tropospheric scheme RACM [Stockwell et al., 1997]. It includes 119 individual species with 89 prognostic variables and 372 chemical reactions. MOCAGE has the flexibility to be used for both stratospheric studies [El Amraoui

et al., 2008a] and tropospheric studies [Dufour et al., 2005]. It is used in the operational air quality monitoring system in France, Prev'air [Rouil et al., 2009], and in the pre-operational GMES (Global Monitoring for Environment and Security) atmospheric core service [Hollingsworth et al., 2008]. A detailed validation of the model has been done using a large number of measurements during the Intercontinental Transport of Ozone and Precursors (ICARTT/ITOP) campaign [Bousserez et al., 2007]. The meteorological analyses of Météo-France, ARPEGE [Courtier et al., 1991] are used to force the dynamics of the model every 3 h. To force the model, ARPEGE analyses are interpolated onto the MOCAGE grid. The resolution of ARPEGE analyses is T798 (i.e. resolution from 10.5 km over France to 60 km over the South Pacific). MOCAGE can be used in tracer mode and to specify the temporal and geometrical characteristics of a tracer release. An additional capability of MOCAGE is the calculation of backwards 3-D simulations, using the MOCAGE adjoint.

In this study, we use 2 domains : a global domain at 2° (low horizontal resolution : LR) and a regional nested domain at 0.2° (high horizontal resolution : HR) over Europe, from 32° N to 72° N and from 16° W to 36° E. Four modelling experiments are performed :

1. low resolution free model run,
2. low resolution MLS ozone analysis,
3. high resolution free model run,
4. high resolution MLS ozone analysis.

The forcing fields differ because of the interpolation from the ARPEGE fields. For the low resolution the interpolation effect is important but for the high resolution the interpolation effect should be negligible because the ARPEGE resolution over Europe is in the range of the resolution of the MOCAGE model at the high resolution (around 10 - 20 km). Pisso et al. [2009] has shown that a vertical resolution of the order of 500 m and at least 40 km of horizontal resolution are needed to accurately simulate the transport of pollutants (carbon monoxide for this case study) in the free troposphere. Thus, the aspect ratio of the tracer between horizontal and vertical scales should be in the order of 100. In this study the aspect ratio is about 25 and suggests that the vertical resolution is underestimated compared to the horizontal resolution. However we show, in the comparisons using independent data (sections 3.2.4.2 and 3.2.4.3), that our model with this aspect ratio gives realistic results. The simulations in this paper cover the period from 1 June 2009 to 1 September 2009. The assimilation experiment started on 1 June 2009. The initialisation field for this date has been obtained from a free model run started from the April climatological initial field. We thus have a free model run spin-up of 2 month before the 1 June 2009.

3.2.2.2 Data assimilation system

The assimilation system used in this study is MOCAGE-PALM implemented within the PALM framework [Buis et al., 2006]. The technique used is 3D-FGAT (First Guess at Appropriate Time, Fisher et Andersson, 2001). This technique is a compromise between the

3D-Var (3-D-variational) and the 4D-Var (4-D-variational) methods. 3D-FGAT provides time information for a sequence of observations as in the 4D-Var technique. The advantage of this technique is a lower numerical cost without the need to code a full adjoint model as needed for the 4D-Var technique. The choice of this technique limits the size of the assimilation window, since it has to be short enough compared to the chemistry and transport timescales. It has been validated during the assimilation of ENVISAT data project (ASSET, [Lahoz et al., 2007]) and has produced good quality results compared to independent data and other assimilation systems [Geer et al., 2006]. MOCAGE-PALM has been used to assess the quality of satellite ozone measurements [Massart et al., 2007]. Assimilation products have been used in many atmospheric studies in relation to ozone loss in the Arctic vortex [El Amraoui et al., 2008a], tropics-mid-latitudes exchange [Bencherif et al., 2007], STE [Semane et al., 2007], exchange between the polar vortex and the mid-latitudes [El Amraoui et al., 2008b], and diagnosing STE from ozone and carbon monoxide fields [El Amraoui et al., 2010].

3.2.2.3 Aura/MLS ozone observations

The Aura satellite was launched on 15 July 2004 and placed into a near-polar Earth orbit at ∼705 km with an inclination of 98° and an ascending node at 13 :45 UT. It makes about 14 orbits per day. The MLS instrument on-board Aura uses the microwave limb sounding technique to measure chemical constituents and dynamical tracers between the upper troposphere and the lower mesosphere [Waters et al., 2006]. It provides dense spatial coverage with 3500 profiles daily between 82° N and 82° S. In this study we use the Version 2.2 of the MLS O_3 dataset. It is a retrieval between 215 hPa and 0.46 hPa with a vertical resolution of 3 km in the upper troposphere and the stratosphere. For ozone measurements the along-track resolution is ∼200 km and the cross-track resolution is ∼6 km between 215 and 10 hPa. The estimated single profile precision in the extra-tropical UTLS region is of the order of 0.04 ppmv (parts per million by volume) from 215 hPa to 100 hPa and between 0.05 ppmv and 0.2 ppmv from 46 hPa to 10 hPa [Froidevaux et et al., 2000]. For the assimilation experiments, MLS data are selected according to the precision and quality flags recommended in the MLS Version 2.2 Level data quality and description document (see `http://mls.jpl.nasa.gov/data/v2-2_data_quality_document.pdf`). The errors for each profile are taken into account in the assimilation process through the error covariance matrix of the observations. Only measurements made between 215 hPa and 10 hPa are used during the assimilation experiment because of the limitation imposed by the upper boundary (5 hPa) of the MOCAGE version used in this paper.

3.2.3 MLS assimilation

In this section, we show the impact of MLS ozone data assimilation on the MOCAGE model. Assimilation increments, (i.e. the difference between the first guess fields and the analysis, in the assimilation window time step) increase the ozone concentrations at middle and polar latitudes in the lower stratosphere. Figure 3.1a shows mean increments of MLS ozone assimilation for July 2009, zonally averaged over Europe as a percentage of the ratio increments/free run for the HR runs. MLS ozone profiles are between 10 hPa

and 215 hPa, thus the increment is only located at these levels. The largest increments are located between 200 hPa and 300 hPa and 45° N and 72° N. Figure 3.1b also shows relative difference in % between the free run field and the MLS ozone analysis field, zonally averaged over Europe for July 2009 (i.e. ([free run]-[MLS analysis])/[free run]). Comparison between the relative differences and the assimilation increments, shows major differences to be located in the same region : between 200 hPa and 300 hPa and 45° N and 70° N. In figure 3.1, positive differences with values around 20 % between 1000 hPa and 300 hPa and 40° N and 72° N which are visible in the relative differences do not occur in the assimilation increments. This impact observed in the troposphere is the result of the southward cross-tropopause advection of lower stratospheric air masses which have higher ozone values owing to assimilation.

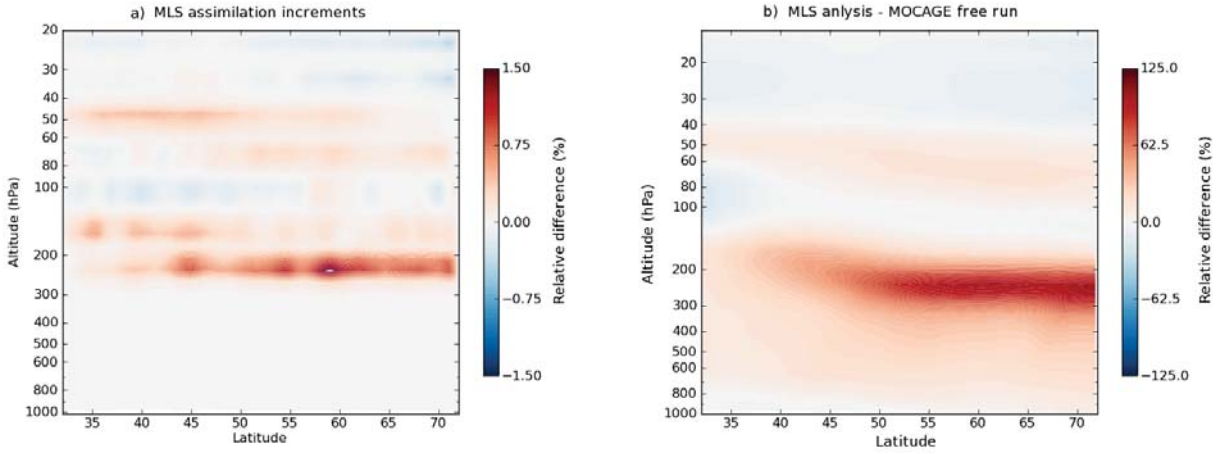


Figure 3.1 – **(a)** Zonal means of increments of MLS ozone analyses at high horizontal resolution (0.2°) in relative difference in % ; **(b)** Zonal means of the MLS ozone analysis minus the associated equivalent MOCAGE free run at high horizontal resolution (0.2°) in relative difference in %. Zonal means are performed for the month of July 2009 over Europe.

Figure 3.2 presents zonal means of ozone over the Northern Hemisphere for July 2009, for the free model run (Figure 3.2a) and the MLS ozone analyses (Figure 3.2b) for LR runs. Black lines delineate the potential temperature iso-lines, the white lines delineate the 2 PVU iso-lines ($1\,\mathrm{PVU} = 1 \times 10^6\,\mathrm{K\,kg^{-1}\,m^2\,s^{-1}}$). For the mid and polar latitudes, stratospheric ozone rich air is located above 350 K. In the stratosphere MLS ozone analysis values are higher than the free run values for levels located between 330 K and 370 K. Isentropic lines (i.e. potential temperature lines) between 320 K and 340 K cross the 2 PVU iso-lines (the 2-PVU isoline identifies the dynamical tropopause), and tilt downward between 300 hPa and 600 hPa at mid-latitudes. The isentropic lines give an idea of the mean isentropic transport during July 2009. In a general manner, most of the STEs are considered as an irreversible isentropic event in the lowermost stratosphere, where the isentropes cross the tropopause [Postel et Hitchman, 1999]. Subsequent southward cross-tropopause advection of these increments during a STE event increases ozone concentrations in the analyses at the location of the intrusion. This will be reflected in the case studies presented below, which show that the analyses have higher ozone values than the free model

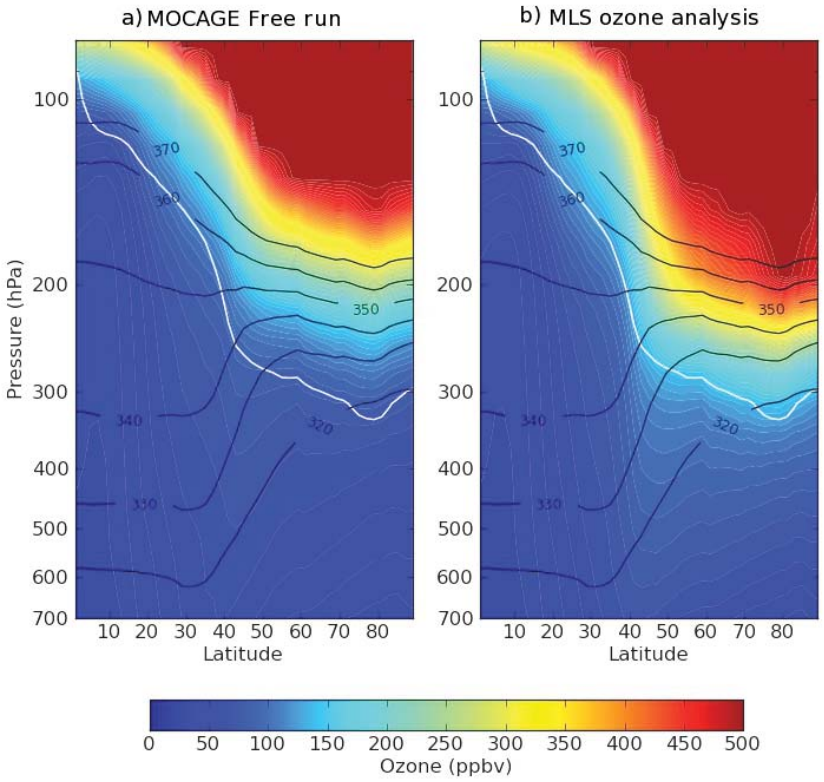


Figure 3.2 – Zonal means of ozone for the month of July 2009 in Northern Hemisphere (low resolution runs 2°). **(a)** MOCAGE free run, **(b)** MLS ozone analysis. Black lines are the potential temperature, the white line represents the 2 PVU iso-line (an estimate of the tropopause height).

run at the location of the intrusion, whereas the PV patterns are unchanged. Within the framework of assimilation in a CTM model, the ozone distribution in the stratosphere and the troposphere is modified by the MLS ozone analyses, whereas dynamical information shown here by the 2 PVU iso-line is not.

3.2.4 Meteorological situation and ozone fields analysis

3.2.4.1 Filamentary processes

In this section we focus on 2 STE case studies of atmospheric features called streamers. Streamers which can be identified as filamentary structures of stratospheric air in the UTLS, have been characterised by Appenzeller et Davies [1992], and Appenzeller et al. [1996] with the help of water vapour satellite measurements. These patterns of high PV values (but also of high ozone values and low specific humidity), can stretch southward in an irreversible way, with a length of 2000 km to 3000 km and a maximum width of 200 km. These streamers are a manifestation of Rossby wave breaking at mid latitudes [Postel et Hitchman, 1999]. Streamers are considered as irreversible isentropic events (see Sect. 3.2.3), and as a synoptic scale mass exchange mechanism between the stratosphere and the troposphere. Sprenger et al. [2007] and Wernli et Sprenger [2007] showed a relationship between STE and PV streamers.

Two types of streamers are defined [Thorncroft et al., 1993] : Type I has an anticyclonic curve (linked to an anticyclone at its western edge) and can often break into a train of eddies, i.e., a PV low height anomaly train [Browning, 1993]. These eddies roll up the stratospheric air with the tropospheric air, which allows conditions for favourable mixing by increasing the surface area between the two air masses. Type II has a North-South orientation with a vortex at the southern tip [Appenzeller et al., 1996]. Note that, not all STE is a result of irreversible isentropic events [Stohl et al., 2003].

3.2.4.2 Case 1 : stratospheric intrusion on 23 June 2009

Meteorological situation

In this section, we describe a stratospheric intrusion which took place on 23 June 2009 over Europe and lasted 4.5 days (from 20 June, 06 :00 UT, to 24 June, 18 :00 UT). Figure 3.3a shows the horizontal distribution of PV for a model level in the UTLS (left hand side panels) and vertical cross-sections of the model (right hand side panels) during the main phase of the intrusion (23 June 2009, 12 :00 UT) at two model resolutions (LR : 2°, HR : 0.2°). White solid lines identify the 2 PVU iso-line. Characteristic signatures of the intruded air are high PV values. This pattern can be associated with the type I streamer described above (see Sect. 3.2.4.1). It has an anticyclonic curve over the northern part of the domain (Fig. 3.3b) and a NE-SW orientation from the North of the Baltic sea to the centre of France. A train of eddies is visible at the South tip of the streamer. Figure 3.3a shows a transitional period when both cyclonic and anticyclonic behaviour are evident [Thorncroft et al., 1993]. On 23 June 2009 12 :00 UT at a resolution of 0.2° these eddies are not clearly visible. At HR and LR, this case study show high PV values intruding the troposphere. At upper tropospheric levels (200 hPa–300 hPa) PV values increase over the longitude range 5° E–25° E due to the strong (Fig. 3.3b) PV anomaly occurring above 200 hPa. The vertical distribution shows high stratospheric PV values (>2 PVU) below 300 hPa. At these pressure levels, rapid mixing by turbulence and convection may lead to irreversible STE events [Gouget et al., 2000].

Comparison between the low resolution and the high resolution runs

In this section we compare the PV fields from the LR runs and HR runs. On horizontal distributions, the HR allows an accurate representation of the streamers. Horizontal gradients are increased with the HR whereas the LR gives a very smooth representation of these streamers. The LR horizontal PV field shows high values (a PV anomaly) over Italy and South-East of France which do not seem to be linked by a streamer to the polar stratospheric air mass. The HR horizontal distributions of PV allow the representation in the UTLS of the filamentary structures that characterise the streamers. Fine vertical structures in the streamers are also captured in the HR run. We notice a vertical PV filamentary structure occurring at HR to the west of the PV height anomaly described above (5° E). At LR, these vertical structures are not captured. The increase in the horizontal resolution provides a more detailed streamer structure in the horizontal and in the vertical.

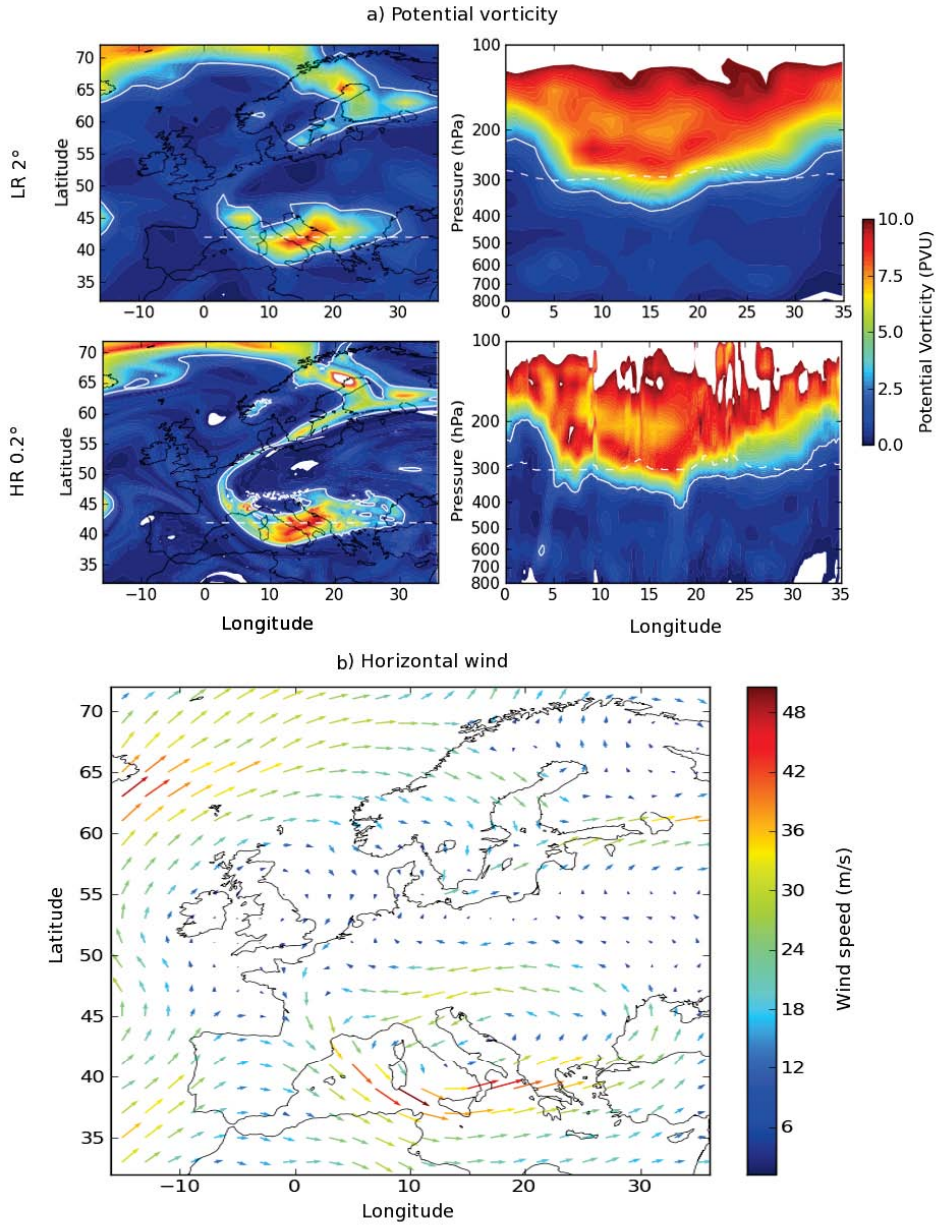


Figure 3.3 – Meteorological situation on 23 June 2009, 12 :00 UT from ARPEGE analysis. **(a)** Potential vorticity fields, in potential vorticity units ($1\,\mathrm{PVU} = 1 \times 10^6\ \mathrm{K\,kg^{-1}\,m^2\,s^{-1}}$) from low (2°) horizontal resolution simulation (top) and high horizontal resolution (0.2°) simulation (bottom). Left hand side panels show longitude-latitude fields for a given model level ; right hand side panels show longitude-pressure cross-sections. The white dashed line associates the vertical and the horizontal distribution by showing the same location between left hand side and right hand side panels. The white solid lines identify the 2 PVU contour. **(b)** Horizontal wind fields at LR near 300 hPa.

Ozone analysis fields

Figure 3.4 shows horizontal distributions for a model level in the UTLS (left hand side panels) and vertical cross-sections (right hand side panels) of ozone during the main phase of the intrusion (23 June 2009, 12 :00 UT). Figure 3.4 compares the free model experiment and the analyses from the assimilation experiment, at the two model resolutions described in this paper (see Sect. 3.2.2.1). White solid lines identify the 2 PVU iso-line. Ozone fields and PV fields show similar patterns. These patterns are seen in the free run experiments but ozone values are increased in the MLS assimilation runs. The horizontal distributions of the MLS ozone analyses show higher ozone values than the free runs. Generally, the vertical cross sections from MLS ozone analyses show the vertical ozone gradient displaced downward in altitude where the STE takes place. The shape of the vertical ozone gradient in MLS ozone analyses follows more closely the 2 PVU iso-line. Qualitatively, MLS ozone analyses bring to the model an added value to the ozone distribution at the UTLS layers. MLS analyses also increase the ozone values below the 2 PVU iso-line in the troposphere.

Regarding the improvement shown by the HR fields, we can conclude as for Sect. 3.2.4.2. Filamentary structures which cannot be seen or are smoothed in the LR runs are represented accurately in the HR runs. In this case, the NE-SW ozone filament over northern Europe is more clearly identified with sharper gradients and is identified by the 2 PVU contour in the HR horizontal distribution. HR ozone vertical cross sections show a more detailed vertical ozone structure than LR ozone vertical cross sections. For example, the vertical ozone tropospheric patterns at 5° E between 300 and 500 hPa for the HR MLS ozone analyses can be associated with the streamer structure.

To summarise, these filamentary structures of ozone visible at the HR runs are smoothed or not well represented in the LR runs. MLS analyses increase the ozone values by about 100 ppbv (parts per billion by volume) in the streamer structure in LR and HR.

Comparison with independent datasets

In this section a validation of MLS ozone analyses of this case study is performed using the WOUDC (World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre) ozone sondes and the MOZAIC (Measurements of OZone, water vapour, carbon monoxide and nitrogen oxides by in-service AIrbus airCraft) aircraft flights. The MOZAIC program measures ozone and other species from commercial aircraft [Marenco et al., 1998]. Comparison of the first two years of MOZAIC ozone data with ozone sonde network data showed good agreement [Thouret et al., 1998]. The WOUDC is one of the five World Data Centres which are part of the Global Atmosphere Watch (GAW) program of the World Meteorological Organization (WMO).

In this case study two MOZAIC flights have been used : a flight on 23 June 2009 from Frankfurt (50° N, 8° E, Germany) at 08 :13 UT to Calgary (51° N, 114° W, Canada) and a flight on 23 June 2009 from Frankfurt (50° N, 8° E, Germany) at 13 :00 UT to Philadelphia (39° N, 75° W, US). In Fig. 3.5a, the runs at HR (solid lines) agree better with MOZAIC data (green line) than the LR runs (dashed lines). The two MOZAIC flight tracks cross the filament near 5° E and 52° N and identify a peak of ozone at this location. The use of

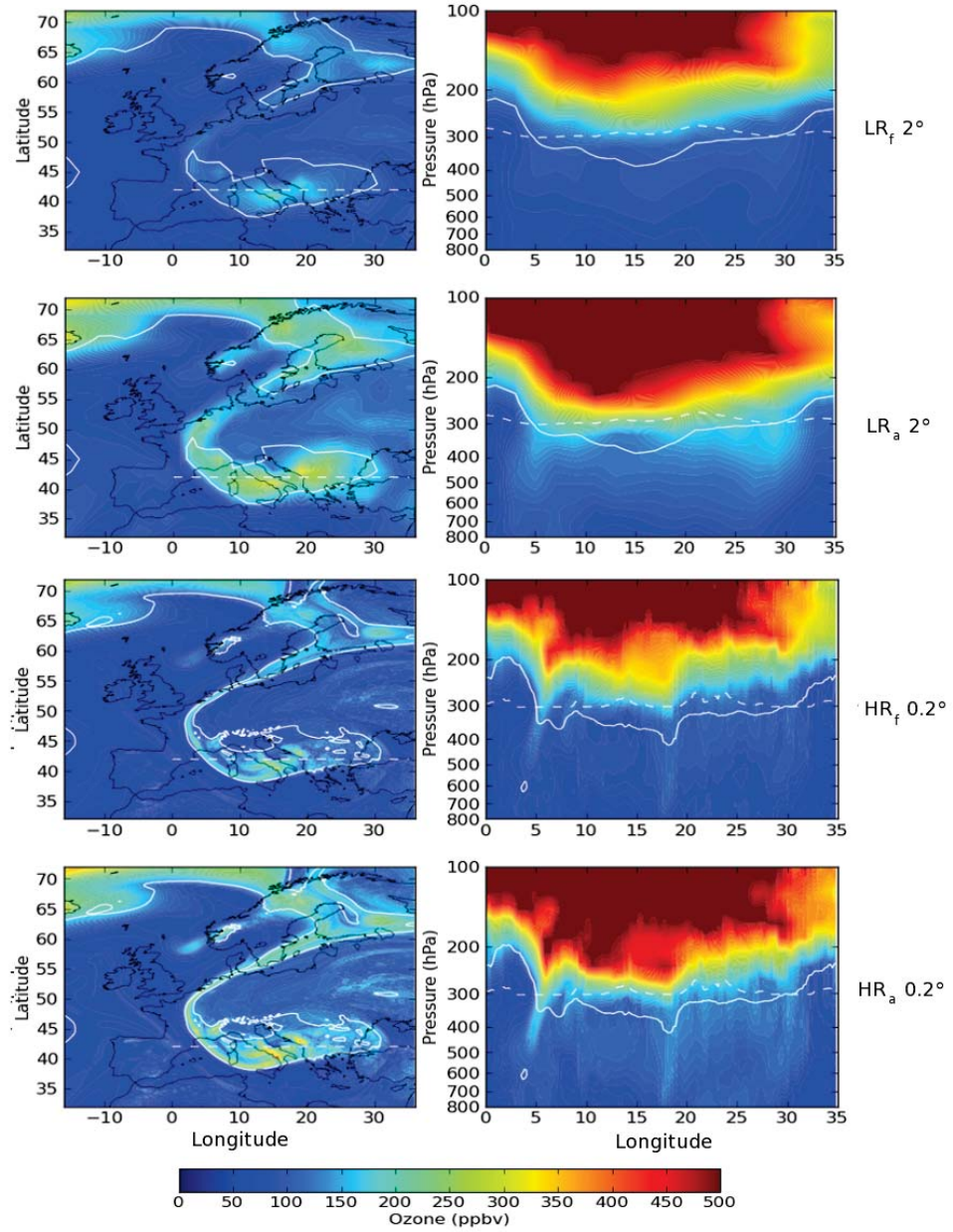


Figure 3.4 – Ozone fields for 23 June 2009, 12 :00 UT, in ppbv (parts per billion by volume) for various experiments : LR_f : Low Resolution (2°) free run ; LR_a : Low Resolution (2°) analyses ; HR_f : High Resolution (0.2°) free run and HR_a : High Resolution (0.2°) analyses. Left hand side panels show longitude-latitude fields for a given model level ; right hand side panels show longitude-pressure cross-sections. White dashed line associate vertical and horizontal distribution by showing the same location between left hand side and right hand side panels. The white solid lines identify the 2 PVU contour.

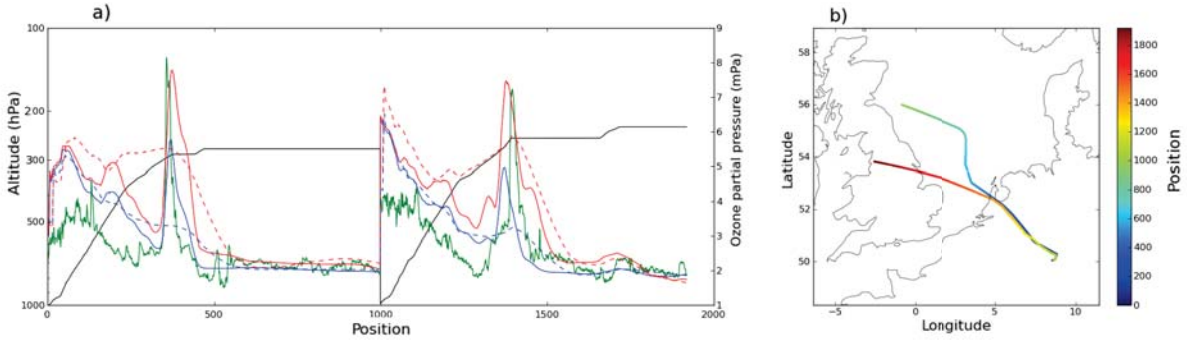


Figure 3.5 – Left hand side panel : ozone data from MOZAIC (green line), free MOCAGE run (blue lines) and analyses fields (red lines), in mPa (10^{-3} Pascals, right hand side y-axis) ; flight level (black line), in hPa (10^2 Pascals, left hand side y-axis). Low resolution (2°) and high resolution (0.2°) results are marked as dashed lines and solid lines, respectively. Right hand side panel : flight tracks on 23 June 2009. Position 0 to 1000 : starting at Frankfurt (50° N, 8° E, Germany, 08 :13 UT) to Calgary (51° N, 114° W, Canada). Position 1000 to 1900 : starting at Frankfurt (50° N, 8° E, Germany, 13 :00 UT) to Philadelphia (39° N, 75° W, US).

HR improves considerably the ozone distribution. Peaks detected by the MOZAIC flights are well represented by the HR runs. Where the analyses and free model run fields at HR show the signature of the filament, the analyses are significantly closer to the MOZAIC data. The measured peak maximum by MOZAIC flights is between 7 mPa and 8 mPa, whereas LR free run, LR MLS analyses, HR free run and HR MLS analyses provides ozone maxima of 3 mPa, 6 mPa, 5 mPa and 7.5 mPa, respectively. This comparison shows that the MLS ozone analysed fields at HR can improve the representation of UTLS ozone during a stratospheric intrusion event.

Unfortunately there are no WOUDC vertical records well co-located in space and time with the stratospheric intrusion event. We thus compare our results with a sonde launched at Legionowo (Poland : 52.4° N, 21° E) at 11 :17 UT on 24 June 2009. In Fig. 3.6, the ozone sonde measurements (green line) are compared with the LR free run (blue dashed line), the LR MLS analyses (red dashed line), the HR free run (solid blue line) and the HR MLS analyses (solid red line). These profiles show that between 100 hPa and 300 hPa MLS ozone analyses are in better agreement with observations than the free run. In this height range, the improvement of the HR MLS ozone analyses is characterised by a maximum closer to the observations than for the LR MLS ozone analyses. Compared to the tropospheric ozone sonde values, MLS ozone analyses show no improvement but increase the positive bias already seen in the free model runs. Between 400 hPa and 800 hPa free model runs show a bias of around 1 mPa and MLS analyses show a bias of around 2 mPa.

3.2.4.3 Case 2 : stratospheric intrusion on 17 July 2009

Meteorological situation

This case describes a stratospheric intrusion which took place on 17 July 2009 over

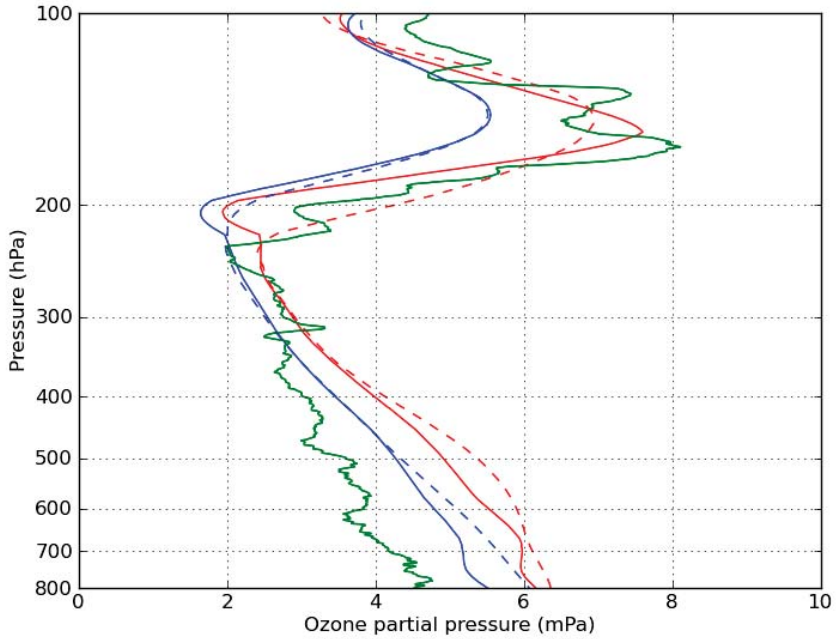


Figure 3.6 – Ozone profiles in mPa from a sonde over Legionowo (52.4° N, 21.97° E, Poland ; green line, launched at 11 :17 UT on 24 June 2009), from the free MOCAGE run (blue lines) and from analyses (red lines). Low resolution (2°) and high resolution (0.2°) results are represented by dashed and solid lines, respectively.

Europe and lasted 3.5 days (from 16 July, 06 :00 UT, to 19 July, 18 :00 UT). Figure 3.7b shows the horizontal distribution for a model level in the UTLS (left hand side panels) and the longitude-pressure cross-sections (right hand side panels) of PV during the main phase of the intrusion (17 July 2009, 15 :00 UT) at the two model horizontal resolutions. White solid lines identify the 2 PVU iso-line. This pattern can be associated with a type II streamer described above (see Sect. 3.2.4.1). The streamer has a more North-South orientation than the previous case study (see Sect. 3.2.4.2), from the North of Ireland to the South of France. At the South tip of the streamer, a vortex over France is visible at HR. The vertical cross sections of PV fields (HR and LR), show a V-shaped deep intrusion. At upper tropospheric levels (200 hPa–300 hPa) PV values increase between the longitude range 15° W–8° E due to the strong cyclonic (Fig. 3.7a) PV anomaly occurring above 200 hPa. The vertical distribution shows high stratospheric PV values (>2 PVU) below 300 hPa.

Comparison between the low resolution and the high resolution runs

In this section we compare the PV fields from the LR runs and HR runs. Horizontal gradients are increased with the HR whereas the LR gives a very smooth representation of these streamers. The HR horizontal distributions of PV allow the representation in the UTLS of the filamentary structures that characterise the streamers. Fine vertical structures in the streamers are also captured in the HR runs. We notice a vertical PV filamentary structure occurring at HR to the west of the PV height anomaly described

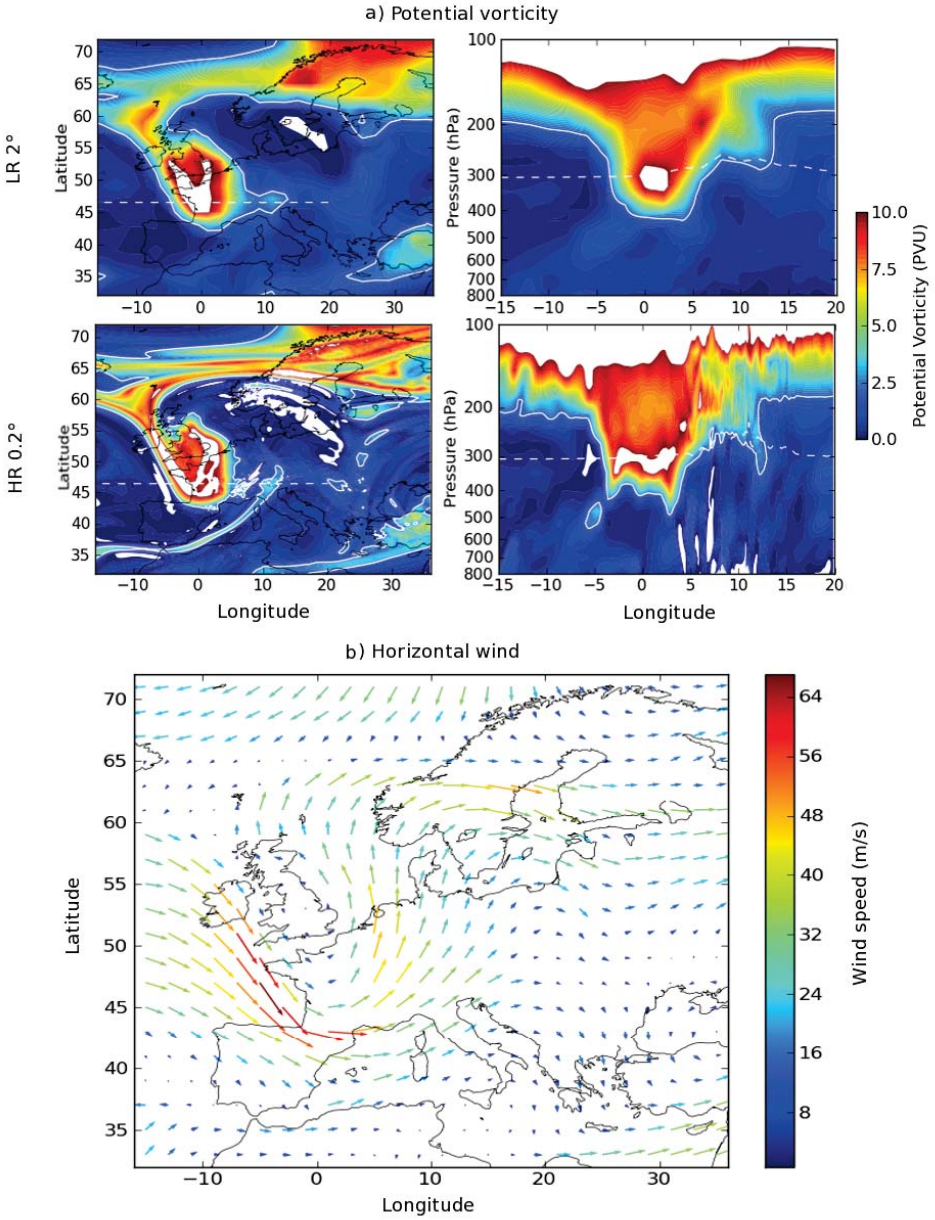


Figure 3.7 – Meteorological situation on 17 July 2009, 15 :00 UT from ARPEGE analysis. **(a)** Potential vorticity fields, in potential vorticity unit ($1\,\mathrm{PVU} = 1 \times 10^6\ \mathrm{K\,kg^{-1}\,m^2\,s^{-1}}$) from low horizontal resolution (2°) simulation (top) and high horizontal resolution (0.2°) simulation (bottom). Left hand side panels show longitude-latitude fields for a given model level ; right hand side panels show longitude-pressure cross-sections. The white dashed line associates the vertical and the horizontal distribution by showing the same location between left hand side and right hand side panels. The white solid lines identify the 2 PVU contour. **(b)** Horizontal wind fields at LR near 300 hPa.

in section 3.2.4.2 (5° W). At LR, these vertical structures are also seen in this case study but are less detailed. As described in Sect. 3.2.4.2 the increase of the horizontal resolution provides a more detailed streamer structure in the horizontal but also in the vertical.

Ozone analysis fields

Figure 3.8 shows horizontal distributions for a model level in the UTLS (left hand side panels) and vertical cross-sections (right hand side panels) of ozone during the main phase of the intrusion (17 July 2009, 15 :00 UT). Figure 3.8 compares the free model experiment and the analyses from the assimilation experiment, at two model resolutions (see Sect. 3.2.2.1). White solid lines identify the 2 PVU iso-line. Ozone fields and PV fields show similar patterns. These ozone patterns are seen in the free run experiments but ozone values are increased in the MLS assimilation runs. Generally, the ozone vertical cross sections from MLS analyses show a vertical ozone gradient displaced downward in altitude, where the STE takes place. The shape of the vertical ozone gradient in MLS ozone analyses follows more closely the 2 PVU iso-line.

Regarding the improvement shown by the HR fields, we can conclude as for Sect. 3.2.4.2 Filamentary structures not seen or smoothed in the LR runs are represented accurately in the HR runs. The NE-SW ozone filament over the Mediterranean sea is only seen on the HR horizontal distribution. This filament corresponds in the longitude-pressure cross sections to the high volume mixing ratio (VMR) of ozone tropospheric patterns visible at 13° E and between 300 and 500 hPa for the HR MLS ozone analysis.

To summarise, these filamentary structures of ozone visible at the HR runs are smoothed or not well represented in the LR runs. At HR, ozone filamentary patterns are more marked in the MLS ozone analyses.

Comparison with independent datasets

In this section a validation of MLS ozone analyses during the two case studies is performed using the WOUDC ozone sondes and the MOZAIC aircraft flights.

The MOZAIC ozone data used in this study comes from a flight on 17 July 2009 from Frankfurt (50° N, 8° E, Germany) at 11 :57 UT to Atlanta (33° N, 84° W, US) and left the regional domain at 14 :16 UT. In Fig. 3.9a, the ozone analyses (red lines) agree better with MOZAIC data (green line) than the free model (blue lines). The MOZAIC flight track crosses the intrusion between 3.5° E and 1.5° W. MLS analysed fields show a better agreement with MOZAIC data than the free model run fields. At the location of the intrusion the MLS analyses are significantly closer to the MOZAIC data.

At 11 :00 UT on 17 July 2009, a MeteoSwiss ozone sonde was launched from Payerne (Switzerland ; 46.5° N, 6.6° E). In Fig. 3.10, the ozone sonde measurements (green line) are compared with the four different experiments in this study. Figure 3.10 shows a maximum located at 190 hPa in the UTLS. The analyses at high resolution are closer to the ozone sonde data in terms of magnitude and variability with height providing the best match with the ozone profile changes on the vertical. This maximum represents the east side of the V-shaped intrusion identified on the left hand side panel of Fig. 3.8. HR analyses improve the representation of this maximum. It has been shown that stratospheric intru-

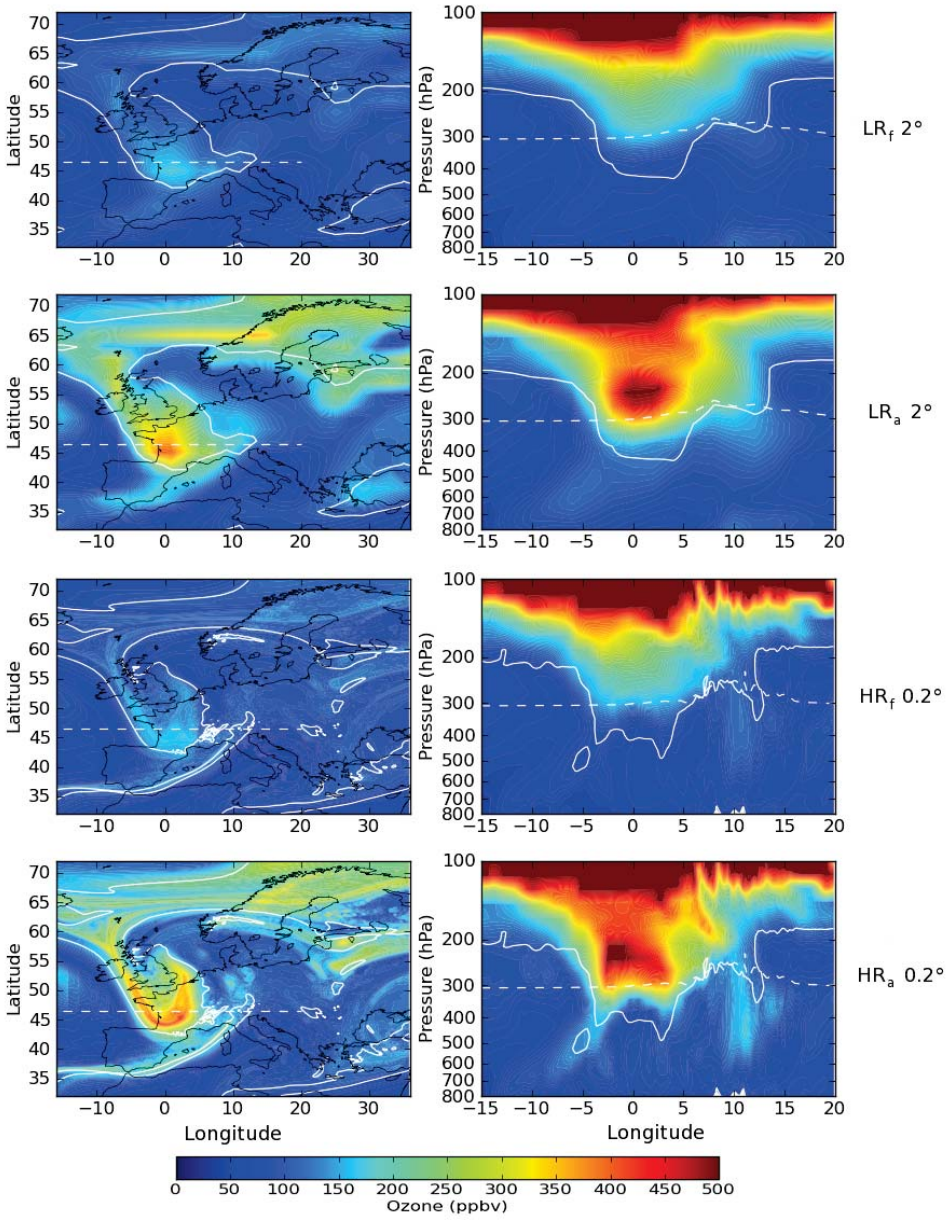


Figure 3.8 – Ozone fields for 17 July 2009, 15 :00 UT, in ppbv (parts per billion by volume) for various experiments : LR_f : Low Resolution (2°) free run ; LR_a : Low Resolution (2°) analyses ; HR_f : High Resolution (0.2°) free run and HR_a : High Resolution (0.2°) analyses. Left hand side panels show longitude-latitude fields for a given model level ; right hand side panels show longitude-pressure cross-sections. White dashed line associate vertical and horizontal distribution by showing the same location between left hand side and right hand side panels. The white solid lines identify the 2 PVU contour.

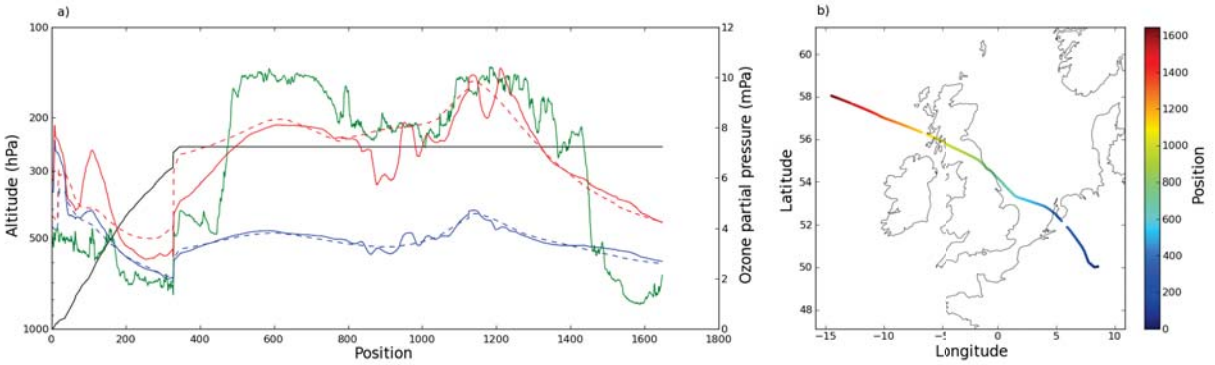


Figure 3.9 – Left hand side panel : ozone data from MOZAIC (green line), free MOCAGE run (blue lines) and analyses fields (red lines), units of mPa (right hand side y-axis) ; flight level (black line), units of hPa (left hand side y-axis). Low resolution (2°) and righ resolution (0.2°) results are marked as dashed lines and solid lines, respectively. Right hand side panel : flight track on 17 july 2009. Position 0 to 1700 : starting at Frankfurt (50° N, 8° E, Germany, 11 :57 UT) to Atlanta (33° N, 84°, US).

sions typically form filamentary structures [Holton et al., 1995] in the free troposphere, which appear as laminae [Stohl et al., 2003] in the ozone profile. A second maximum located at 500 hPa is only represented by the MLS ozone analyses at HR and also detected by the ozone sonde. This tropospheric ozone maximum shows the benefits of HR MLS ozone analyses in the troposphere. Vertical structure is improved in the UTLS and in the free troposphere appearing as laminae or as ozone maxima in the ozone profile (Figs. 3.6 and 3.10). Results indicate that the improvement in the representation of the UTLS and free troposphere structures is owing to the use of assimilation and HR. A discussion of the origin of the maximum of ozone in troposphere is detailed in section 3.2.5.1.

3.2.4.4 Impact in the troposphere

To describe in a complete way the phenomena taking place during the case studies we need to refer to both the UTLS and the troposphere. Although there are no increments below 250 hPa, the information from the increments above 250 hPa will be propagated to the troposphere by the model. Therefore the increments can impact the ozone field below 250 hPa. Between about 300 hPa and 800 hPa, in the free troposphere, the free model run at HR is closer than HR MLS ozone analyses to the ozone sonde data in terms of magnitude. In other words the MLS ozone analyses increase the positive bias in the troposphere which already exists in the free runs. This suggest that too much stratospheric ozone is advected through the tropopause. The high horizontal resolution and vertical resolution used in this study are still too coarse to represent faithfully the filamentary structures of ozone in the UTLS measured by MOZAIC aircraft and ozone sondes. For example in case study 2 (Fig. 3.7), the observed filament is very thin and horizontal ozone gradients in the neighbourhood are very strong. MLS ozone analyses with 0.2° (∼20 km) horizontal resolution and 800 m vertical resolution have hourly temporal resolution while the MOZAIC data has a sampling frequency of 4 s corresponding to a distance of 1 km between each measurements. The MLS ozone analyses have a good

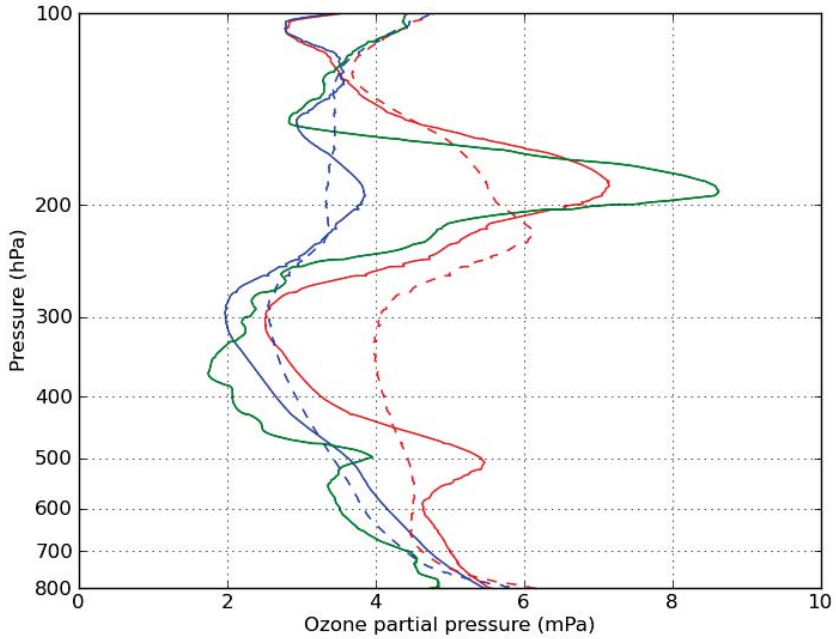


Figure 3.10 – Ozone profiles, mPa, from a sonde over Payerne (46.5° N, 6.6° E ; green line, launched at 11 :00 UT on 17 July 2009), from the free MOCAGE run (blue lines) and from analyses (red lines). Low resolution (2°) and high resolution (0.2°) results are represented by dashed and solid lines, respectively.

estimation of the maximum values, but spatial gradients are smoothed due to the coarse model resolution. Then MLS ozone analyses have a positive bias between 3 and 5 hPa (see Figure 3.5) in the neighbourhood of the filaments. This means fine structures in the ozone analyses contain too much ozone in the UTLS layers. In other words mixing ratios at the dynamical tropopause (2 PVU for example) will be overestimated. This suggests that MLS ozone analyses bring more ozone from stratosphere to troposphere than the free run. This overestimation of ozone values is stronger at LR than at HR, due to the lower resolution at LR. This also suggest that LR brings more ozone from the stratosphere to the troposphere than HR.

3.2.5 Discussion

3.2.5.1 Backward trajectories : impact of high resolution

A good example of tropospheric impact is shown on figure 3.10 (see Sect. 3.2.4.3) where a tropospheric ozone maximum structure was observed by the WOUDC profile and was reasonably well represented by the HR MLS ozone analyses. To identify the origin of the air mass where the tropospheric ozone maximum takes place, we use MOCAGE to calculate backward trajectories for case study 2 (17 July 2009). The tracer was initialised between 400 hPa and 600 hPa on 17 July 2009 at 11 :00 UT. The model is initialised for the global domain (LR) and for the regional domain (HR). Note that the global domain is used to constrain the regional domain. Lateral boundary conditions for the regional domain come from the global domain. If tracers are advected out of the regional domain

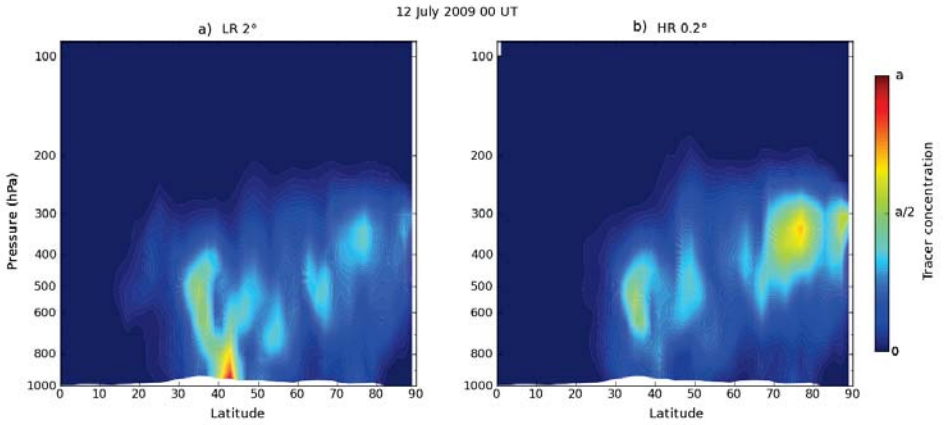


Figure 3.11 – Zonal means of a tracer initialised backward trajectories. **(a)** Low Resolution (LR 2°), **(b)** High Resolution (HR 0.2°). Tracer concentration values are arbitrary : from 0 to a (the maximum value).

the tracer is then visible on the global domain. Figure 3.11 shows the zonal means of tracer concentration in the Northern Hemisphere five and a half days before (12 July 00 :00 UT) the initialisation. Differences are significant in the backward trajectories for the two experiments. We observe a larger part of the tracers around the polar UTLS for the HR run whereas it is less evident for the LR run where the larger part of the tracers are located in the mid troposphere at middle latitudes. The LR run presents a part of the tracers close to the surface around 42° N. Different to the LR run, the HR run clearly shows that the tropospheric maximum comes from a stratospheric intrusion that occurred few days before at Northern latitudes. It is shown that the HR run is able to represent tropospheric features coming from the lower stratosphere ; this is not the case for LR runs.

3.2.5.2 Ozone forecasts at high resolution : impact of MLS ozone analyses

To quantify the tropospheric impact of the MLS assimilation on the stratosphere, a forecast of two weeks has been done. The initial state is the MLS ozone analyses on 15 July 2009 00 :00 UT and the forecast ends 14 days later on 29 July 2009 00 :00 UT. At first we compare the forecast to the WOUDC profile at Payerne on 17 July 2009 11 :00 UT (Fig. 3.12). Two and a half days after the start of the forecast, the maximum of ozone in the UTLS decreases but the stratospheric and the free tropospheric profiles show no significant changes. As already shown in Fig. 3.1 the largest impact of MLS is located in the UTLS region. The transport of ozone from UTLS to the free troposphere takes a few days. The advantage of MLS ozone analyses (e.g. revealing ozone features in the free troposphere) can be used to forecast the free troposphere for about a week. Figure 3.13 shows the relative difference between forecasts and the MLS ozone analyses until the end of July. The largest difference is located at the UTLS layers and increases with time. In the first seven days of the forecast the difference in the free troposphere (below 300 hPa) is very small, under 5 %. By constraining ozone at the UTLS, tropospheric forecasts still contain after 7 days a strong contribution from the MLS observations. By using MLS ozone analyses at high resolution these tropospheric features (e.g. maxima of ozone in tropospheric profiles) can be forecast for a week. Even if MLS ozone analyses are biased

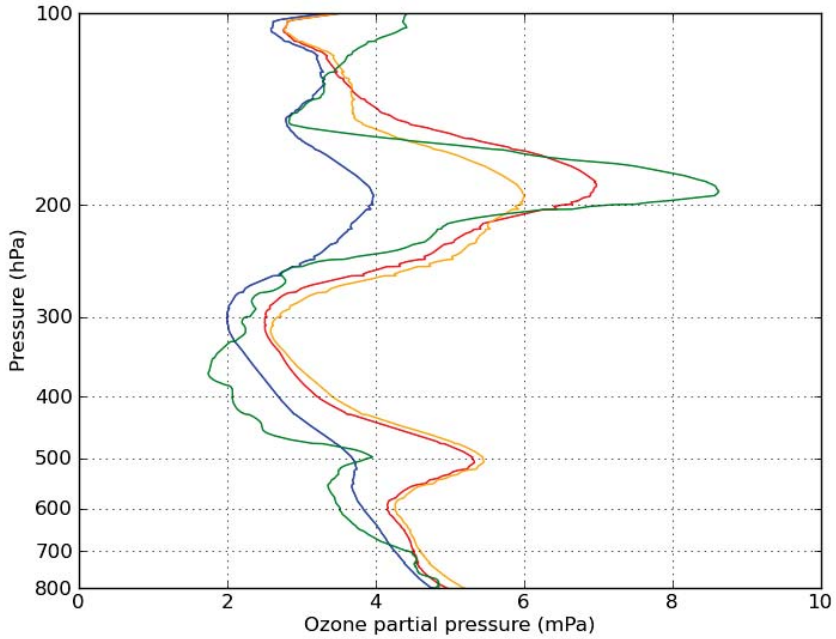


Figure 3.12 – Ozone profiles, mPa, from a sonde over Payerne (46.5° N, 6.6° E ; green line, launched at 11 :00 UT on 17 July 2009), from the free MOCAGE run (blue line), from analyses (red line) and forecasted run initialised with MLS anlyses at 00 :00 UT on 15 July 2009 (orange line). All experiments are from High Resolution (0.2°) runs.

in the free troposphere, this information on ozone features likely plays a non-negligible effect in the the tropospheric ozone budget, which will be investigated in further studies. Studying the tropospheric ozone budget is out of the scope of this paper.

3.2.6 Conclusions

In this paper we show the benefit of high horizontal resolution and MLS ozone assimilation on STE events. We use assimilation of MLS ozone profiles to constrain the MOCAGE CTM in the UTLS at middle and high latitudes. The study is conducted over Europe at low horizontal resolution (2°) and high horizontal resolution (0.2°). The assimilation of MLS ozone tends to increase the ozone concentration in UTLS levels in polar and middle latitudes and we show the impact of this increase on the free troposphere. It is shown that the assimilation increments, advected through the tropopause, also affect significantly the free troposphere. The added value of MLS ozone assimilation and its impact on the troposphere are illustrated using two case studies.

These case studies (23 June 2009 and 17 July 2009) which both show a stratospheric intrusion, are detailed in the paper. The combination of high horizontal resolution and MLS ozone assimilation allows more realistic of UTLS ozone fields. High resolution runs are able to represent very thin filamentary structures of potential vorticity and ozone which characterise a STE. These structures of ozone are described more realistically in the MLS ozone analyses. The fidelity of the ozone analyses is assessed by comparison against independent measurements from MOZAIC aircraft and WOUDC ozone sondes. In

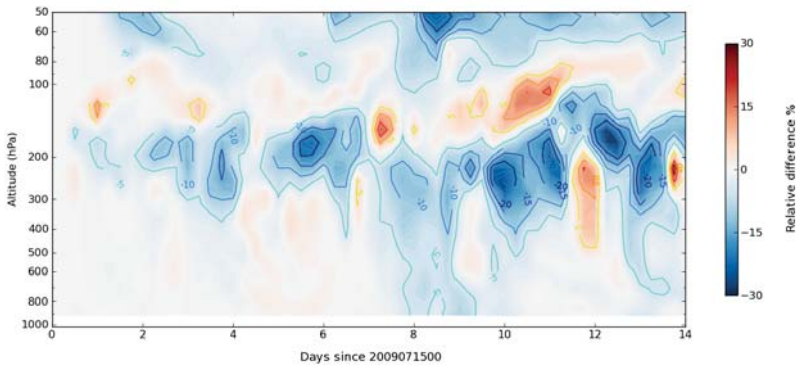


Figure 3.13 – Hovmuller diagram of the profile : (Forecast-MLS ozone analyses) in %, averaged between 44° N–48° N and 5° W–9° W (Switzerland). Forecast is initialised from MLS ozone analyses on 15 July 2009 00 :00 UT.

both cases, comparison with MOZAIC flight data shows that the ozone analyses at the two resolutions provide a better description of the UTLS and the stratospheric intrusions, than the free model run. In particular, at high horizontal resolution the UTLS shows fine ozone structures. In addition, the comparison with ozone sonde measurements shows that the high horizontal resolution improves the representation of the UTLS. Despite a low aspect ratio (i.e. a low vertical resolution) in the UTLS at high horizontal resolution, MLS ozone analyses improve the vertical structures of the ozone fields (e.g. have stronger gradients). The transport at high resolution in the free troposphere reveals a realistic maximum of tropospheric ozone at 500 hPa (17 July 2009 case) not seen in the low resolution case. However, we found a bias in the free troposphere between the ozone analysis and the in-situ data at the resolutions used. This is likely due to a too coarse model resolution in comparison to the MOZAIC data resolution. The model is unable to represent the strong gradients shown in MOZAIC data. This affects significantly the UTLS by increasing the concentration of ozone transported into the free troposphere, and could explain the bias.

It has been shown that vertical structures in tropospheric ozone profiles appearing as laminae in high horizontal resolution MLS ozone analyses come from the UTLS at high latitudes. By using backward trajectories, we show that these structures, which only appear at high resolution come from the UTLS region at high latitudes. In addition, we use MLS ozone analyses at high horizontal resolution to forecast the tropospheric ozone features. After 2.5 days the forecast vertical tropospheric profile is very close to the MLS ozone analysis which has a better representation of tropospheric ozone laminae structures than the free run. After 7 days the difference between forecast and MLS ozone analyses in the troposphere becomes significant (greater than 5 %). This confirms that improving the ozone in the UTLS region using MLS ozone data, improves the ozone distribution in the free troposphere revealing realistic ozone maxima in the ozone profile.

To improve the variability on tropospheric ozone and also to improve the absolute value of tropospheric ozone, we propose in a further study to extend the geometry of the observations assimilated by combining stratospheric limb observations with tropospheric column nadir observations.

Acknowledgements

We thank the reviewers for their constructive comments that helped to improve the article. This work was funded by the Centre National de Recherches Scientifiques (CNRS) and the Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) of Météo-France. VHP, JLA, LEA and WL are supported by the RTRA/STAE (POGEQA project). JLA thanks also the Région Midi Pyrénées (INFOAIR project). Thanks to the WOUDC to provide ozone sonde data sets. The authors acknowledge for the strong support of the European Commission, Airbus, and the Airlines (Lufthansa, Austrian, Air France) who carry free of charge the MOZAIC equipment and perform the maintenance since 1994. MOZAIC is presently funded by INSU-CNRS (France), Météo-France, and Forschungszentrum (FZJ, Julich, Germany). The MOZAIC data based is supported by ETHER (CNES and INSU-CNRS).

3.3 Étude sur l'estimation des flux d'ozone à la tropopause

Cette étude est complétée par l'estimation des flux nets d'ozone (i.e. les flux sortant de la troposphère moins les flux entrants dans la troposphère) à la tropopause pour les différents cas d'étude présentés dans l'article. Le calcul du flux net d'ozone permet de quantifier l'importance des événements STE suivant le changement de résolution du modèle. Il y a plusieurs manières d'estimer le flux d'ozone à travers la tropopause. Par exemple par corrélation des concentrations des gaz traces au niveau de l'UTLS entre N_2O et O_3 [Murphy et Fahey, 1994] ou encore entre des colonnes d'ozone et la vorticité potentielle [Olsen et al., 2002 2003], ces méthodes permettent une estimation du flux net à l'échelle globale. D'autre méthodes plus précises telles que l'advection de contour [Jing et al., 2004] permettent une estimation plus locale du flux net mais ne prennent pas en compte les processus chimiques. Dans cette étude, nous avons choisi d'appliquer la formule de Wei [1987] pour calculer le flux net d'ozone en utilisant les sorties du modèle MOCAGE pour les différentes expériences présentées dans l'article. Cette méthode a déjà été utilisée par Clark et al. [2007] en assimilant les données MOZAIC dans MOCAGE à l'échelle globale et à basse résolution horizontale (2°). Cette méthode requiert simplement l'information dynamique et les concentration d'ozone provenant du modèle. Elle est aussi bien adaptée pour comparer l'effet de l'assimilation d'ozone car les paramètres dynamique ne changent pas. On peut donc observer l'effet du changement des distributions d'ozone par l'assimilation de données.

La formule peut être écrite en coordonnées verticale de pression comme suit :

$$F_p(\mathrm{O_3}) = -g^{-1} \cdot [\mathrm{O_3}] \left(\omega - \frac{\partial p_{\mathrm{trop}}}{\partial t} - V_{\mathrm{h}} \cdot \nabla_{\mathrm{trop}} \cdot p_{\mathrm{trop}} \right) \tag{3.1}$$

avec g l'accélération de la pesanteur, $[\mathrm{O_3}]$ le rapport de mélange d'ozone au niveau de la tropopause, $\omega = dp/dt$ le vent vertical en coordonnées pression, p_{trop} la hauteur de la tropopause en coordonnées pression et V_{h} le vent horizontal au niveau de la tropopause. Les informations dynamique et chimique sont fournies par les modèles ARPEGE et MOCAGE, respectivement.

Wirth et Egger [1999] ont discuté certaines limites de la formulation de Wei [1987] en utilisant cinq différentes méthodes pour diagnostiquer les flux de masse d'air à travers la tropopause. Trois de ces méthodes sont basées sur l'équation de Wei utilisant pression, température potentielle ou encore vorticité potentielle comme coordonnée verticale. Il a été montré que l'équation de Wei qui utilise la vorticité potentielle comme coordonnée verticale présente les résultats les plus fiables. L'équation de Wei dans cette forme requiert la connaissance du chauffage diabatique et du forçage dynamique non-conservatif (comme utilisé par Wirth et Egger [1999]), ou alors l'utilisation lagrangienne de l'advection de particules pour connaître DPV/Dt (comme utilisé par Sigmond et al. [2000] et Luk'yanov et al. [2009]). Dans notre configuration du modèle ces informations ne sont pas disponibles directement et doivent être diagnostiquées (ce qui induit une source d'erreur supplémentaire). Aussi, Wei [1995] suggère que le calcul du flux net au niveau de la tropopause doit être indépendant du choix de la coordonnée verticale. Dans cette étude nous

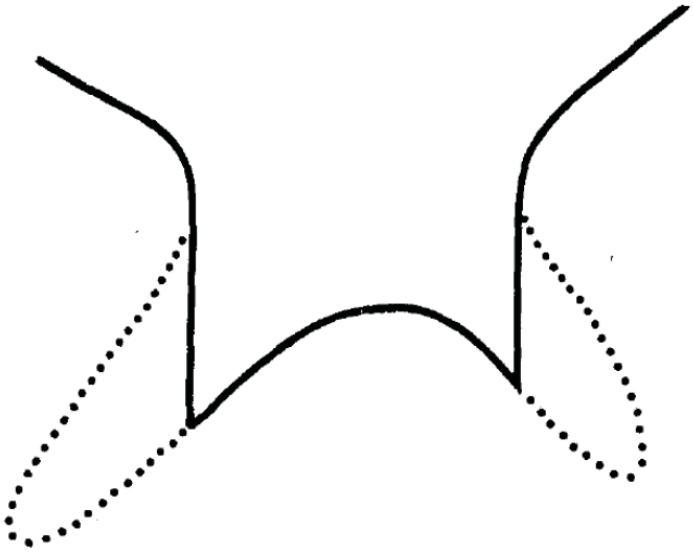


Figure 3.14 – Diagramme schématique illustrant la méthode pour définir la tropopause (trait plein) dans le cas de multiples tropopauses (pointillés) sur la verticale. Cette condition tronque les foliations de tropopause à leur origine (d'après Wei [1987]).

ne prenons en compte que le flux net d'ozone.

Pour le calcul du flux net d'ozone en utilisant l'équation de Wei en coordonnées pression, nous avons besoin de déterminer la hauteur de la tropopause dynamique et sa variation dans le temps et l'espace. Nous avons effectué une étude de sensibilité du flux par rapport à la hauteur de la tropopause en utilisant des valeurs de PV variant de 1.5 PVU à 2.5 PVU. La tropopause dynamique est généralement trouvée dans la littérature entre 1.6 PVU [World Meteorological Organization, 1986] et 3.5 PVU [Hoerling et al., 1991]. Pour une localisation donnée, le phénomène de repliement de la tropopause sur elle même peut donner lieu à de multiples tropopauses sur la verticale. Dans cette étude, nous avons défini la tropopause comme la plus haute altitude où le critère (e.g. 2 PVU) est rencontré. Cette condition tronque les foliations de tropopause (ou les replis de la tropopause) à leur origine. Par conséquent, toute masse d'air stratosphérique qui entrerait dans un repli de tropopause est considéré comme irréversiblement transféré en troposphère. La détermination de la hauteur de la tropopause pour chaque maille du modèle permet de calculer la surface de latropopause, et ensuite d'estimer les flux d'ozone à travers cette surface.

Pour étudier comment les flux à la tropopause réagissent au changement de résolution horizontale et à l'assimilation de données, le flux net d'ozone est calculé avec les expériences suivantes : LR free run, LR MLS analyses, HR free run et HR MLS analyses. Le pas de temps utilisé ici est de 3 h pour effectuer le calcul de flux sur une période de 4.5 jours (20-24 Juin 2009) pour une aire comprise entre 32° N–60° N et 0° W–27° E (1×10^6 km^2) pour le premier cas d'étude (voir partie 3.2.4.2) et sur une période de 3.5 jours (16-19 Juillet 2009) pour une aire comprise entre 5° N–65° N et 16° W–29° E (1.6×10^6 km^2) pour le second cas d'étude. Parce que cette étude s'intéresse à des évènement STE singuliers, le choix de la période et de la zone est définie par chaque évènement.

La figure 3.15 présente les valeurs de flux net d'ozone moyennées dans le temps et

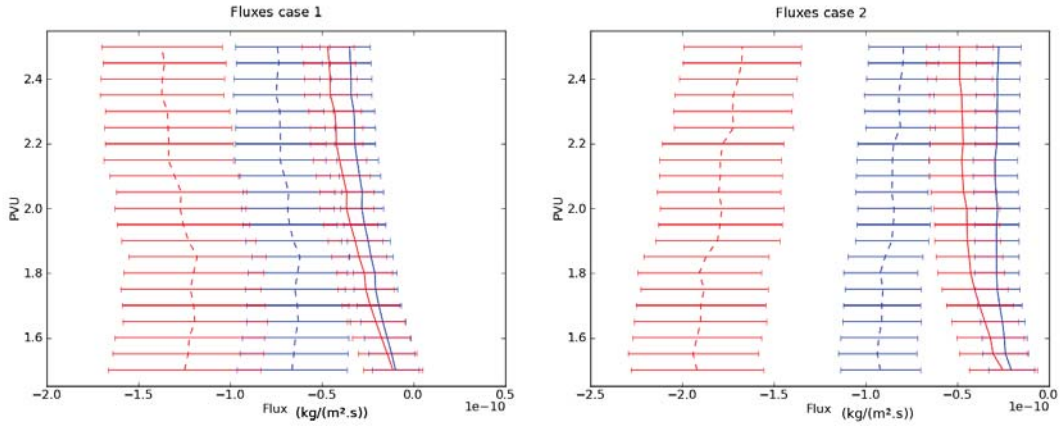


Figure 3.15 – Flux net d'ozone ($\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$) entre 1.5 PVU et 2.5 PVU à partir de MOCAGE sans assimilation (bleu) et des analyses MLS (rouge). La basse résolution (2°) et la haute résolution (0.2°) sont représentées par les lignes en tirets et pleines, respectivement. A gauche, Cas d'étude 1 : les flux sont estimés du 20 Juin 2009, 06 :00 UT au 24 Juin 2009, 18 :00 UT. A droite, Cas d'étude 2 : les flux sont estimés du 16 Juillet 2009, 06 :00 UT au 19 Juillet 2009, 18 :00 UT. Les barre d'erreur représentent la déviation standard divisée par la racine carrée du nombre de points de grille. Cela donne la limite inférieure de l'estimation de l'erreur car on ne tient pas compte de la corrélation entre les points de grille.

l'espace pour les période et les aires définies plus haut, pour une surface de tropopause iso-PV variant entre 1.5 et 2.5 PVU. Pour chaque expérience, les résultats montrent les mêmes ordres de grandeur pour une surface variant suivant les valeurs de PV. Le flux net d'ozone est modifié par l'assimilation de MLS et l'augmentation de la résolution horizontale. Les flux net à basse résolution montrent des valeurs allant de 0.5 à $2.0 \times 10^{-10}\,\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$ alors que les flux à haute résolution sont compris entre 0.2 et $0.5 \times 10^{-10}\,\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$. Aussi, afin de s'assurer que la contribution des incréments d'assimilation sur l'estimation du flux net d'ozone est négligeable, nous avons appliqué la formule de Wei sur les incréments d'ozone. Nous avons obtenus le "flux net d'incréments d'ozone" que nous avons comparé au "flux net d'ozone". Nous avons trouvé qu'en moyenne la contribution des incréments d'assimilation d'ozone est de l'ordre de 0.1-0.3%, c'est à dire négligeable.

Nous avons ensuite calculé les différences relatives moyennes entre les runs sans assimilation et les runs avec assimilation aux différentes résolutions (Tableau 3.1). La haute résolution tend à diminuer le flux d'ozone alors que l'assimilation de MLS tend à l'augmenter. L'assimilation de MLS à basse résolution augmente le flux de 86 % pour le cas d'étude 1 et de 109 % dans le cas d'étude 2. L'assimilation de MLS à haute résolution augmente le flux de 30 % pour le cas d'étude 1 et de 56 % dans le cas d'étude 2. L'impact de l'assimilation de MLS a donc plus d'impact dans le cas d'étude 1 que dans le cas d'étude 2. Cela s'explique par une plus forte augmentation par l'assimilation de MLS des valeurs d'ozone dans les structures filamentaires dans le cas d'étude 1 (voir figure 3.4 et 3.8). Le flux est alors augmenté de manière plus significative dans le cas d'étude 2. Dans la partie 3.2.4.4, nous avons montré que MOCAGE rencontre des difficultés à représenter les forts gradients d'ozone. La faible résolution verticale et la faible résolution horizontale

sont responsable des ces structures d'ozone trop lisses et de trop faibles maxima d'ozone à l'UTLS. L'assimilation de MLS permet d'augmenter ces maxima d'ozone vers des valeurs plus réalistes mais les gradients d'ozone demeurent toujours trop lisses, ce qui mène à une surestimation des champs d'ozone autour de ces maxima d'ozone. Nous avons aussi montré que cet effet est d'autant plus marqué que la résolution est basse. La surestimation de l'ozone à l'UTLS par l'assimilation de MLS est donc plus forte à basse résolution qu'a haute résolution. On comprend alors mieux pourquoi l'assimilation de MLS augmente plus fortement les flux d'ozone à basse résolution qu'a haute résolution. Si on compare les flux pour les runs sans assimilation à basse et à haute résolution, la haute résolution diminue le flux de manière similaire entre les deux cas d'étude (63 % et 68 % pour les cas d'étude 1 et 2, respectivement). Si on compare les flux pour l'assimilation de MLS à basse et à haute résolution, la haute résolution diminue le flux de manière similaire entre les deux cas d'étude (74 % et 76 % pour les cas d'étude 1 et 2, respectivement). L'augmentation de la résolution horizontale de 2° à 0.2° diminue les valeurs de flux net d'ozone du même ordre de grandeur entre les deux cas d'étude.

Table 3.1 – Différences entre les flux net d'ozone moyens en valeur absolues calculés dans l'intervalle 2.5 PVU - 1.5 PVU. LR_a : Assimilation de MLS à basse résolution, HR_a : Assimilation de MLS à haute résolution, LR_f : Free run à basse résolution, HR_f : Free run à haute résolution.

	Case 1	Case 2
$(LR_a\text{-}LR_f)/LR_f$	86 %	109 %
$(HR_a\text{-}HR_f)/HR_f$	30 %	56 %
$(HR_f\text{-}LR_f)/LR_f$	−63 %	−68 %
$(HR_a\text{-}LR_a)/LR_a$	−74 %	−76 %
Taille du domaine	1×10^6 km^2	1.6×10^6 km^2
Durée	4.5 jours	3.5 jours

Depuis les 20 dernières années, plusieurs études, utilisant des domaines géographiques différents, des durées d'études différentes et des résolutions horizontales différentes, ont estimé les flux d'ozone pour des évènements STE. Par exemple, Büker et al. [2005], Hitchman et al. [2003] et Lamarque et Hess [1994] ont travaillé sur des évènements STE, à des latitudes similaires en utilisant des modèles disposant d'une résolution horizontale de l'ordre de 1° et ont estimé des flux de 2.05×10^{-10} kg m^{-2} s^{-1} (taille du domaine : 9×10^6 km^2, durée : 2.5 jours), 3.24×10^{-10} kg m^{-2} s^{-1} (taille du domaine : 2.5×10^7 km^2, durée : 1 jour), 1.06×10^{-10} kg m^{-2} s^{-1} (taille du domaine : 3×10^6 km^2, durée : 3 jours), respectivement. Luk'yanov et al. [2009] a utilisé la méthode de [Wei, 1987] sur une grille horizontale de 0.25° et à estimé un flux net d'ozone de 0.94×10^{-10} kg m^{-2} s^{-1} (taille du domaine : 1.6×10^6 km^2, durée : 1 jours). Ces dernières estimations sont du même ordre de grandeur que les valeurs trouvées par Ancellet et al. [1991] qui a utilisé des mesures LIDAR (0.61×10^{-10} kg m^{-2} s^{-1}, durée : 2.5 jours). Ces précédentes études diffèrent de la

présente étude sur beaucoup de points : taille du domaine, localisation, durée, méthode de calcul, résolution modèle, période de l'année, etc. Tous ces paramètres ont une influence sur l'estimation du flux et les comparaisons entre ces études doivent être faite avec prudence.

Cependant dans cette étude, les flux à basse résolution sont compris entre 0.5 et $2.0 \times 10^{-10}\,\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$. Ces valeurs sont de l'ordre de grandeur des études précédentes qui ont une résolution horizontale similaire à 2° [Büker et al., 2005; Hitchman et al., 2003; Lamarque et Hess, 1994]. Les flux à haute résolution sont compris entre 0.2 et $0.5 \times 10^{-10}\,\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$ ce qui est de l'ordre de grandeur des valeurs trouvées par Luk'yanov et al. [2009], qui utilise une résolution similaire à 0.2° (0.25°), et Ancellet et al. [1991] qui sont des estimation provenant de mesures LIDAR.

3.4 Conclusions et perspectives

Dans ce chapitre, nous avons montré l'intérêt de l'assimilation des données d'ozone issues d'un sondeur au limbe tel que MLS. L'intérêt de l'étude s'est porté sur l'UTLS et l'impact de l'assimilation de profils stratosphériques sur la troposphère. Les résultats ont montré que l'assimilation de MLS permet de mieux représenter les structures filamentaires d'ozone à l'UTLS caractéristiques des échanges STE. Cela permet aussi de mettre en évidence une faiblesse du modèle qui est de sous estimer les valeurs des champs d'ozone dans la basse stratosphère polaire d'été. Une piste de recherche serait d'évaluer la dynamique stratosphérique fournie par les analyses ARPEGE, et plus particulièrement la circulation de Brewer-Dobson dont la faiblesse pourrait être la cause de la sous estimation d'ozone en basse stratosphère polaire par le modèle MOCAGE. Aussi, le niveau supérieur du modèle culmine à 14 hPa ce qui correspond environ à un peu plus d'une trentaine de kilomètres. Or la stratopause se situe aux alentours de 50 km d'altitude. Cette représentation partielle de la stratosphère par MOCAGE peut aussi être la cause de la mauvaise estimation de la circulation de Brewer-Dobson. Le schéma d'advection peut aussi potentiellement être en cause ainsi que le manque de résolution horizontale et verticale.

En augmentant les concentrations d'ozone dans les structures filamentaires à l'UTLS, la structure verticale des champs d'ozone se voit améliorée (plus réaliste en comparaison aux observations indépendantes) mais un biais troposphérique apparaît. Ce biais traduit un manque de résolution verticale et horizontale au niveau de l'UTLS. Avec l'augmentation de la puissance de calcul prévue au cours des prochaines années, de possibles améliorations modèles sont alors envisageables. Enfin pour remédier à ce bais positif en troposphère nous avons envisagé d'assimiler conjointement un sondeur stratosphérique au limbe avec des colonnes d'ozone troposphériques au nadir. Cela fera l'objet du prochain chapitre.

Chapitre 4

Assimilation combinée de colonnes troposphériques et de profils stratosphériques d'ozone dans un CTM régional.

Sommaire

4.1 Résumé long de l'article 2 84

4.2 Article 2 - Combined data assimilation of ozone tropospheric columns and stratospheric profiles in a regional CTM 87

4.2.1 Introduction 87

4.2.2 Model, data and methodology 90

4.2.3 Assimilation experiments set up 92

4.2.4 Evaluation against independent data 101

4.2.5 Conclusions 110

4.3 Conclusions et perspectives 112

Ce chapitre s'appuie sur l'article Barré et al. [2012b] soumis dans la revue *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* (Annexe B).

La section 4.1 est un résumé en français de l'article en anglais en section 4.2. La section 4.3 présente les conclusions et perspectives de l'étude.

4.1 Résumé long de l'article 2

De nombreux instruments à bord de satellites sont conçus pour mesurer la distribution globale de l'ozone atmosphérique. Comme il à été précisé dans le chapitre 2, les observations satellites de l'atmosphère peuvent êtres divisées en deux catégories selon leur visée : les sondeurs au limbe et les sondeurs au nadir. Les sondeurs au limbe peuvent fournir des profils d'ozone de la mésosphère, la stratosphère et aussi de la haute troposphère en visant de manière tangente à la surface terrestre différentes couches de l'atmosphère terrestre. Dans ce type de mesure, l'échantillonnage horizontal est faible mais l'information sur la verticale est détaillée. Par exemple, les sondeurs MLS (Mcrowave Limb Sounder) à bord du satellite Aura et MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) à bord du satellite Envisat fournissent des profils d'ozone qui s'étendent de la mésosphère à la haute troposphère avec une résolution verticale de quelques kilomètres (entre 1.5 km et 4 km). Les sondeurs au nadir on une visée verticale (dirigée de l'orbite vers la surface). Des quantités intégrés sur la verticale (colonnes totales et colonnes partielles) sont restituées par ce type de mesure. Les sondeurs au nadir affichent généralement un échantillonnage horizontal très détaillé alors que l'information sur la verticale est pauvre. Par exemple l'instrument OMI (Ozone Monitoring Instrument) à bord du satellite Aura et l'instrument IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) à bord du satellite MetOp-A restituent journalièrement des quantités intégrés d'ozone avec une résolution horizontale de l'ordre de 25 km $\times$ 25 km. Les avantages et les inconvénients de ces deux types de mesures d'ozone (limbe et nadir) peuvent être combinées pour avoir une estimation optimale des champs d'ozone dans la moyenne et la basse atmosphère. L'assimilation de données en utilisant l'information à priori d'un modèle permet de manière objective de combiner des jeux de données hétérogènes.

Un certain nombre d'études ont réalisé des expériences d'assimilation de données en utilisant des profils d'ozone stratosphériques issues de mesures au limbe et des colonnes totales d'ozone issues de mesures au nadir. Struthers et al. [2002] à utilisé les profils MLS d'ozone et les colonnes totales GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) dans la même expérience d'assimilation avec un modèle utilisant un schéma linéaire d'ozone. Il à été montré que la combinaison des observation issues de MLS et de GOME par la technique d'assimilation de données permet d'obtenir des champs d'ozone plus réalistes comparés aux champs d'ozone obtenus par l'assimilation de MLS ou de GOME indépendamment. Massart et al. [2009] à utilisé les mesures de MLS combinées avec des colonnes totales d'ozone de IASI en utilisant une schéma chimique linéaire d'ozone dans un modèle disposant d'une faible résolution horizontale (i.e. 2°) à l'échelle globale. Des comparaisons avec des données indépendantes ont montré les importantes améliorations qu'apporte l'assimilation de données au niveau des champs d'ozone stratosphérique mais des biais importants persistent au niveau des champs d'ozone troposphérique. Wargan et al. [2010]

a combiné les colonnes totales d'ozone OMI et les profils d'ozone MLS dans une expérience d'assimilation pour étudier la distribution de l'ozone à l'échelle globale à une résolution horizontale de 1°. Cette étude a utilisé une schéma linéaire d'ozone et s'est concentré sur l'UTLS. Les résultats montrent que les structures à grande échelle au niveau de l'UTLS sont améliorées par l'assimilation de MLS.

Dans cette présente étude, nous utilisons un schéma chimique non linéaire prenant en compte la chimie de l'ozone stratosphérique et troposphérique afin d'avoir la meilleure représentation possible des champs d'ozone à tous les niveaux du modèle. Pour assimiler les colonnes troposphérique IASI, nous avons aussi utilisé un CTM dans une configuration régionale au dessus de l'Europe qui nous permet d'avoir une résolution horizontale de 0.2° qui est de l'ordre de grandeur de la résolution des sondeurs au nadir. Comme suggéré dans le travail de Massart et al. [2009], nous avons pris en compte l'information fournie par les fonctions de balayage (averaging kernels en anglais) dans le système d'assimilation. Ainsi le système d'assimilation de données exploite de manière optimale le potentiel de détection de IASI. Coman et al. [2012] a aussi assimilé les colonnes troposphériques fournies par l'instrument IASI dans un CTM régional avec une résolution plus faible de 0.5°. Il a été montré que l'assimilation de IASI améliore les champs d'ozone du modèle en troposphère libre. Cependant, par la configuration du modèle utilisé, cette étude ne prend pas en compte l'influence de l'ozone stratosphérique sur l'ozone troposphérique. Hsu et Prather [2009] et Terao et al. [2008] ont montré qu'il existe un impact significatif de l'ozone de la basse stratosphère sur la distribution de l'ozone troposphérique. Barré et al. [2012a] a montré que l'assimilation de MLS dans la même configuration modèle que celle utilisée dans cette étude améliore fortement les champs d'ozone à l'UTLS. Un impact significatif de l'assimilation de MLS sur l'ozone troposphérique est mis en évidence dans cette dernière étude (chapitre 3).

Dans ce chapitre nous proposons de combiner l'assimilation des profils stratosphériques de MLS (mesure au limbe) et des colonnes troposphériques de IASI (mesure au nadir) dans une seule expérience d'assimilation en utilisant une configuration de modèle régional au dessus de l'Europe. La nouveauté de cette étude est de combiner ces deux type de mesures d'ozone dans une expérience d'assimilation de données en prenant en compte la chimie troposphérique et stratosphérique (schéma chimique non-linéaire) avec une résolution horizontale de 0.2°. Cette étude s'inscrit dans le projet "PREMIER impact study" [European Space Agency, 2012] dont l'un des objectifs est d'étudier la synergie entre les observations au limbe et au nadir afin de concevoir les prochaines générations des sondeurs spatiaux. Dans cette optique, nous avons focalisé notre étude sur le mois de Juillet 2009 afin de quantifier statistiquement les effets de l'assimilation de chaque instrument. L'ozone troposphérique dans le modèle est en majeure partie diminué par l'assimilation de IASI dans la partie Nord du domaine régional. L'assimilation de MLS augmente les concentrations d'ozone dans la moyenne et la basse stratosphère. Les informations apportés par MLS au modèle sont alors propagés vers la surface par les échanges entre la stratosphère et la troposphère pendant l'été 2009. Cela conduit à une augmentation du biais déjà existant dans les champs d'ozone troposphérique du modèle. La combinaison des données MLS et IASI permet de représenter des champs d'ozone en basse stratosphère réalistes sans pour autant biaiser les concentrations d'ozone en troposphère puisque contraintes par

l'assimilation de IASI. Des effets synergiques de l'assimilation combinée sont aussi mis en évidence au niveau de l'UTLS pour les latitudes supérieures à 50°N. Les diagnostiques OMA (Observations Minus Analyses) et OMF (Observations Minus Analyses) montrent que la contribution de l'assimilation de IASI en stratosphère est quasiment nulle en comparaison à celle due à l'assimilation de MLS. L'étude de ces diagnostiques en troposphère montre que l'influence de l'assimilation de MLS est forte en troposphère mais que l'assimilation de IASI est capable de corriger efficacement le biais induit sur la plupart du domaine Européen.

Les différentes analyses ont été comparées avec des données indépendantes. Une validation stratosphérique à l'aide du sondeur MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) montre que les profils stratosphériques du modèle sont améliorés par l'assimilation de MLS et l'assimilation combinée IASI et MLS. Les mesures d'ozone aéroportés MOZAIC ont ensuite été utilisées pour valider les champs au niveau de l'UTLS et de la troposphère libre. Au niveau de l'UTLS, les analyses MLS et les analyses combinées IASI et MLS montrent les meilleurs résultats avec un biais réduit dans le cas de l'assimilation combinée. Au niveau de la troposphère ce sont les analyses IASI et les analyses combinées qui montrent les meilleurs résultats. Si on prend en compte toutes les couches atmosphériques représenté par le modèle l'assimilation combinée de IASI et MLS montre une structure verticale de l'ozone fortement améliorée. Nous avons ensuite utilisé les données de colonnes totales d'ozone OMI afin de quantifier plus précisément la synergie. L'assimilation combinée montre les meilleurs scores statistiques (biais, écart quadratique moyen et corrélation). La validation avec OMI montre statistiquement que l'assimilation combinée de MLS et IASI améliore fortement les colonnes totales d'ozone représentées par le modèle parce que la structure verticale du champ d'ozone est améliorée. L'étude de la variabilité des différents niveau du modèle montrent l'importance de l'UTLS sur la variabilité de la colonne totale d'ozone. Deux régimes de variabilité sont identifiés : un lié aux ondes de gravité au dessus du jet subtropical et l'autre lié aux ondes de Rossby dans la très basse stratosphère.

Dans cette étude nous avons montré que des ré-analyses d'ozone de haute qualité peuvent donc être réalisés en troposphère comme en stratosphère en combinant des mesures au limbe et au nadir.

4.2 Article 2 - Combined data assimilation of ozone tropospheric columns and stratospheric profiles in a regional CTM

Abstract

Stratospheric ozone profiles from MLS (Microwave Limb Sounder) and tropospheric ozone columns from IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) have been assimilated using a variational (3D-FGAT) technique into the MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle) model during the month of July 2009. The model uses two domains configurations with an horizontal resolution of 0.2° over Europe and 2° over the globe and a detailed non-linear tropospheric and stratospheric chemical scheme. This study compares the separate and combined analysis of IASI tropospheric columns and MLS stratospheric profiles, in order to investigate possible synergistic effects. The contributions on the ozone distribution of each data assimilation experiment are discussed before evaluation of the analyses in self-consistency tests : χ^2, OMA (Observations Minus Analyses) and OMF (Observations Minus Forecasts) diagnostics. The results shows that MLS assimilation has a significant impact on the troposphere. An evaluation of the stratospheric distributions is made using independent MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) stratospheric profiles. IAGOS (In-Service Aircraft for a Global Observing System) flights are also used to evaluate the impact of the dataset assimilated in the troposphere and in the UTLS (Upper Troposphere Lower Stratosphere) regions. These comparisons with independent data show an improvement of the ozone vertical profile in the stratosphere and in the UTLS with MLS analyses. The IASI analyses show clearest improvements on ozone distributions in the free troposphere. The IASI and MLS combined assimilation analyses show the most realistic ozone fields overall in the stratosphere, UTLS and troposphere. Though neither instrument covers the entire atmospheric column alone, the combined MLS and IASI analyses also show the best agreement with the independent total ozone columns data from the OMI (Ozone Monitoring Instrument) data set which provides an extensive validation in space and time. Bias RMSE (Root Mean Square Error) and correlation are significantly improved compared to the free running model. Bias and RMSE are reduced by 15 DU (Dobson Unit) and 12 DU respectively. For the combined MLS and IASI analyses the correlation R^2 coefficient with the OMI total columns is improved and rises up to 0.8 in the Northern half of the regional domain. This set of validations show that the vertical ozone structure is strongly improved and that highly realistic ozone analyses are provided by combining the pieces of information brought by IASI and MLS in the analyses.

4.2.1 Introduction

Ozone is a key trace gas in the troposphere owing to its important role in atmospheric chemistry, air quality, and climate change [Ramaswamy et al., 2001]. Ozone concentration in the atmosphere has strong variations along its vertical profile. The stratosphere has high ozone concentrations with about 90% of atmospheric ozone, whereas the troposphere

has low ozone concentrations with only 10% of atmospheric ozone [Lelieveld et Dentener, 2000]. Stratospheric ozone protects life on Earth from harmful ultraviolet solar radiation. Upper tropospheric ozone represent the third largest greenhouse gas contribution to radiative forcing of climate change, with a forcing equivalent to about 24% of that from carbon dioxide [Ramaswamy et al., 2001]. At the earth surface, ozone is also a pollutant especially in urban areas, affecting air quality and health of a large proportion of the world population [Organization, 2005].

Several sensors onboard satellites have been designed to measure global atmospheric ozone distributions. Satellite observations can be divided into two categories based on their viewing geometries : limb sounder and nadir sounders. Limb sounders can provide ozone profiles of the mesosphere, the stratosphere and the upper troposphere by measuring the edge (the limb) of the Earth's atmosphere. In this type of measurement, the horizontal sampling is low but vertical information is detailed. For example, the Microwave Limb Sounder (MLS) onboard the Aura satellite and the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) onboard the Envisat satellite provide ozone profiles from the mesosphere to the upper troposphere with a vertical resolution of a few kilometers (between 1.5 km and 4 km). Nadir sounders have a downward view of the atmosphere. Vertically integrated ozone quantities (total columns and partial columns) are provided by this type of measurement. Nadir sounders generally display high horizontal resolution measurements of ozone whereas the vertical information is poor compared to limb-viewing instruments. For example, the Ozone Monitoring Instrument (OMI) onboard the Aura satellite and the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) onboard the MetOp-A satellite provide daily integrated ozone quantities with an horizontal resolution in the order of 25 km $\times$ 25 km pixel size. The strength and the weaknesses of these heterogeneous types of ozone measurements (limb and nadir) can be combined to have an optimal estimation of the ozone fields of the middle and the low atmosphere.

Data assimilation, which uses a priori information from a model, provides an objective way of combining the heterogeneous data from remote sensors onboard satellites, e.g. Struthers et al. [2002]. With the help of a Chemistry Transport Model (CTM) ozone data assimilation can bring many benefits from the heterogeneous ozone datasets [Lahoz et al., 2007]. Assimilated ozone data can also be propagated by the model to regions where data are unavailable.

Several studies have performed data assimilation experiments using stratospheric ozone profiles from limb measurements and total ozone columns from nadir measurements. Struthers et al. [2002] used MLS stratospheric profiles and Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) total columns in the same assimilation experiment with a model using a linear ozone scheme. It was shown that the combination of MLS and GOME observations via the assimilation process produced improved ozone fields compared to the assimilation of MLS and GOME separately. Wargan et al. [2010] combined OMI total ozone columns and MLS ozone profiles in an assimilation experiment to study the UTLS ozone distribution at global scale (i.e. at a relatively low resolution of 1°). This study uses a linear ozone model scheme and focuses on the UTLS region. The results demonstrate that the large scale features in the UTLS are well-constrained and improved by the assimilation of MLS compared to independent observations. Massart et al. [2009] used MLS measurements

combined with total ozone columns from two nadir sounders, SCIAMACHY and IASI, in two combined assimilation experiments using a linear ozone scheme in a low horizontal model resolution (i.e. 2°) at global scale. Comparison with independent data shows strong improvement in the stratospheric ozone fields but significant biases are persistent in the tropospheric ozone fields for which the model representation of ozone chemistry is not adapted (bad background).

In the present study, we use a stratospheric and tropospheric detailed non-linear chemical scheme in order to have a representation of ozone photochemistry in the stratosphere and the troposphere. The work of Massart et al. [2009] recommends using the vertical information provided by the averaging kernels in the nadir observations. In the present study, we use tropospheric ozone partial columns and we take into account the information provided by the averaging kernels in the assimilation process. The work of Massart et al. [2009] also recommends using an increased horizontal model resolution to exploit the full potential of IASI observations. Regional CTM models are able to provide increased horizontal resolution which match that of nadir observations. In the present study, we use a regional configuration (over Europe) at a resolution of 0.2°, the horizontal sampling of IASI (12 km). Coman et al. [2012] assimilated the tropospheric column provided by IASI into a regional (over Europe) and tropospheric CTM with a 0.5° horizontal resolution. It was shown that IASI observations improve the free tropospheric ozone in the model. However this study focuses on tropospheric ozone fields and the impact of stratospheric ozone on the troposphere is not taken in account. Hsu et Prather [2009] and Terao et al. [2008] show the impact of UTLS ozone on the tropospheric ozone distributions. Barré et al. [2011] shows that MLS assimilation in the same regional model configuration as used in the present study strongly improves the ozone fields in the UTLS and shows the significant impacts of UTLS ozone on tropospheric ozone.

In this study we combine MLS stratospheric ozone profiles (limb measurements) and IASI tropospheric ozone columns (nadir measurements) with averaging kernels in a single data assimilation experiment using a regional model configuration over Europe. What is novel in this paper is to combine tropospheric ozone columns with stratospheric ozone profiles in a data assimilation experiment with a non-linear stratospheric and tropospheric detailed chemical scheme with an horizontal resolution of 0.2°. This study was conducted in the framework of the PREMIER impact study project [European Space Agency, 2012] for which one of the objectives is to investigate the synergy between the limb and nadir observations (onboard the EUMETSAT Polar System Second Generation platform) to design the next generation of atmospheric sounders.

The outline of the paper is as follows. Section 4.2.2 provides a description of the MOCAGE model configuration and the assimilation system set up. Section 4.2.3 presents the two data sets used for the assimilation and discusses the impact of each assimilation of data set separately (i.e. limb versus nadir). The impacts on the stratosphere (respectively troposphere) from the tropospheric (respectively stratospheric) assimilation are investigated. Section 4.2.4 focuses on the validation of the data assimilation experiments against independent datasets. The improvement of the stratospheric, the UTLS and the tropospheric ozone fields are estimated with independent datasets. We then use the total ozone columns from OMI to provide extensive validation in space and time. Section 4.2.5

provides conclusions.

4.2.2 Model, data and methodology

4.2.2.1 Chemistry Transport Model

The MOCAGE model is a three-dimensional stratospheric and tropospheric CTM [Peuch et al., 1999] which simulates the interactions between the physical and chemical processes. It uses a semi-Lagrangian advection scheme [Josse et al., 2004] to transport the chemical species. It has 47 hybrid levels from the surface to ∼5 hPa with a resolution of about 40 m near the surface increasing to 800 m in the higher troposphere. Turbulent diffusion is calculated with the scheme of Louis [1979] and convective processes are represented with the scheme of Bechtold et al. [2001]. The chemical scheme used in this study is RACMO-BUS ; it is a combination of the stratospheric scheme REPROBUS [Lefèvre et al., 1994] and the tropospheric scheme RACM [Stockwell et al., 1997]. It includes 119 individual species with 89 prognostic variables and 372 chemical reactions. MOCAGE has thus the flexibility to be used for stratospheric studies [El Amraoui et al., 2008a] and tropospheric studies [Dufour et al., 2005]. It is used in the operational air quality monitoring system in France : Prev'air [Rouil et al., 2009] and in the pre-operational GMES (Global Monitoring for Environment and Security) atmospheric core service [Hollingsworth et al., 2008]. A detailed validation of the model has been done using a large number of measurements during campaigns such as the Intercontinental Transport of Ozone and Precursors the Intercontinental Transport of Ozone and Precursors (ICARTT/ITOP, Bousserez et al. [2007]) or the African Monsoon experiment (AMMA, Williams et al. [2010]). The meteorological analyses of Météo-France, ARPEGE [Courtier et al., 1991] are used to force the dynamics of the model every 3 hours. In this study, the model uses a regional domain at 0.2^o over Europe, from 32^o N to 72^o N and from 16^o W to 36^o E, while the time dependent chemical boundary conditions are provided by the global domain of MOCAGE (2°). The assimilation experiment started on 15 May 2009. The initialization field for this date was obtained from a free model run started on April 1^{st} from a climatological field. We thus have a free model run spin-up of 1.5 months and 1.5 month of data assimilation before 1^{st} July 2009. We consider this spin-up period to be sufficient to have enough well balanced ozone fields. In this study we focus on the entire month of July 2009.

4.2.2.2 Data assimilation system

The assimilation system used in this study is MOCAGE-PALM [Massart et al., 2005] implemented within the PALM framework [Buis et al., 2006]. The technique used is 3D-FGAT (First Guess at Appropriate Time, Fisher et Andersson [2001]). This technique is a compromise between the 3D-Var (3D-variational) and the 4D-Var (4D-variational) methods. It compares the observation and background at the correct time and assumes that the increment to be added to the background state is constant over the entire assimilation window. The choice of this technique limits the size of the assimilation window, since it has to be short enough compared to chemistry and transport timescales. It has been validated during the assimilation of ENVISAT data project (ASSET, Lahoz et al. [2007]) and has produced good quality results compared to independent data and other assimilation

systems [Geer et al., 2006]. MOCAGE-PALM has been used to assess the quality of satellite ozone measurements [Massart et al., 2007]. In this context, assimilation products have been used in many atmospheric studies in relation to the ozone loss in the Arctic vortex [El Amraoui et al., 2008a], exchanges between the tropics and mid-latitudes [Bencherif et al., 2007], Stratosphere-Troposphere Exchange (STE) [Semane et al., 2007], exchange between the polar vortex and the mid-latitudes [El Amraoui et al., 2008b], and diagnosing STE of ozone and carbon monoxide [El Amraoui et al., 2010].

4.2.2.3 Assimilated observations

IASI 0-6km ozone observations

The IASI instrument [Clerbaux et al., 2009] is a Fourier transform spectrometer, onboard the European MetOp-A satellite, operational since June 2007. As an operational instrument, IASI provides temperature and humidity profiles and cloud information. Providing spatial distributions of O_3 is also among the objectives of the mission. IASI measures the thermal infrared radiation (TIR) emitted by the Earth surface and the atmosphere. The MetOp-A satellite follows a polar sun-synchronous orbit (about 800 km altitude) and has two overpasses per day, one in the morning and the other during the night. IASI has a swath 2200 km wide perpendicular to the satellite orbit and the pixel size is 12 km on the ground comparable to the resolution of the MOCAGE model (0.2°). In this study, only the morning overpasses have been considered because of the higher contrast between the surface temperature and the temperature in the lowermost tropospheric layers. This is required to lower the sensitivity of the observations in the lowermost atmospheric layers.

The IASI instrument is able to provide tropospheric columns of ozone between 0 km and 6 km (IASI O_3 0-6km) with a vertical sensitivity provided by averaging kernel (AVK) functions. The AVK expresses the sensitivity in height of the retrieved profile by providing the relative weighting in the solution between the true profile and the a priori profile [Rodgers, 2000]. The retrieval method used here is the same as in Eremenko et al. [2008], which is a constrained least square fit method with an analytical altitude-dependent regularization method. To perform this retrieval the KOPRA (Karlsruhe Optimised and Precise Radiative transfer Algorithm, Stiller [2000]) radiative transfer model and the KOPRAFIT inversion module are used. The a priori profiles are provided by a climatology from McPeters et al. [2007]. The IASI O_3 0-6km columns have been validated and used in several studies. Eremenko et al. [2008], which presents the retrieval technique, shows a good agreement between IASI O_3 0-6km columns and ozonesonde measurements : mean bias is smaller than 5% and correlation larger than 0.85. Keim et al. [2009] show a statistical validation of IASI O_3 0-6km columns with a small bias less than 2 DU (Dobson Unit) against ozonesonde measurements. **?** shows a global statistical validation over one year and find a positive average bias of 0.15 DU (1.2%) in comparison with ozonesonde measurements. Dufour et al. [2010] use IASI O_3 0-6km columns observations to diagnose the seasonal and daily variation of tropospheric ozone over large cities.

The IASI dataset used in this study covers most of the regional domain with a latitude range from 35°N to 70°N and a longitude range from 15°W to 35°E. On average

8000 observations are provided daily in this latitude-longitude area.

MLS ozone observations

The Aura satellite was launched on 15 July 2004 and placed into a near-polar Earth orbit at 705 km. It makes about 14 orbits per day. The MLS instrument onboard Aura uses the microwave limb sounding technique to measure chemical constituents and dynamical tracers between the upper troposphere and the lower mesosphere [Waters et al., 2006]. It provides global coverage with 3000 profiles daily between 82^o N and 82^o S and about 100 profiles daily in the regional model domain (from 32^o N to 72^o N and from 16^o W to 36^o E). In this study we use Version 2.2 of the MLS O_3 dataset. The retrieval is made between 215 and 0.46 hPa with a vertical resolution of 3 km in the upper troposphere and the stratosphere. The along-track resolution of O_3 is 200 km between 215 and 10 hPa. The estimated single profile precision in the extra-tropical UTLS region is of the order of 0.04 ppmv (parts per million by volume) from 215 to 100 hPa and between 0.05 and 0.2 ppmv from 46 to 10 hPa. For the present assimilation experiment, MLS data are selected according to the precision and quality flags recommended in the MLS Version 2.2 Level data quality and description document (see `http://mls.jpl.nasa.gov/data/v2-2_data_quality_document.pdf`). The respective errors for each profile are taken into account in the assimilation process through the error covariance matrix of observations. Note that only measurements performed between 215 and 10 hPa are used during the assimilation experiment because of the upper boundary of the MOCAGE configuration used here, which is at 5 hPa.

4.2.3 Assimilation experiments set up

In this paper four model and assimilation experiments are performed. A model run without data assimilation called hereafter Free model Run (Free-R). A MLS data assimilated run called hereafter MLS Run (MLS-R) ; an IASI data assimilated run called hereafter IASI Run (IASI-R) ; and a combined IASI plus MLS assimilated run called hereafter Combined Run (Combined-R). These four experiments are required for understanding the effect of each assimilated dataset and the synergy of the Combined-R. Figure 4.1 provides the zonal mean of the Free-R ozone field for the month of July 2009. High ozone values (between 10 mPa and 17 mPa) and low ozone values (under 4 mPa) show the contrast between the stratosphere and the troposphere. Between these two regions the UTLS shows a transition region where strong ozone gradients are observed. The height of this transition region has variations in latitude, being near 70 hPa at 32°N and near 200 hPa at 72°N. A progressive difference is visible between North and South. In the Northern latitudes the UTLS ozone gradient is "weak", between 100 and 200 hPa, in the southern latitudes the UTLS ozone gradient is "strong", between 50 and 100 hPa.

4.2.3.1 χ^2 diagnostic

In this section, we evaluate the assimilation experiments with the help of the χ^2 diagnostic [Menard et al., 2000; Menard et Changs, 2000]. This method provides information for

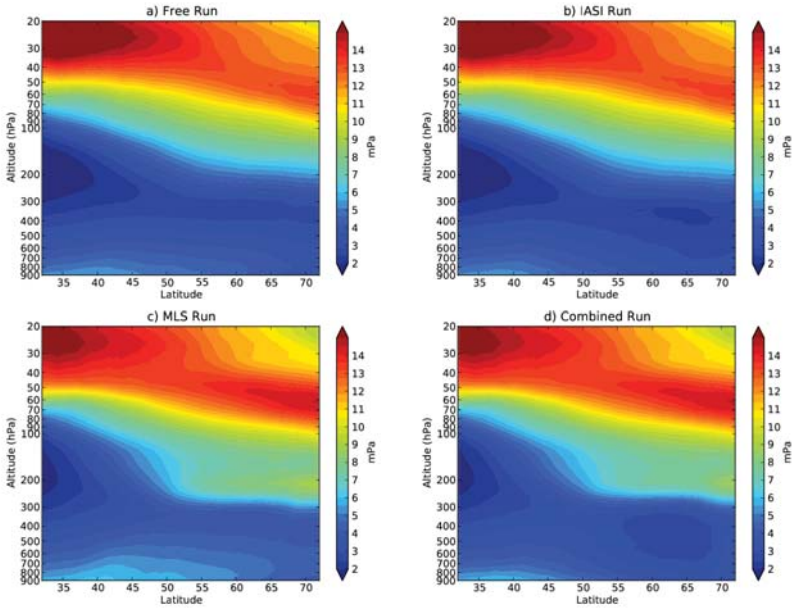


Figure 4.1 – Zonal mean of the ozone field (mPa) of the free model run **(a)**, the IASI analyses **(b)**, the MLS analyses **(c)** and the Combined IASI and MLS analyses **(d)** for the month of July 2009 over Europe (longitudes from 15°W to 35°E).

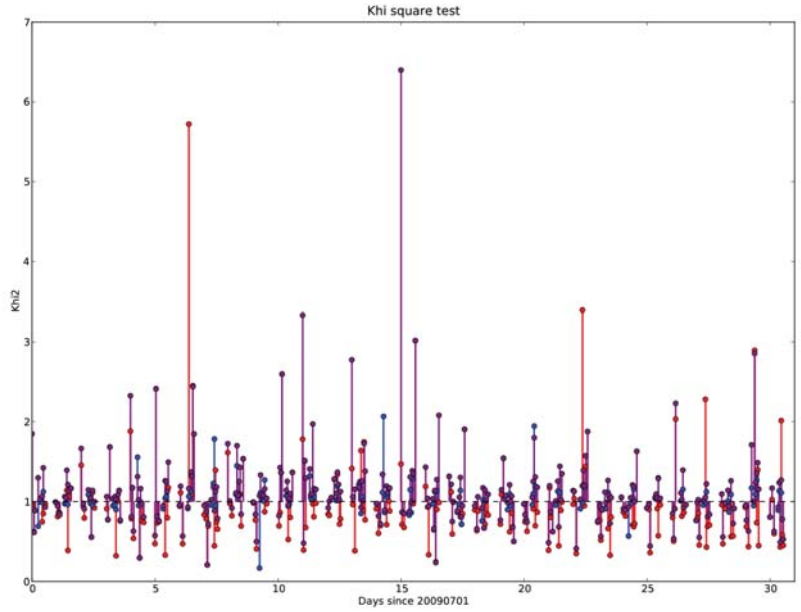


Figure 4.2 – Plots of χ^2 as a function of time for the month of July 2009 over Europe. Each value is calculated for one assimilation window (1 hour) for IASI O_3 analyses (red), MLS O_3 analyses (blue) and combined MLS and IASI O_3 analyses (purple) over Europe (see text for a discussion of this test). χ^2 values are omitted when no IASI or MLS data are available.

assessing if the observations and background error covariance matrices are appropriately weighted. The χ^2 test is defined as follows : the penalty function as its minimum (J_{min}) follows a chi-squared distribution with average value $N/2$ where N is the number of observation used for the analysis. $\chi^2 = 2J_{min}/N$ must be equal on average to 1 [Lahoz et al., 2007]. The cost function J, in the case of the 3D-FGAT, is given by :

$$J(x)=\frac{1}{2}\left[x(t_0)-x^b(t_0)\right]^T\mathbf{B}^{-1}\left[x(t_0)-x^b(t_0)\right]+\frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N}[y(t_i)-H(x(t_i))]^T\mathbf{R}_i^{-1}[y(t_i)-H(x(t_i))] \quad (4.1)$$

The first term on the left-hand-side quantifies the misfit to the background, where $x^b(t_0)$ is the background state at the initial time and $\mathbf{B}$ is the background error covariance matrix. The second term on the right-hand-side quantifies the misfit to the observations, where $y(t_i)$, H and $\mathbf{R}$ are the observation at the time t_i, the observation operator and the observation error covariance matrix, respectively. A value of χ^2 close to 1 indicates a good estimation of $\mathbf{B}$ and/or $\mathbf{R}$. If the χ^2 value is lower (greater) than 1 implies an overestimation (underestimation) of $\mathbf{B}$ and/or $\mathbf{R}$. In this work $\mathbf{R}$ is diagonal and defined by the measurement errors provided with the MLS O_3 and the IASI O_3 datasets, whereas $\mathbf{B}$ is defined as constant in space and time with specified off-diagonal terms. We adjusted the diagonal elements and the correlation length scales of $\mathbf{B}$ (to parameterize the off-diagonal elements of the matrix [Massart et al., 2009]) in order to obtain the closest average χ^2 value to 1 for the Combined-R. The correlations μ_{mn} are computed with length-scales L_{xy} for the horizontal and L_z for the vertical using a diffusion equation [Weaver et Courtier, 2001] defined as follows

$$\mu_{mn}^{xy} = exp(-\frac{\delta_{mn}r_{xy}^2}{2L_{xy}^2}) \quad (4.2)$$

where $\delta_{mn}r_{xy}$ represents the horizontal distance between location m and n.

$$\mu_{mn}^{z} = exp(-L_z^{-2}log^2(\frac{P_m}{P_n})) \quad (4.3)$$

where P_m and P_n are the pressures at two vertical levels m and n.

In figure 4.2, the χ^2 average value is 1.04, 0.96 and 1.12 for the IASI-R, the MLS-R and the Combined-R respectively, where $B_{mm} = 20\%$ of the background value, $L_{xy} = 1°$ and $L_z = 0.05$. The three different experiments have the same adjustment parameters defining $\mathbf{B}$ and present average values of the χ^2 diagnostic close to 1. These results shows that both the observations and the background error covariances matrices are appropriate, and thus that the assimilation experiments are well conditioned.

4.2.3.2 IASI 0-6km ozone assimilation (IASI-R)

In a previous study, Coman et al. [2012] used the IASI O_3 0-6 km columns for data assimilation experiments. IASI was assimilated in a tropospheric CTM and it was shown that data assimilation of IASI O_3 0-6 km columns improves the simulated ozone fields in the middle and the lower troposphere and also impacts positively surface ozone. In this study we also use the IASI O_3 0-6 km columns in our data assimilation system. IASI O_3 0-6 km vertical sensitivities provided by the AVK are also used to perform the data assimilation.

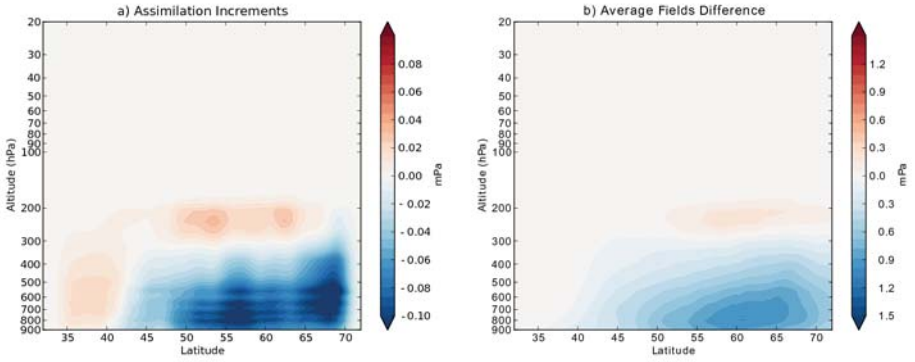


Figure 4.3 – **(a)** Zonal mean of the increments of the IASI ozone analyses in partial pressure (mPa) ; **(b)** Zonal mean of the IASI ozone analysis minus the MOCAGE free run in mPa. Zonal means are performed for the month of July 2009 over Europe (longitudes from 15°W to 35°E).

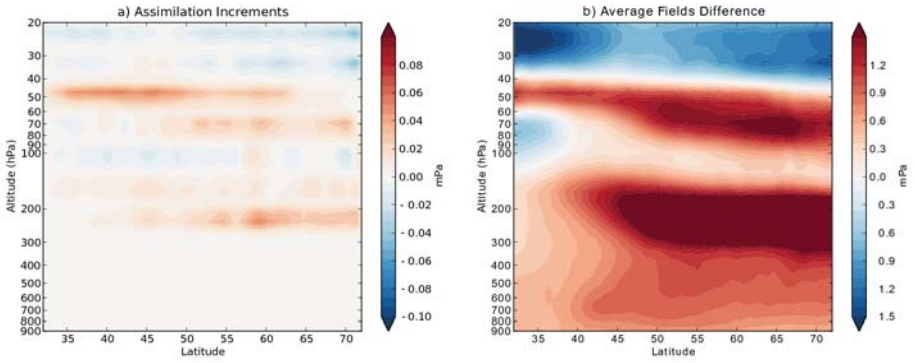


Figure 4.4 – **(a)** Zonal mean of increments of the MLS ozone analyses in partial pressure (mPa) ; **(b)** Zonal mean of the MLS ozone analyses minus the MOCAGE free run in mPa. Zonal means are performed for the month of July 2009 over Europe (longitudes from 15°W to 35°E).

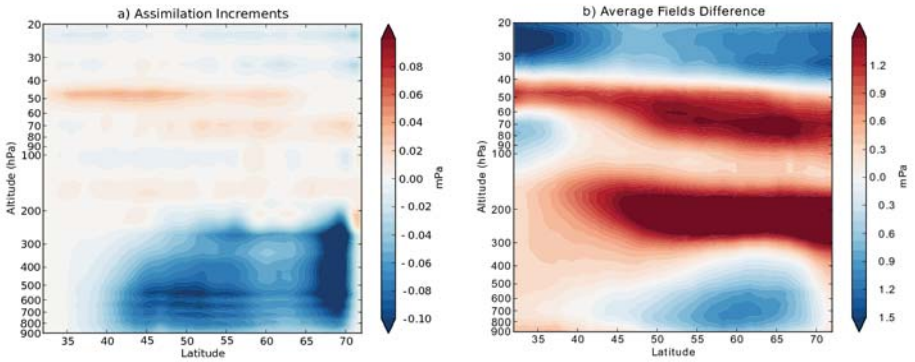


Figure 4.5 – **(a)** Zonal means of increments of MLS plus IASI combined ozone analyses in partial pressure (mPa) ; **(b)** Zonal means of the MLS plus IASI ozone analyses minus the MOCAGE free run in mPa. Zonal means are performed for the month of July 2009 over Europe (longitudes from 15°W to 35°E).

Figure 4.3a shows the assimilation increments zonally averaged for the month of July 2009. By definition, the assimilation increment corrects for the instantaneous difference between the measured ozone value and the modeled ozone value. Negative increments correspond to assimilation decreasing ozone values while positive increments correspond to assimilation increasing ozone values. IASI-R shows strong negative increments in the troposphere below 400 hPa. There are more IASI 0-6km observations in the Northern part of the domain (between 50°N and 72°N) and thus zonal means of increments are more intense than in the Southern part of the domain (between 32°N and 50°N).

Figure 4.3b show the differences between the IASI-R and the Free-R (i.e. IASI-R ozone fields minus Free-R ozone fields) zonally averaged for the month of July 2009. These differences illustrate not only the contribution of data assimilated, and it also shows how the information is propagated by the model in areas where there are no observations. These differences show a decrease of ozone between -0.5 mPa and -1.5 mPa in the troposphere with the lowest values near the surface (below 700 hPa) and located around 60°N. There are large increments in the troposphere, which are propagated downward and southward. The troposphere has a rapid vertical mixing and horizontal winds are not as strong as in the stratosphere. The tropospheric assimilation increments are not advected horizontally as quickly, but are rapidly mixed vertically.

4.2.3.3 MLS ozone assimilation (MLS-R)

Previous studies have shown the impact of MLS O_3 assimilation in the MOCAGE CTM. El Amraoui et al. [2010] assimilated MLS O_3 at a global scale and found that MLS analyses have the capability to improve STE ozone structures. **?** assimilated MLS O_3 in a regional domain (the same as used in this study) and showed the capability of MLS analyses to represent realistic filamentary structures in the UTLS. It was also shown that tropospheric ozone is impacted adversely, with a positive bias induced in the analyses through the transport. In this section we briefly describe the assimilation of MLS O_3 and its impact on the modeled ozone fields. To perform the assimilation of MLS O_3 stratospheric profiles in the regional domain, we previously assimilated MLS O_3 profiles at global scale to provide consistent boundary condition values. Due to the strong stratospheric horizontal flows, consistent boundary conditions are indispensable over a limited area domain. Figure 4.4 provides as in section 4.2.3.1 the zonal averages for assimilation increments for MLS-R (only for the regional assimilation) and for the difference between the MLS-R and the Free-R (i.e. MLS-R ozone fields minus Free-R ozone fields). MLS-R increments (Fig. 4.4a) show positive and negatives values in the stratosphere above 250 hPa. There are no assimilation increments in the troposphere (below 250 hPa). The strongest assimilation increments are positive and are located in the UTLS at northern latitudes (between 50°N and 72°N). Strong positive increments are also located in the stratosphere between 80 hPa and 40 hPa (in all latitudes of the regional domain). This altitude range corresponds to the lower part of the ozone layer seen in the Free-R (Fig. 4.1a and 4.1c) where the ozone fields are increased in a range from 1 mPa (32°N) to more than 1.5 mPa (72°N). The total contribution of the MLS-R (Fig. 4.4b) shows the same location of high values as in the assimilation increments. The UTLS ozone is increased especially in the Northern part of the domain (between 50°N and 72°N) by more than 1.5 mPa. The increments

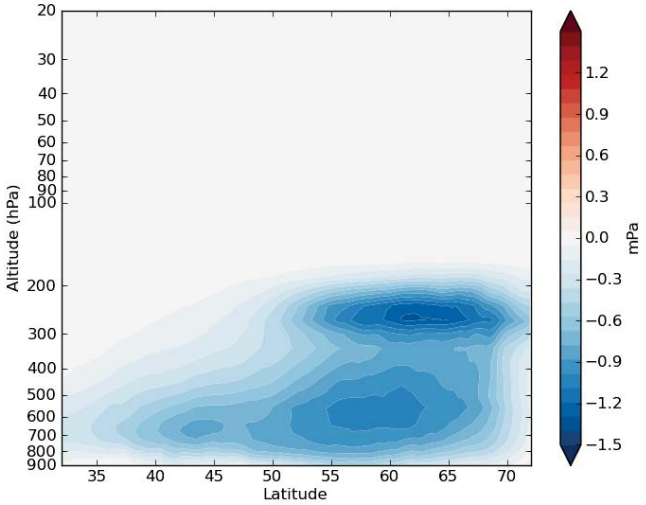


Figure 4.6 – Zonal means of [Combined-R]+[Free-R]-[IASI-R]-[MLS-R] in mPa. Zonal means are performed for the month of July 2009 over Europe (longitudes from 15°W to 35°E).

are propagated in the Southern latitudes of the domain and also in the troposphere. The tropospheric ozone shows an average increase of 0.8 mPa. This is explained by the advection of the UTLS assimilation increments in the troposphere during STE events occurring in the summer of 2009.

4.2.3.4 IASI ozone and MLS ozone combined assimilation (Combined-R)

We now describe the results from the simultaneous assimilation of the MLS ozone stratospheric profiles and the IASI tropospheric ozone columns. Figure 4.5 provides the zonal average for the month of July 2009, the Combined-R assimilation increments and the difference between the Combined-R and the Free-R (Combined-R ozone fields minus Free-R ozone fields). Combined-R assimilation increments (Fig. 4.5a) in the stratosphere present the characteristics of both IASI-R and MLS-R increments. Combined-R assimilation increments in the troposphere show stronger negative values which extend higher than in the IASI-R. This is due to the tropospheric contribution of global MLS analyses which include a contribution from the boundary conditions outside of the regional domain (see section 4.2.3.5 for details). MLS analyses spread increased ozone values in the middle and upper troposphere at the global scale as explained in section 4.2.3.4, and the boundary conditions provide increased ozone values. The IASI assimilation increments are then stronger in the middle troposphere and the upper troposphere. The Combined-R tropospheric contribution shows negatives values as for the IASI-R. In a general manner, the Combined-R has the capability to reduce ozone in the troposphere (IASI-R contribution) and to increase ozone in the lower stratosphere (MLS-R contribution) which provides stronger vertical gradients in the UTLS.

The simultaneous assimilation presents features similar to these seen with MLS assimilation in the stratosphere and with IASI 0-6km assimilation in the troposphere, and hence

appears as a compromise. Further, in order to investigate a potential synergy when MLS and IASI 0-6km ozone measurements are jointly assimilated, we compare the fields obtained in figure 4.5b (Combined-R minus Free-R) with the sum of the fields of figure 4.3b (IASI-R minus Free-R) and 4b (MLS-R minus Free-R). The field obtained in figure 4.6 is then :

$$(Combined_R - Free_R) - [(IASI_R - Free_R) + (MLS_R - Free_R)] = Combined_R + Free_R - IASI_R - MLS_R \quad (4.4)$$

The most marked synergistic effects are found in the UTLS region betwen 200 hPa and 300 hPa and in the Northern half of the regional domain between 50°N and 72°N. This region is constrained by both assimilated datasets (MLS and IASI 0-6km) at the same time, and it displays stronger ozone gradients (Figures 4.1d and 4.5b) than it is the case in the other assimilation experiments. Below 300 hPa, the "synergy" is that IASI 0-6km observations are able to counter the effetcs of downward-transported stratospheric increments from MLS assimilation. The observational constraint in the troposphere and in the stratosphere reduce the influence of the background (model and transported increments from previous assimilation windows) on the final analysed product.

4.2.3.5 Observation minus forecast and observation minus analysis

Observation minus forecast (OMF) innovations and observation minus analysis (OMA) residuals are computed over the regional domain for the month of July 2009 to test whether the observations, forecast and analysis fields, and their errors, are consistent [Lahoz et al., 2007]. Figure 4.7 provides the OMF distributions normalized by the measurement errors for each assimilated instruments (i.e. IASI or MLS) and for each assimilation experiments (i.e. IASI-R, MLS-R or Combined-R). The OMF normalized histograms are fitted by Gaussian functions. The match between the fitted Gaussian functions and the OMF normalized histogram is very good. This good agreement supports the assumption that the observations and the forecast have Gaussian errors. The IASI O_3 assimilated normalized OMF distributions present a different mean and standard deviation depending on wheteher the assimilation of IASI is combined with MLS O_3 (Combined-R) or not (IASI-R). In the case of the IASI-R, the normalized (by the measurement errors) OMF mean and standard deviation are -0.23 and 1.44, whereas in the case of the Combined-R the normalized OMF mean and standard deviation are -0.88 and 1.62. The OMF distribution of the IASI assimilation is thus influenced by the impact in the troposphere of MLS assimilation. Figure 4.8 provides the variations of normalized OMA, OMF mean and standard deviation in latitude and longitude for the IASI O_3 analyses for the IASI-R and for the Combined-R. The Combined-R shows significantly increased OMF mean and standard deviation compared to the IASI-R. The largest increases are found at the Northern and Western boundary of the regional domain and at 50°N. This illustrates the influence of the boundary conditions on the background state of the model in the troposphere, since the free model run and the MLS O_3 analyses at the global scale have been used to force the boundary conditions in the IASI-R and the Combined-R, respectively. The mean tropospheric flow during July 2009 is Westerly oriented over the Atlantic between 35°N

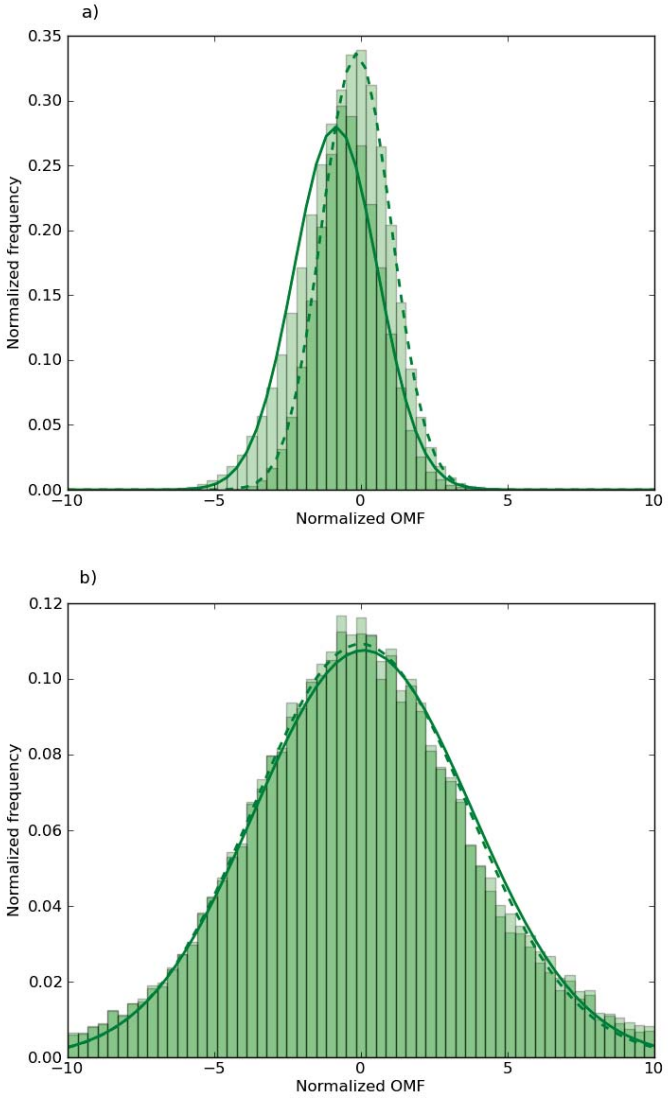


Figure 4.7 – Distributions of observations minus forecasts (OMF) normalized by the observations errors for assimilated IASI O_3**(a)** and assimilated MLS O_3 **(b)**. Dashed lines represent the Gaussian fit of OMF for IASI or MLS single analyses and solid lines represent the Gaussian fit for OMF of IASI and MLS combined analyses. The frequency values are normalized by the total number of observations. The diagnostics are performed for the month of July 2009 over Europe.

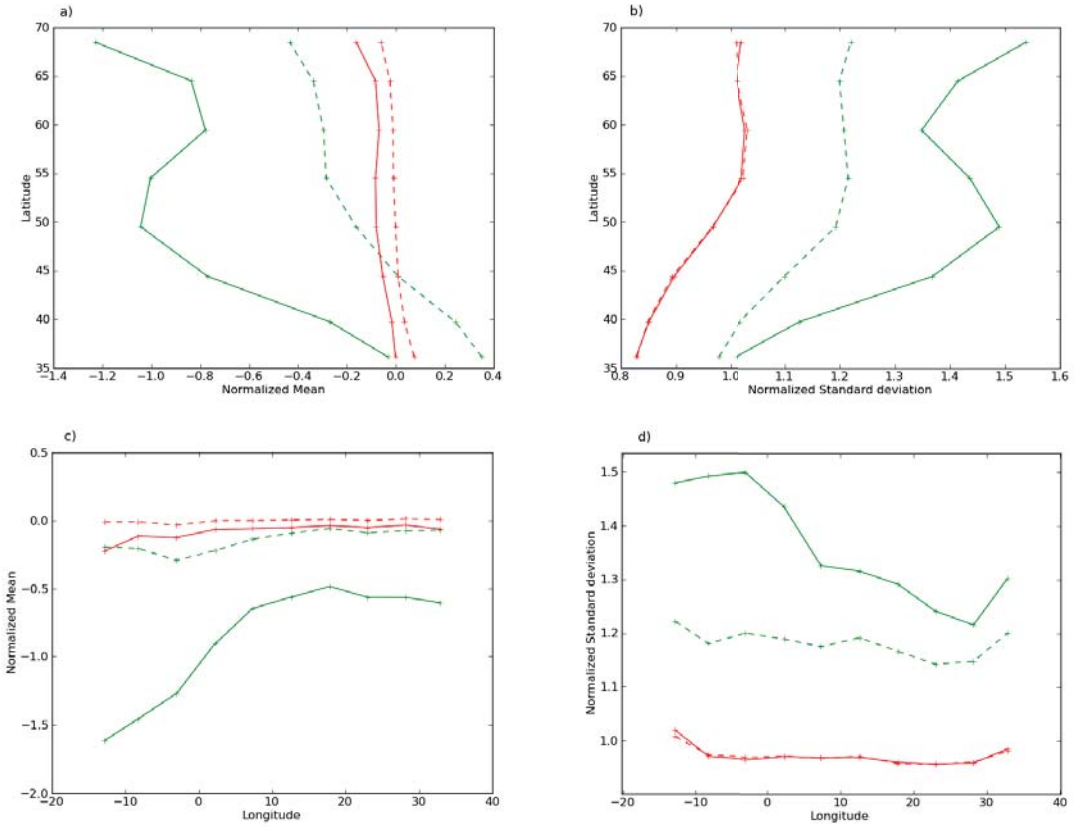


Figure 4.8 – Latitudinal and longitudinal variations of the mean ((**a**) and (**c**) respectively) of observations minus forecasts (OMF, green) and observations minus analyses (OMA, red) normalized by the observations errors concerning assimilated IASI O_3. Latitudinal and longitudinal variations of the standard deviation ((**b**) and (**d**) respectively) of OMF (green) and OMA (red). Dashed lines represent the OMA, OMF of IASI or MLS single analyses and solid lines represent the OMA, OMF of IASI and MLS combined analyses. The diagnostics are performed for the month of July 2009 over Europe.

and 55°N and Northerly oriented at the Northern boundary of the regional domain (not shown). Over the entire regional domain, the OMA shows reduced means and standard deviations compared to the OMF. This indicates that the analyses are closer to the observations than the forecast and that assimilation of IASI O_3 corrects the background state over the entire regional domain. The effect of the boundary conditions is less visible for the OMA diagnostics than for the OMF diagnostics since very small differences between IASI-R and Combined-R are observed in the mean and standard deviation values. Only slightly increased values in the OMA diagnostics are visible at the edges of the domain. Concerning MLS O_3 assimilation, the similarity between the MLS-R OMF distribution and the Combined-R OMF distribution shows that the impact of IASI O_3 assimilation on the stratosphere is not significant compared to MLS O_3 assimilation. The mean and standard deviation of the normalized OMF distributions are about -0.17 and 4.63, respectively and the normalized OMA mean and standard deviation are about 0.009 and 0.78, respectively. The strong reduction of the standard deviation between the OMF and OMA distribution shows a strong improvement of the background state variability at all observational levels.

4.2.4 Evaluation against independent data

4.2.4.1 MIPAS

The MIPAS instrument onboard Envisat provides about 1300 radiance profiles per day, each consisting of 27 radiance spectra covering the altitude range of 6 to 70 km, and the spectral range of 4.15 to 14.6 μm. The sun-synchronous orbit of Envisat at $\sim$800 km altitude allows a global monitoring of the atmosphere from pole to pole, with a horizontal sampling of 410 km along 14.4 orbits per day. Retrieved ozone profiles are used in this study. A detailed description of the specific retrieval approach, micro-windows and the estimated precision, accuracy and vertical resolution for the current data version is given in von Clarmann et al. [2009]. Validation results show that below 30 km, the bias never exceeds $\pm$0.3 ppmv [Stiller et al., 2011].

Figure 4.9 compares the profiles of the four assimilation experiments (Free-R, IASI-R, MLS-R and Combined-R) with MIPAS measurements (black dots) averaged in a 10° latitude bands over the regional domain for the month of July 2009. Error bars provide the average error of the MIPAS measurements. Stratospheric profiles, between 14 hPa and 100 hPa, of MLS-R and Combined-R show a better agreement with MIPAS data than Free-R and IASI-R. In MLS-R and Combined-R, the stratospheric information from MLS ozone data gives an added value onto the stratospheric ozone fields concentrations. For each band of latitude the shape of the Combined-R and MLS-R stratospheric ozone profiles is closer than the Free-R to what is observed independently by MIPAS. Figure 4.9 also show the impact of the MLS-R and Combined-R in the UTLS. MIPAS provides observations at UTLS altitudes but with important errors in the limb measurements and a low number of observations. This explains the wide error bars in the MIPAS UTLS measurements. On average, increased ozone values in the UTLS, between 100 hPa and 300 hPa, in the MLS-R and Combined-R show an improvement with respect to Free-R regarding MIPAS data. Between 57°N and 72°N, a maximum of ozone near 200 hPa

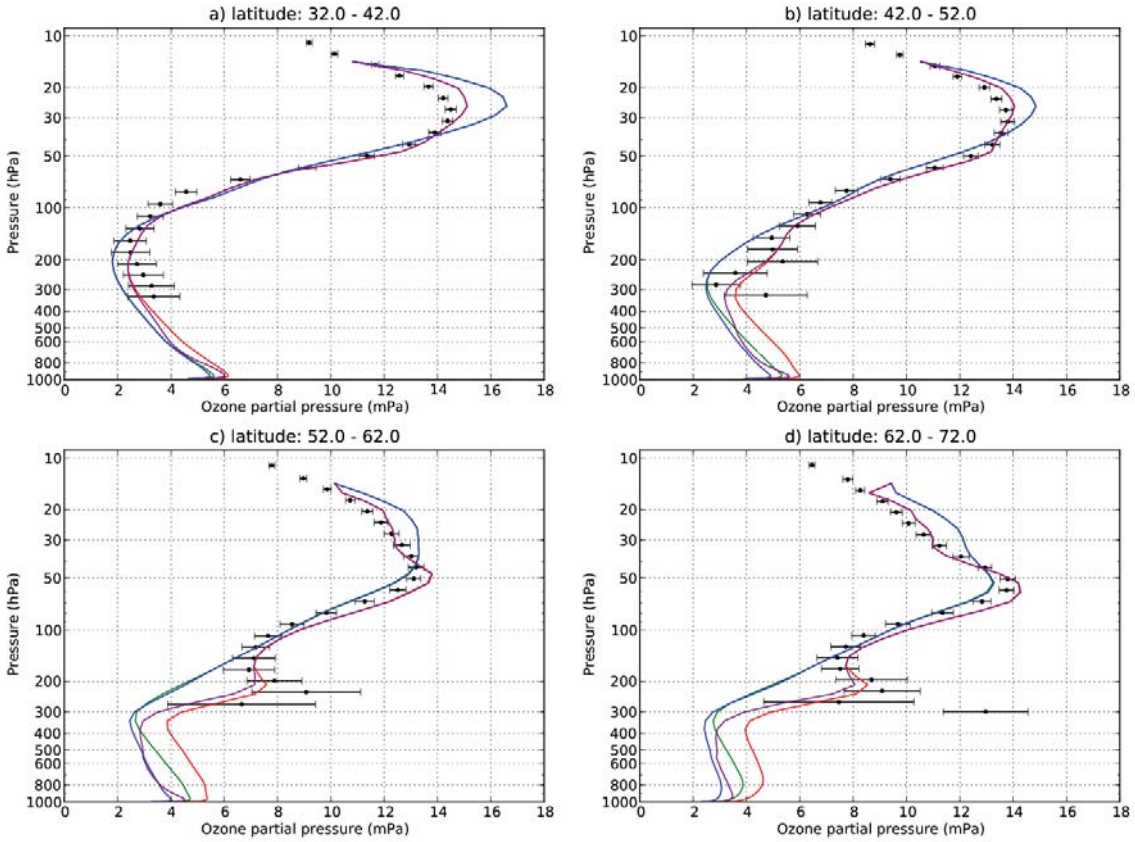


FIGURE 4.9 – Zonally averaged vertical profiles by 10° of latitude for the month of July 2009 over Europe. Latitudes ranges from top to bottom and left to right : 32°N to 72°N by 10° intervals **(a-d)**. Black dots : MIPAS dataset, green : free model run (Free-R), blue : IASI analyses (IASI-R), red : MLS analyses (MLS-R), purple : combined MLS and IASI analyses (Combined-R). Values are in partial pressure (mPa). Error bars provide the averaged error of the MIPAS measurements.

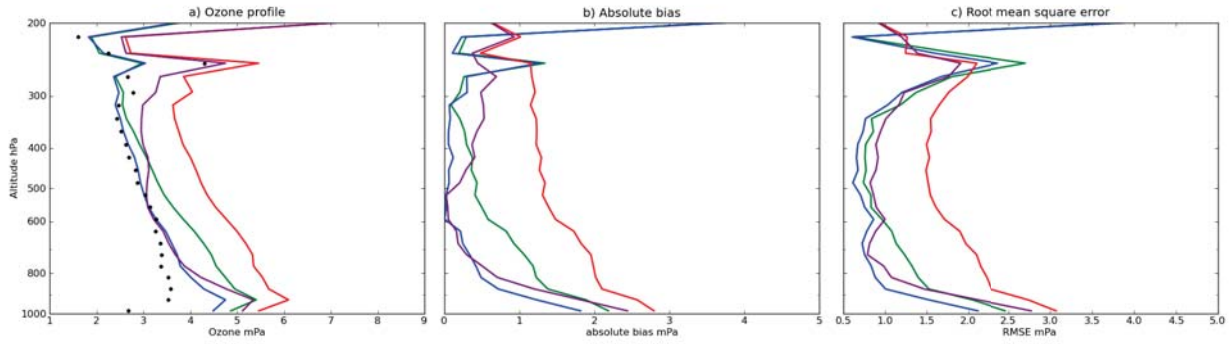


Figure 4.10 – **(a)** Comparisons between the averaged vertical profile of IAGOS aircraft (black dots) and averaged assimilation experiments profiles : green : Free model run (Free-R), blue : IASI analyses (IASI-R), red : MLS analyses (MLS-R), purple : combined MLS and IASI analyses Run (Combined-R). 75 profiles are averaged. **(b)** Absolute bias between IAGOS and assimilation experiments : green Free-R, blue IASI-R, red MLS-R, purple Combined-R. **(c)** Root mean square error between IAGOS and assimilation experiments : green Free-R, blue IASI-R, red MLS-R, purple Combined-R. Values are in partial pressure (mPa).

is captured by MIPAS data and is also visible in the MLS-R and Combined-R. These maxima in the average UTLS ozone fields are not seen without MLS assimilation (Free-R and IASI-R). To conclude, MLS-R and Combined-R averaged profiles show a better agreement with MIPAS data than Free-R and IASI-R averaged profiles.

4.2.4.2 IAGOS

The IAGOS (In-Service Aircraft for a Global Observing System) programme succeeded the MOZAIC (Measurement of OZone and water vapor by Airbus In-service airCraft) programme. The IAGOS programme measures ozone and other species from commercial aircraft [Marenco et al., 1998]. 75 profiles from aircraft taking off and landing (in Frankfurt 50°N 8°E) during July 2009 are used in this study. Figure 4.10 shows the average tropospheric profiles for July 2009 (between 1000 hPa and 200 hPa) of the 4 experiments compared to independent aircraft data. Bias and Root Mean Square Error (RMSE) between IAGOS observations and the various experiments are also presented. Compared to IAGOS observations, the Free-R has a positive ozone bias in the free troposphere between 400 and 800 hPa, ranging between 0.3 and 1 mPa (i.e. between 10% and 35%). IASI-R have a reduced bias close to 0 mPa in the free troposphere between 400 and 800 hPa. Compared to the Free-R, the IASI-R shows bias and RMSE reductions of about 1 mPa between 600 and 800 mPa. In addition the RMSE is also improved between 600 and 800 mPa. This altitude range (400 hPa to 800 hPa) corresponds to the maximum sensitivity of the IASI observations assimilated here as described in section 4.2.3.2. At the surface, the bias and RMSE are reduced due to downward transport to the surface of the assimilated information in the free troposphere as in Foret et al. [2009]. Coman et al. [2012] shows that the assimilation of IASI 0-6km improves surface ozone over Europe in summer for their

TABLE 4.1 – Bias, Root mean square error (RMSE) and correlation coefficient (R, R^2) for comparisons between model/assimilation experiments and IAGOS dataset in the free troposphere region (800-300 hPa). Free-R : Free model Run, IASI-R : IASI analyses, MLS-R : MLS analyses, Combined-R : MLS plus IASI combined analyses.

	Free-R	IASI-R	MLS-R	Combined-R
Bias (mPa)	0.39	0.04	1.36	0.30
RMSE (mPa)	1.00	0.81	1.66	0.93
R^2	0.29	0.47	0.40	0.51

TABLE 4.2 – Bias, Root mean square error (RMSE) and correlation coefficient (R, R^2) for comparisons between model/assimilation experiments and IAGOS dataset in the UTLS region (300-195 hPa). Free-R : Free model Run, IASI-R : IASI analyses, MLS-R : MLS analyses, Combined-R : MLS plus IASI combined analyses.

	Free-R	IASI-R	MLS-R	Combined-R
Bias (mPa)	-1.22	-1.18	0.77	0.13
RMSE (mPa)	2.59	2.39	1.78	1.78
R^2	0.64	0.71	0.72	0.72

model set up. MLS-R adds a bias of 1 mPa and increases the RMSE by 1 mPa below 300 hPa. This effect is due to a larger amount of ozone transported from the UTLS into the troposphere when MLS O_3 profiles are assimilated (as shown in section 4.2.3.4 and 4.2.4.2). The information provided by MLS O_3 profiles (i.e. an increase of the UTLS ozone fields) is propagated by the model transport processes (i.e. stratosphere to troposphere transport). In the UTLS region, above 200 hPa, the MLS-R has significantly smaller bias and RMSE compared to the Free-R while the IASI-R does not differ significantly from the Free-R. The Combined-R combines the advantage of both IASI-R and MLS-R. Below 500 hPa the Combined-R follows the IASI-R with smaller ozone values, bias and RMSE than the Free-R. The Combined-R has increased ozone values in the UTLS close to the MLS-R results, and thus bias and RMSE are also improved with respect to the Free-R. Between 300 hPa and 400 hPa, the Combined-R displays a transition region between the free troposphere and UTLS where the ozone profiles are biased (+0.5 mPa).

The spatial coverage of the IAGOS dataset in the UTLS is very different from the one of the tropospheric profiles which stay close to the airport location (Frankfurt in this study). In the UTLS, the IAGOS data distribution are much more distributed in latitude and longitude ; flights approach their cruise level and start heading towards their destination. For these reasons, we choose to split the comparison into a free tropospheric part (between 800 hPa and 300 hPa) mostly relevant for the area around Frankfurt and an UTLS part (between 300 hPa and 195 hPa) which covers the regional domain. Table 4.1 and 4.2 provides the associated statistics for the free troposphere and for the UTLS region respectively. On average, the Combined-R has better results than the other experiments. In the free troposphere, statistical scores are the best for the IASI-R. The Combined-R and MLS-R present biased signatures at high altitudes between 300 hPa and 400 hPa as described previously and illustrated by Figure 4.10. The MLS-R and Combined-R show

degraded RMSE and bias scores compared to the IASI-R. However, the correlation coefficient is the best value in the Combined-R (R^2=0.51). In the UTLS region, statistical scores are the best for the Combined-R. In table 4.2, the Combined-R has the best statistical scores for the bias (0.13 mPa), RMSE (1.78 mPa) and correlation coefficient (R^2=0.72).

We show thus that the MLS-R experiment overestimates the ozone distribution in the free troposphere, but the UTLS ozone distribution is strongly improved with respect to the IAGOS independent data. Despite the IASI-R having the best scores in the troposphere, IASI observations used here alone are unable to improve the UTLS ozone distributions. By combining tropospheric ozone columns and stratospheric ozone profiles, Combined-R displays significantly more realistic ozone distribution in the UTLS and free troposphere.

4.2.4.3 OMI total ozone column

The OMI (Ozone Monitoring Instrument) spectrometer onboard Aura uses the UV-visible nadir sounding technique to measure chemical constituents and dynamical tracers. In this study, we use the OMI Level-3 global total column ozone product based on the Differential Absorption Spectroscopy (DOAS) fitting technique. OMI Level 3 daily global products are produced by averaging and interpolating data over a grid (0.25° ×0.25°) covering the whole globe. The horizontal resolution of the OMI dataset is close to the model horizontal resolution (0.2° ×0.2°). An overview made by McPeters et al. [2008] validates the OMI total ozone column data products and shows an offset of -0.7% and a standard deviation of 3.3% with independent data.

In this section we compare the results from the different assimilation experiments against OMI total ozone columns. Figure 4.11 presents the July average of the total ozone columns from OMI and from our experiments. Scatter plots are also provided side by side and show OMI total ozone columns versus assimilation experiments total ozone columns. Correlation coefficients are indicated directly in each plot. Generally, Free-R total columns have lower values than seen by OMI. This negative bias is more pronounced over the British Isles and over the Mediterranean sea. OMI data show high ozone total column values over the UK and the Western part of the Atlantic ocean. These high ozone total column values are not present in the Free-R and the IASI-R. Horizontal distributions and scatter plots for the Free-R and the IASI-R are very similar. This not unexpected since IASI-R has most of its differences with the Free-R in the troposphere and the troposphere is only a small fraction of the total column (less than 10% on average). The correlation coefficient values R^2 are similar : 0.64 and 0.67 for the Free-R and the IASI-R, respectively. The IASI-R does not improve significantly the total ozone columns distribution. Compared to the Free-R, the MLS-R shows increased total ozone column values between 40°N and 72°N. The correlation coefficient R^2 in the MLS-R is improved compared to the Free-R, reaching 0.70 on average. However MLS-R has a strong positive bias of 20 Dobson Unit (DU) in the northern part of the regional domain between 45°N and 72°N. The Combined-R has clearly the best results overall for total ozone columns compared to OMI data. Positive biases observed between 45°N and 72°N in the MLS-R are significantly reduced in the Combined-R : R^2 has a value of 0.81, the highest overall.

In section 4.2.4.2, tropospheric validation with IAGOS data provides evidence of a tropospheric bias induced by MLS-R. The tropospheric contribution of MLS-R is visible

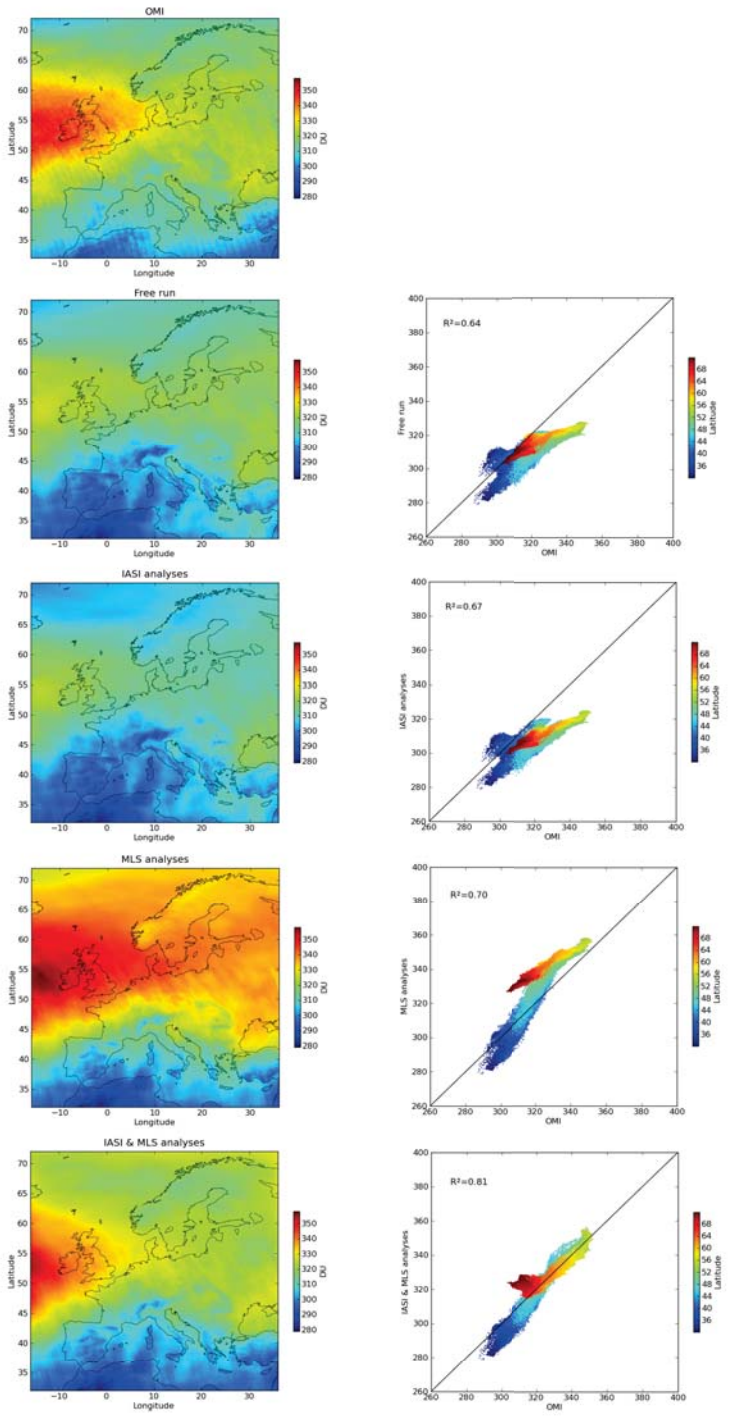


FIGURE 4.11 – Left hand side, top to bottom : ozone total column fields in Dobson Unit (DU) averaged on the month of July 2009 for OMI observations, Free model Run (Free-R), IASI analyses Run (IASI-R), MLS analyses Run (MLS-R), IASI and MLS Dual analyses Run (Combined-R). Right hand side : corresponding scatter plots of the assimilation experiments versus OMI observations with correlation coefficients (R, R^2). Color of dots denotes the location in latitude.

as a positive bias in the total ozone column. The Combined-R reduces this positive bias by shifting the tropospheric ozone values close to the IASI-R and Free-R to show on average very realistic total ozone columns values.

Figure 4.12 presents statistical skill scores of daily time-series for the month of July 2009 of the experiments against OMI ozone columns. Bias, RMSE and correlation for each grid point are presented. The Free-R shows a significant negative bias (between -12 DU and -24 DU) over western Europe and the Atlantic ocean compared to the OMI data. Free-R RMSE are also high (between 15 DU and 30 DU) over the same area. The correlation coefficient (R^2) of the Free-R presents significant high values (between 0.7 and 1) over the Northern part of the regional domain (poleward of 45° N).

As shown above (figure 4.11), the IASI-R shows no major differences in the ozone total columns compared to the Free-R. No significant improvements of the bias or RMSE are observed. In the IASI-R, a negative bias is still significant (around -12 DU) compared to the OMI data in the Western part of the regional domain, and it is also more extended spatially than in the Free-R. Correlation coefficients for the IASI-R are found to be similar to the ones of the Free-R except in the North-West part of the domain where R^2 values are increased. As shown on figure 4.11, the MLS-R presents a positive bias over the Northern part of the regional domain (between 45°N and 72°N). Compared to the Free-R, the RMSE in the MLS-R present decreased values over the Western part of the regional domain, but increased values in the Northern part of the regional domain. The correlations coefficients of MLS-R are better than those of the Free-R over the Western and the Northern part of the regional domain. The Combined-R shows a much reduced bias compared to all the other experiments, ranging between -6 DU and 6 DU over most of the regional domain. RMSE values are also low, with values under 12 DU over the most part of the regional domain. Higher bias (between 12 DU and 22 DU) are however visible in the location of Northern border of the regional domain. The IASI data covers the latitude range from 35°N to 70°N and the adverse tropospheric influence of MLS at 72°N and 32°N cannot be balanced by the IASI data (see section 4.2.3.5). The Combined-R correlation coefficient are spatially distributed very similarly as in MLS-R.

In this section it is concluded that, the Combined-R achieves very realistic total ozone columns against OMI. MLS analyses (MLS-R) improve the variability of the ozone total column fields (RMSE is decreased and correlation is increased). MLS-R impacts impact the UTLS and tropospheric ozone fields showing that these atmospheric layers are responsible for the most of the variability of the total ozone column. This is confirmed by the assimilation of IASI 0-6km which has no significant effect on the total ozone column variability. We show that MLS-R induces a strong positive bias in the troposphere (through the transport by the model), the contribution of IASI is required to reduce this bias. The Combined-R reduces this positive bias while keeping the improved variability observed in the MLS-R total ozone columns with a very realistic result compared to OMI.

4.2.4.4 Ozone variability

In figure 4.12 the correlations coefficients from all experiments show a dependence on latitude. Correlation at Northern latitudes are high (between 1 and 0.7) and decrease at Southern latitudes (between 0.3 and 0). To understand this latitude dependence, we

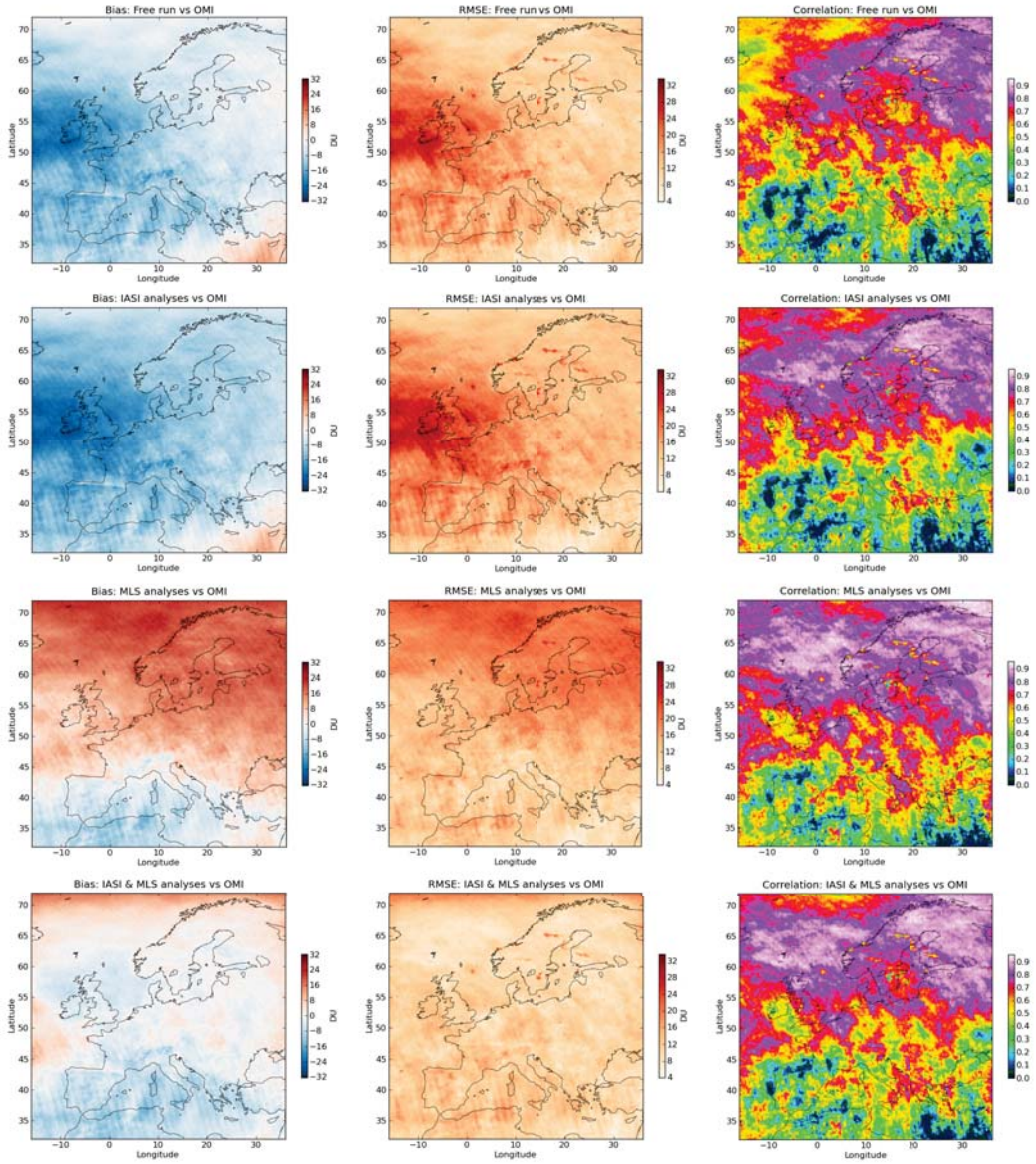


Figure 4.12 – Detailed statistics in each grid point for the month of July 2009. Top to bottom : Free model Run (Free-R), IASI analyses Run (IASI-R), MLS analyses Run (MLS-R), IASI and MLS combined analyses Run (Combined-R). Left to right : biases ; Root Mean Square Error (RMSE) ; correlation coefficient (R^2). Biases and RMSE are in Dobson Units (DU).

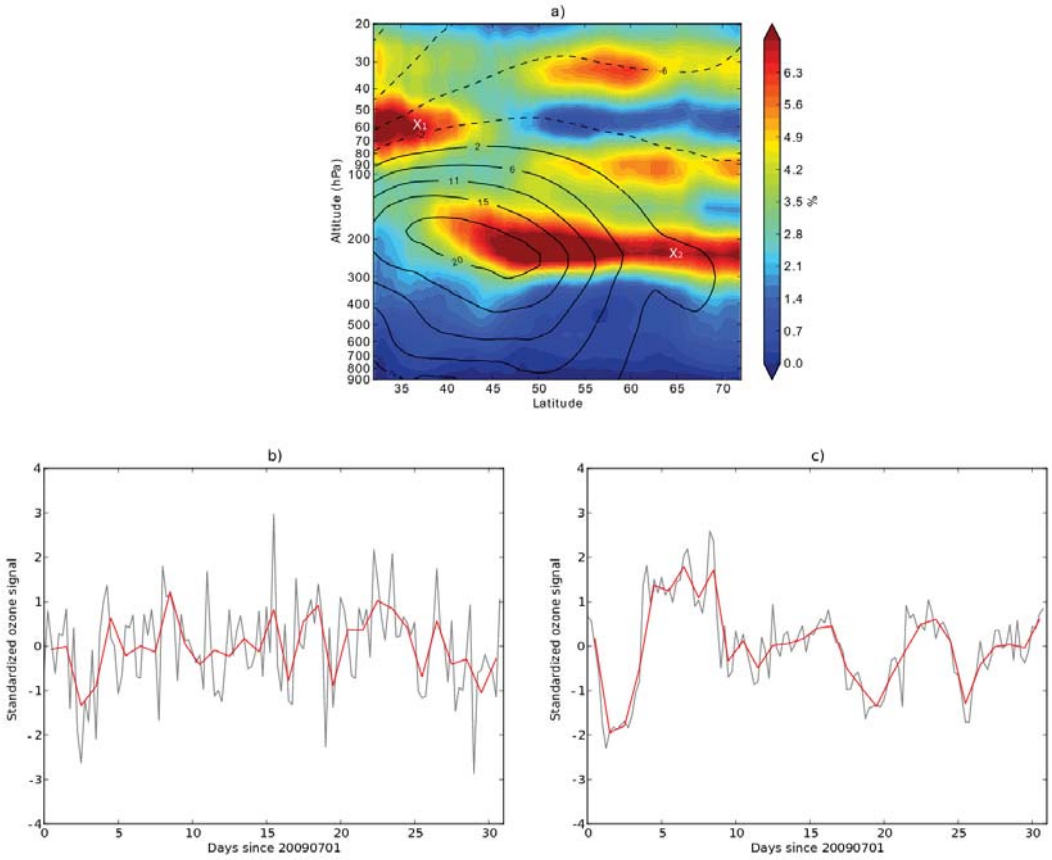


Figure 4.13 – **(a)** Zonal mean of the variability contribution of the total ozone column (see text for details) for the month of July 2009. Mean zonal winds are over-plotted in black, Eastward values are in solid lines and Westward values are in dashed lines. With X_1 and X_2 indicate the locations of the times series displayed in **(b)** and **(c)**, respectively. **(b)** Time series located in 37°N, 10°W and 60 hPa : gray line is 6 hourly values and red line is daily values. **(c)** Time series located in 65°N, 10°W and 220 hPa : gray line is 6 hourly values and red line is daily values.

evaluate the contribution of each 800 m layer in the total column (TC) variability. To perform this, we have calculated for each 800 m layer a partial column (PC). The variability contribution of each 800 m layer on the total column can be defined as a function f of altitude, as follows :

$$f(\phi, z_i) = \frac{\sum_{j=1}^{N} cov(PC(\phi, i), PC(\phi, j))}{var(TC(\phi))} \tag{4.5}$$

where ϕ is the horizontal coordinate (latitude and/or longitude), z_i the altitude for $i = 1, .., N$, $j = 1, .., N$ vertical levels. cov and var are the covariance and the variance operators, respectively. PC and TC are the time series at a given location for partial column and total column, respectively.

Figure 4.13a shows the zonally averaged f function, computed from 6 hourly Combined-R ozone fields. For latitudes between 72°N and 45°N the most significant contribution to ozone variability is located between 200 hPa and 300 hPa. For lower latitudes the major contribution is higher, between 50 hPa and 80 hPa. These two regions correspond approximately to the location of the strong ozone gradient (see figure 4.1d) at the tropopause and split next to the subtropical jet. Figure 4.13b and 13c display standardized (signal minus mean of the sample divided by standard deviation of the sample) time series of ozone at two different locations marked by X_1 and X_2, respectively on figure 4.13a. The time series for X_1 (approx. 37°N, 10°W, 60 hPa) is noisy and 6 hourly and daily outputs do not show clear periodic synoptic pattern. This location above the subtropical jet corresponds to an area of gravity waves generated by wind shear [Fritts et Alexander, 2003]. The periodicity of these gravity waves is between 10 h and 24 h [Kawatani et al., 2004]. Thus, these variations cannot be captured with daily measurements only, and the correlation between the OMI measurements and daily model outputs is not significant. Conversely, the signal located at X_2 (approx. 65°N, 10°W, 220 hPa) is less noisy and frequencies higher than 24 h are a principal contribution to the 6 hourly time series. The time series have synoptic variations, corresponding to the meteorological situation and to the Rossby wave activity. Because of the relatively long chemical lifetime of ozone in the lowermost stratosphere, transport associated with Rossby wave perturbations are responsible for a large fraction of total ozone temporal and spatial varaibility [Hood et al., 1999]. These variations can be captured when computing the correlation between daily measurements and model outputs.

4.2.5 Conclusions

In this paper, we have presented results from a combined nadir and limb ozone data assimilation experiment. We have used MLS stratospheric ozone profiles and IASI tropospheric ozone columns to improve the ozone fields in the stratosphere and troposphere. To our knowledge this is the first time that tropospheric ozone columns and stratospheric ozone profiles are assimilated at the same time in a stratospheric and tropospheric model with an horizontal resolution of 0.2°. This model configuration is well suited to exploit the full potential of the IASI data, i.e. an horizontal resolution matching the horizontal sampling of the IASI instrument. We also take in account the stratospheric influence on

the tropospheric ozone fields by assimilating MLS O_3 stratospheric data. To this end, we need to use a detailed stratospheric and tropospheric chemical scheme.

Over the period of July 2009 we have quantified the effect of assimilation for each instrument separately and then in combination. The free tropospheric ozone is principally decreased by the assimilation of the IASI 0-6km tropospheric columns in the northern part of the regional domain. The assimilation of the MLS O_3 profiles increases the stratospheric ozone fields in the middle and lower stratosphere. The information provided by MLS analyses in the model is propagated downwards due to the stratosphere to troposphere transport by the model, leading to an increase of the tropospheric ozone. The combination of MLS and IASI data in the assimilation system shows the stratospheric effect of MLS analyses and the tropospheric effect of IASI analyses. Synergistic effects of the combined assimilation are mostly visible in the UTLS region in the Northern half of the domain. OMF (Observations Minus Forecasts) and OMA (Observations Minus Analyses) diagnostics show that the stratospheric contribution of IASI 0-6km O_3 analyses is negligible compared to MLS O_3 analyses (i.e. the background state is not significantly modified). However MLS O_3 analyses have a significant contribution on tropospheric O_3 but IASI O_3 analyses are able to compensate for this effect over the most part of the European domain (where data density is sufficient).

The different assimilation runs and free model run have been compared to independent data (IAGOS, OMI and MIPAS). The best match with MIPAS stratospheric ozone profiles is obtained in MLS analyses (MLS-R) and IASI plus MLS combined analyses (Combined-R). IAGOS flights have been used for validation of the UTLS and the free troposphere. MLS analyses (MLS-R) and IASI plus MLS combined (Combined-R) analyses show the best match with IAGOS data in the UTLS. IASI analyses (IASI-R) and IASI plus MLS analyses (Combined-R) show the best match with IAGOS data in the free troposphere. Thus combined IASI and MLS analyses (Combined-R) show the best results overall and throughout the atmospheric column. A further evaluation against OMI total ozone columns shows that combined IASI and MLS analyses (Combined-R) have the best scores for bias, RMSE and correlation in space and time. Combined-R improves the total ozone column in the model because the structure in the ozone fields is improved in the vertical, in the horizontal and temporally. The investigation on the total ozone column variability show that UTLS ozone plays an important role. Two types of variability have been shown related to gravity waves above the subtropical jet and to Rossby waves in the lowermost stratosphere.

In this paper we provide high fidelity ozone analyses in the stratosphere and the troposphere and we show the strong capabilities of the combination of limb and nadir sounder measurements. This study supports the approach chosen for PREMIER, candidate Earth Explorer 7 mission at the European Space Agency (European Space Agency [2012], `http://esamultimedia.esa.int/docs/SP1313-5_PREMIER.pdf`) PREMIER, an Infrared and Microwave limb-viewing mission, is proposed to fly in formation with EUMETSAT EPS-SG (European Polar Satellite - Second Generation), which will host the successor instrument of IASI, IASI-NG (IASI - Next Generation). We show here that current assimilation systems are readily capable of combining the benefits of limb and nadir instruments for ozone and exploiting the synergy between them.

This work was funded by the Centre National de Recherches Scientifiques (CNRS) and the Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) of Météo-France. VHP, JLA, LEA and WL are supported by the RTRA/STAE (POGEQA project). JLA thanks also the Région Midi Pyrénées (INFOAIASI-R project). Thanks to the WOUDC to provide ozone sonde data sets. The authors acknowledge the strong support of the European Commission, Airbus, and the Airlines (Lufthansa, Austrian, Air France) who carry free of charge the IAGOS equipment and perform the maintenance since 1994. IAGOS is presently funded by INSU-CNRS (France), Météo-France, and Forschungszentrum (FZJ, Julich, Germany). The IAGOS data base is supported by ETHER (CNES and INSU-CNRS).

4.3 Conclusions et perspectives

Dans cette étude nous avons montré que l'assimilation combinée de profils stratosphérique d'ozone et de colonnes troposphériques d'ozone permet de fournir des ré-analyses de haute qualité. L'utilisation d'un modèle à haute résolution horizontale permet d'exploiter au maximum le potentiel des mesures au nadir. Cette étude montre que le modèle sans assimilation combinée rencontre des difficultés à représenter les forts gradients verticaux d'ozone qui caractérisent l'UTLS. Des travaux de recherche pourraient alors être entrepris sur l'impact de l'augmentation de la résolution verticale du modèle au niveau de cette région de l'atmosphère afin de mieux représenter les gradients verticaux. Ce travail ouvre aussi des perspectives pour utiliser les mesures stratosphériques et troposphériques pour construire des ensembles d'assimilation afin de caractériser la matrice d'erreur d'ébauche du modèle. Une caractérisation statistique de la matrice d'erreur d'ébauche couvrant la stratosphère et la troposphère peut être une amélioration du système d'assimilation 3D-FGAT.

Chapitre 5

Étude sur la couche de transition dans l'UTLS extra-tropicale par l'assimilation de données MLS O_3 et MOPITT CO.

Sommaire

5.1 Résumé long de l'article 3 114

5.2 Article 3 - Diagnosing the mixing layer in the etra-tropical lowermost stratosphere using MLS O_3 and MOPITT CO analyses. 117

5.2.1 Introduction 117

5.2.2 Methodology 119

5.2.3 STE case study on 15 August 2007 120

5.2.4 Global mixing layer for the month of August 2007 130

5.2.5 Discussions and conclusions 134

5.3 Conclusions et perspectives 137

Nous avons vu dans les chapitres précédents le lien étroit entre la dynamique et l'ozone au niveau de l'UTLS. La qualité des champs analysés d'ozone est alors déterminée par les réanalyses météorologiques du modèle ARPEGE qui forcent les champs chimiques du modèle MOCAGE. Au delà de la validation des champs d'ozone par des données indépendantes, la quantification de l'impact de l'assimilation de données d'ozone sur les échanges STE à été évalué par le calcul du flux dans le chapitre 3. Ce calcul cependant contient beaucoup d'incertitudes par sa formulation et par la variabilité de la résolution du modèle. Une autre méthode, certes moins quantitative que le calcul direct du flux à la tropopause, utilisant les relation traceur-traceur permet de diagnostiquer l'activité des échanges entre la stratosphère et la troposphère. De manière générale, un traceur stratosphérique (par exemple O_3) et un traceur troposphérique (par exemple CO et H_2O) sont utilisés. Ainsi dans cette dernière étude nous avons diagnostiqué l'impact de l'assimilation de données stratosphériques d'O_3 et de CO sur l'activité des échanges entre la stratosphère et la troposphère.

Ce chapitre s'appuie sur l'article Barré et al. [2012a] soumis dans la revue *Atmospheric Chemistry and Physics* (Annexe B).

La section 5.1 est un résumé en français de l'article en anglais en section 5.2. La section 5.3 présente les conclusions et perspectives de l'étude.

5.1 Résumé long de l'article 3

La haute troposphère basse stratosphère (UTLS) est une région de transition chimique et dynamique qui joue un rôle clef dans la compréhension des relation entre la chimie de l'atmosphère et le climat. Les concentrations de monoxyde de carbone (CO) et d'ozone (O_3) changent rapidement au niveau de l'UTLS. De fortes concentrations d'O_3 (de faibles concentrations de CO) dans la stratosphère contrastent avec de faibles concentrations d'O_3 (fortes concentrations de CO) dans la troposphère. Holton et al. [1995] a défini la "lowermost stratosphere" (LMS) comme la région en dessous de l'isentrope 380-K et au dessus de la tropopause dynamique (généralement définie entre 1.5 et 3.5 unités de vorticité potentielles (PVU) [World Meteorological Organization, 1986]). De précédentes études, utilisant des mesures in-situ de gaz traces dans la stratosphère et la troposphère, ont montré que la LMS a des caractéristiques chimiques intermédiaires entre la stratosphère et la troposphère [Fischer et al., 2000; Hoor et al., 2002; Pan et al., 2004]. Des changements rapides dans la concentrations des traceurs dans le temps et l'espace sont contrôlés par les processus de mélange entre la stratosphère et la troposphère. Une couche de transition (ExTL : Extra-tropical Transition Layer) de traceurs atmosphériques peut alors être considérée dans la LMS et donc localisée au dessus de la tropopause dynamique.

Des diagnostiques utilisant les corrélation entre traceurs ont montré leur utilité pour localiser et caractériser la ExTL pour différents gaz traces. Fischer et al. [2000], Hoor et al. [2002] et Pan et al. [2004] ont utilisé des mesures in-situ aéroportés pour l'analyse de la corrélation de différents gaz traces (H_2O, CO, CO_2, N_2O, NO_y and O_3) dans la LMS. Les corrélations entre traceurs se révèlent être une méthode efficace pour diagnostiquer les STE et les processus de mélange associés. Pan et al. [2007] a proposé un jeu de 3 diagnostiques pour évaluer la représentation des processus de transport chimique dans la

région de la tropopause. Ces diagnostiques peuvent êtres appliqués sur des jeu de données indépendantes mais aussi pour les modèles de chimie atmosphérique. Hegglin et al. [2009] à montré que ces diagnostiques peuvent être appliqués à des mesures satellites d'O_3, de CO et de vapeur d'eau (H_2O), afin de caractériser les variations de l'épaisseur et de la localisation de la ExTL, en fonction de la latitude et de la saison à l'échelle globale. Ces études montrent que la ExTL se situe autour de la tropopause thermique avec une épaisseur entre 1.5 km et 3 km. Une inter-comparaison de modèles montre aussi que la faible résolution verticale généralement utilisée ne permet pas de représenter correctement la ExTL au niveau de la LMS. A cause de leur faible résolution, les modèles surestiment l'épaisseur de la ExTL d'environ 2 km et son l'altitude d'1 km en moyenne au dessus de la tropopause thermique [Hegglin et al., 2010].

Pour contraindre le modèle utilisé dans cette étude, nous proposons d'assimiler les profils d'O_3 stratosphériques restitués par Aura/MLS O_3 et les profils de CO troposphériques restitués par Terra/MOPITT dans le modèle de chimie transport MOCAGE. Il a été montré que l'assimilation de données satellites permet de surmonter les difficultés qu'a le modèle MOCAGE à représenter la distribution des constituant chimiques de l'atmosphère au niveau de l'UTLS [Semane et al., 2007; El Amraoui et al., 2010; Barré et al., 2012a]. Dans cette étude nous proposons de quantifier la valeur ajoutée de l'assimilation de données d'O_3 et de CO dans la région de la tropopause extra-tropicale. Dans ce but, nous avons repris le même cas d'étude qui avait été présenté par El Amraoui et al. [2010]. Ce cas d'étude montre une intrusion d'air stratosphérique dans la troposphère la 15 Août 2007 au dessus de îles Britanniques. (50°N,10°W). Dans cette précédente étude, une validation détaillée à démontré la capacité de l'assimilation de profils MLS O_3 (analyses d'O_3) et de MOPITT CO (analyses de CO) à mieux représenter l'évènement STE. Il à été montré de manière qualitative que les analyses de CO fournissent une meilleure description que les analyses d'O_3. Le jeu de diagnostiques proposé par Pan et al. [2007] est utilisé dans cette étude afin de quantifier la capacité des champs analysés d'O_3 et de CO à représenter le cas d'étude STE. Nous proposons aussi dans cette étude d'appliquer ces diagnostiques à l'échelle globale aux latitudes extra-tropicales pour le mois d'août 2007. Cela nous permettra alors de quantifier la capacité des analyses d'O_3 et de CO à mieux représenter la ExTL chimique entre la stratosphère et la troposphère aux latitudes extra-tropicales pour l'état moyen de l'atmosphère à l'échelle globale. Cette étude permet d'établir statistiquement la qualité de la représentation de la ExTL extra-tropicale par l'assimilation de données de CO et d'O_3.

Dans cette étude on comparera deux champs différents d'O_3, i.e. le modèle seul (free run) et les analyses d'O_3, et deux champs différents de CO, i.e. le modèle seul (free run) et les analyses de CO. On étudiera comparativement donc 4 relations O_3-CO. Dans un premier temps, nous nous sommes concentrés sur le cas d'étude STE. L'étude des relations O_3-CO permet d'établir une quantification de la hauteur et de l'épaisseur de la couche de transition. La relation O_3-CO pour les "free runs montre" une ExTL d'environ 3 km qui est centrée à 0.5 km au dessus de l'isentrope 360-K (i.e., 1.5 km au dessus de la tropopause thermique). Cette distribution montre un comportement typique des modèles, c'est à dire une surestimation de l'épaisseur de la ExTL et de son altitude (i.e. au dessus de la tropopause thermique). Les analyses d'O_3 ont tendance à étirer la distribution de la ExTL

vers la surface à cause d'une augmentation des valeurs de concentration d'O_3 au niveau de l'UTLS. Cela élargit l'épaisseur de la ExTL d'environ 1 km et descend son altitude moyenne de 1 km plus proche de la tropopause thermique. Dans ce cas, la distribution de la ExTL montre des valeurs maximales au niveau de la tropopause thermique ce qui montre la capacité des analyses d'O_3 à représenter l'évènement STE. Les analyses de CO, quant à elles, permettent de réduire l'épaisseur de la ExTL en réduisant l'extension de sa distribution du coté stratosphérique d'environ 0.4 km. L'altitude de la ExTL se trouve alors sur l'isentrope 360-K. La signature de l'évènement STE n'est pas identifiée a partir des analyses de CO, à cause de la faible sensibilité des diagnostiques aux variations de CO en troposphère. En combinant l'information fournie pas les analyses d'O_3 et les analyses de CO, la distribution de la ExTL à une altitude et une forme plus réaliste centrée sur la tropopause thermique.

Dans une seconde partie nous avons focalisé l'étude à l'échelle globale sur le mois d'août 2007. En comparaison du free run, les analyses d'O_3 montrent un étalement de la ExTL vers la surface ce qui à pour effet de déplacer la position moyenne de la ExTL plus proche de la tropopause thermique. Les analyses de CO réduisent l'étalement stratosphérique de la ExTL qui à aussi pour effet de baisser la localisation moyenne de la ExTL vers la tropopause thermique. Quand les analyses d'O_3 et de CO sont utilisées simultanément dans les diagnostiques, un effet synergique est observé. L'altitude moyenne de la ExTL suit bien celle de la tropopause thermique au delà des latitudes 50°N et 50°S. L'épaisseur de la ExTL est globalement réduite en comparaison avec le free run. Cela montre bien que l'assimilation des données MLS O_3 et MOPITT CO permet de représenter de manière plus réaliste la ExTL entre la stratosphère et la troposphère. Comme il à été montre dans le cas d'étude, un échange de la stratosphère vers la troposphère est caractérisé par une extension troposphérique de la ExTL. A l'échelle globale, l'extension troposphérique vu par les analyses d'O_3 de la ExTL en dessous du niveau 2-PVU montre les échange de stratosphère vers la troposphère en moyenne.

Enfin, il est aussi important de noter que la ExTL extra-tropicale dans l'hémisphère Sud (hiver) est plus mince que dans l'hémisphère Nord (été). Cela suggérerait que les processus de mélange chimiques à l'UTLS sont plus actifs pendant l'été dans l'hémisphère Nord que pendant l'hiver dans l'hémisphère Sud. Cela ouvre des perspectives pour des travaux futurs qui requièrent des simulations sur des échelles de temps plus longues (e.g. plus d'un an) afin d'étudier les variation saisonnières du comportement de la ExTL.

5.2 Article 3 - Diagnosing the mixing layer in the etra-tropical lowermost stratosphere using MLS O_3 and MOPITT CO analyses.

Abstract

The behavior of the Extra-tropical Transition Layer (ExTL) in the lowermost stratosphere is investigated using a Chemistry Transport Model (CTM) and analyses derived from assimilation of MLS (Microwave Limb Sounder) O_3 and MOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere) CO data. We use O_3-CO correlations to quantify the effect of the assimilation on the height and depth of the ExTL. We firstly focus on a Stratosphere-Troposphere Exchange (STE) case study which occurred on 15 August 2007 over the British Isles (50°N,10°W). We also extend the study at the global scale for the month of August 2007. For the STE case study, MOPITT CO analyses have the capability to sharpen the ExTL distribution whereas MLS O_3 analyses provide a tropospheric expansion of the ExTL distribution with its maximum close to the thermal tropopause. When MLS O_3 and MOPITT CO analyses are used together, the ExTL shows more realistic results and matches the thermal tropopause. At global scale, MOPITT CO analyses still show a sharper chemical transition between stratosphere and troposphere than the free model run. MLS O_3 analyses move the ExTL toward the troposphere and broaden it. When MLS O_3 analyses and MOPITT CO analyses are used together the ExTL matches the thermal tropopause poleward of 50°. This study shows that data assimilation can help overcome the shortcomings associated with a relatively coarse model resolution. The ExTL spread is larger in the Northern hemisphere than the Southern hemisphere suggesting that mixing processes are more active in the UTLS in the Northern hemisphere than in the Southern hemisphere. This work opens perspectives for studying the seasonal variations of the ExTL at extra-tropical latitudes.

5.2.1 Introduction

The Upper Troposphere/Lower Stratosphere (UTLS) plays a key role in chemistry-climate interactions. Carbon monoxide (CO) and ozone (O_3) concentrations change rapidly across the UTLS. High concentrations of O_3 (low concentrations of CO) in the lower stratosphere contrast with low concentrations of O_3 (high concentrations of CO) in the upper troposphere. Holton et al. [1995] defined the lowermost stratosphere (LMS) as being below the 380-K isentrope and above the dynamical tropopause (usually defined between 1.5 and 3.5 Potential Vorticity Units (PVU), World Meteorological Organization [1986]). Previous studies, using in situ measurements of stratospheric and tropospheric trace gases, have shown that the LMS has intermediate characteristics between the troposphere and the stratosphere [Fischer et al., 2000; Hoor et al., 2002; Pan et al., 2004]. Rapid changes in time and space of tracers at the UTLS are controlled by mixing processes between the stratosphere and the troposphere. An Extra-tropical Transition Layer (ExTL) of atmospheric tracers is present in the LMS above the extra-tropical dynamical tropopause.

Diagnostics using tracer-tracer correlation can locate the ExTL accurately. Fischer

et al. [2000], Hoor et al. [2002] and Pan et al. [2004] used aircraft in-situ measurements to provide an analysis of trace gas (H_2O, CO, CO_2, N_2O, NO_y and O_3) correlations in the LMS. Trace gas correlations have been shown to be an effective method to diagnose stratosphere-troposphere exchange (STE) and mixing processes in the LMS region. Pan et al. [2007] proposed a set of three diagnostics to evaluate the representation of chemical transport processes in the extra-tropical tropopause. Hegglin et al. [2009] showed that these diagnostics can be applied to satellite measurements of O_3, CO and H_2O to characterize the ExTL seasonal and latitudinal variations in height and depth at the global scale. A multi-model assessment showed that models with coarse vertical resolution are unable to represent faithfully the ExTL at extra-tropical latitudes [Hegglin et al., 2010]. Due to their coarse resolution, models overestimate the spread and the location in height of the ExTL.

To constrain the model used in this study, we assimilate O_3 stratospheric profiles from Aura/MLS (Microwave Limb Sounder) and Terra/MOPITT (Measurements Of Pollution In The Troposphere) CO tropospheric profiles into the MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmospherique à Grande Echelle) chemical transport model (CTM). Data assimilation, which combines observational information and a priori information from a model in an objective way [Kalnay, 2003], has the capability to reconcile different types of measurements such as nadir measurements (MOPITT CO) and limb measurements (MLS O_3). Data assimilation has also the capability to overcome possible deficiencies of the MOCAGE model in the UTLS region (see, e.g., Semane et al. [2007]; El Amraoui et al. [2010]; Barré et al. [2012a]). In this study, we propose to quantify the impact of the assimilation of O_3 and CO data on the extra-tropical tropopause region. We use the same case study as presented by El Amraoui et al. [2010] which considers a deep stratospheric intrusion on 15 August 2007 over the British Isles (50°N,10°W). In this previous study, detailed validation demonstrated the capability of CO and O_3 analyses to better represent the STE. It was shown that CO analyses provide a better qualitative description of the event than O_3 analyses. The set of diagnostics proposed by Pan et al. [2007] are used for this STE event to quantify the capability of CO and O_3 analyses to represent the STE exchange for this case. We also propose to extend the set of diagnostics from regional to global scales in the extra-tropics for the month of August 2007. This allows us to quantify the capability of MOPITT CO and MLS O_3 assimilated fields to better estimate the chemical ExTL behavior in the tropopause region, from a single STE event at the regional scale to an average state of the atmosphere at the global scale. To our knowledge, this is the first time that these diagnostics have been used on chemical analyses from different types of satellite measurements (nadir and limb).

The paper is structured as follows. Section 5.2.2 provides the description of the model, the remote sensed data and the assimilation system. Section 5.2.3 provides a brief description of the STE event in August 2007 which was fully analyzed in El Amraoui et al. [2010]. A set of diagnostics proposed by Pan et al. [2007] are used on this case study for the different assimilation experiments. Section 5.2.4 extends these diagnostics to the global scale in the extra-tropics in August 2007. Section 5.2.5 provides a discussion of results and conclusions.

5.2.2 Methodology

5.2.2.1 CTM Model and data assimilation system

The MOCAGE model is a three-dimensional CTM for the troposphere and the stratosphere [Peuch et al., 1999] which simulates the interactions between physical and chemical processes. It uses a semi-Lagrangian advection scheme [Josse et al., 2004] to transport the chemical species. It has 47 hybrid levels from the surface to ∼5 hPa with a resolution of about 150 m in the lower troposphere increasing to 800 m in the upper troposphere. Turbulent diffusion is calculated with the scheme of Louis [1979] and convective processes with the scheme of Bechtold et al. [2001]. The chemical scheme used in this study is RACMOBUS. It is a combination of the stratospheric scheme REPROBUS (Reactive Procecesses Ruling the Ozone Budget in the Stratosphere, Lefèvre et al. [1994]) and the tropospheric scheme RACM (Regional Atmospheric Chemistry Mechanism, Stockwell et al. [1997]). It includes 119 individual species with 89 prognostic variables and 372 chemical reactions. MOCAGE has the flexibility to be used for stratospheric [El Amraoui et al., 2008a], tropospheric [Dufour et al., 2005] and UTLS studies [Ricaud et al., 2007; Barré et al., 2012a]. The meteorological analyses of Météo-France, ARPEGE [Courtier et al., 1991], are used to provide meteorological fields. In this study, the model has a global domain with an horizontal resolution of $2° \times 2°$.

The assimilation system used in this study is MOCAGE-PALM [Massart et al., 2005] implemented within the PALM framework [Buis et al., 2006]. The technique used is 3D-FGAT (First Guess at Appropriate Time, Fisher et Andersson [2001]). This technique is a compromise between the 3D-Var (3d-variational) and the 4D-Var (4d-variational) methods. It compares the observations and the model background taking into account the measurement time and assumes that the increment to be added to the background state is constant over the entire assimilation window (in this case 3 hours). The choice of this technique limits the size of the assimilation window, since it has to be short enough compared to chemistry and transport timescales. It has been validated during the assimilation of ENVISAT data project (ASSET, Lahoz et al. [2007]) and has produced good quality results compared to independent data and other assimilation systems [Geer et al., 2006]. MOCAGE-PALM has been used to assess the quality of satellite O_3 measurements [Massart et al., 2007]. The MOCAGE-PALM, assimilation products have been used in many atmospheric studies in relation to the O_3 loss in the Arctic vortex [El Amraoui et al., 2008a], tropics-mid-latitudes exchange [Bencherif et al., 2007], STE [Semane et al., 2007], exchange between the polar vortex and the mid-latitudes [El Amraoui et al., 2008b], and diagnosing STE from O_3 and CO fields [El Amraoui et al., 2010].

5.2.2.2 Aura/MLS O_3 and Terra/MOPITT CO observations

The MLS instrument onboard Aura uses limb sounding to measure chemical constituents (such as O_3) and dynamical tracers between the upper troposphere and the lower mesosphere [Waters et al., 2006]. It provides global coverage with about 3500 profiles per day between 82^o N and 82^o S. In this study, we use Version 2.2 of the MLS O_3 dataset. This version provides profiles with about 3 - 5 km vertical resolution between 215 and 0.46 hPa. The along-track resolution of O_3 is ∼200 km between 215 and 10 hPa. The MLS data

are selected following quality flags recommended in the MLS description document (see http ://mls.jpl.nasa.gov/data/v2-2 data quality document.pdf). Measurements above 10 hPa are not used because of the upper limit of the MOCAGE model, 5 hPa. The measurement precision is in 0.04 ppmv (parts per million by volume) for lower altitudes (215 hPa) and of 0.2 ppmv for higher altitudes (10 hPa).

The MOPITT instrument [Drummond et Mand, 1996] is onboard the Terra platform and measures tropospheric CO with nadir-sounding. The horizontal resolution of MOPITT CO data (Version 3) is 22 km × 22 km. To prepare the MOPITT data for assimilation, super-observations are done by averaging data in latitude-longitude bins of 2° × 2°. The super-observations give around 8,000 daily vertical profiles which are retrieved on 7 pressure levels (surface, 850, 700, 500, 350, 250 and 150 hPa). Information on the vertical sensitivity is provided by the averaging kernels, which are taken into account in the assimilation system. At 500 hPa, the retrieval uncertainties are approximately 20% in the tropics and at mid-latitudes, and 30-40% at high latitudes.

5.2.2.3 Assimilation experiments

In this study, we use the same assimilation experiments performed by El Amraoui et al. [2010], hereafter LEA2010. The assimilation of MLS O_3 stratospheric and UTLS profiles and the assimilation of MOPITT CO tropospheric profiles started on 20 July 2007 and involve two independent runs (i.e. the assimilation experiments of O_3 and CO are done separately). The initial conditions for the assimilation were obtained by a free-model run started from the April climatological field. The assimilated fields of O_3 and CO have been validated for the month of July and August 2007 by LEA2010 using measurements from ozone sondes, aircraft and other remote sensing instruments. This validation exercise showed a better agreement of the analyses of each chemical species than the free-model runs. This previous study has also shown, in a qualitative manner, the added value of data assimilation on a STE case study on 15 August 2007. In the present study, we firstly propose to apply the diagnostics suggested by Pan et al. [2007] on the O_3-CO relationship in order to quantify the contribution of each assimilated species to the mixing processes in the UTLS. Secondly, we apply these diagnostics at the global scale in the extra-tropics for the month of August 2007.

5.2.3 STE case study on 15 August 2007

In this section, we present the case study of a STE event on 15 August 2007 over the British Isles. Figure 5.1 shows the O_3 and CO fields for MOCAGE and MOCAGE-PALM (O_3 analyses and MOPITT CO analyses) in the tropopause region (260 hPa) between 35°N - 75°N and 35°W - 25°E. Figure 5.2 shows longitude-pressure cross sections at 59°N between 35°W and 25°E. These figures display the free model run CO fields (hereafter model CO) and MOPITT CO analyses (hereafter CO analyses) and free model run O_3 fields (hereafter model O_3) and MLS O_3 analyses (hereafter O_3 analyses). The 380-K isentrope (black solid line) and the 2-PVU (white solid line) contours define the LMS height range. The STE event shows a deep stratospheric intrusion with high O_3 values (low CO values) coming from polar latitudes spreading southward over Western Europe.

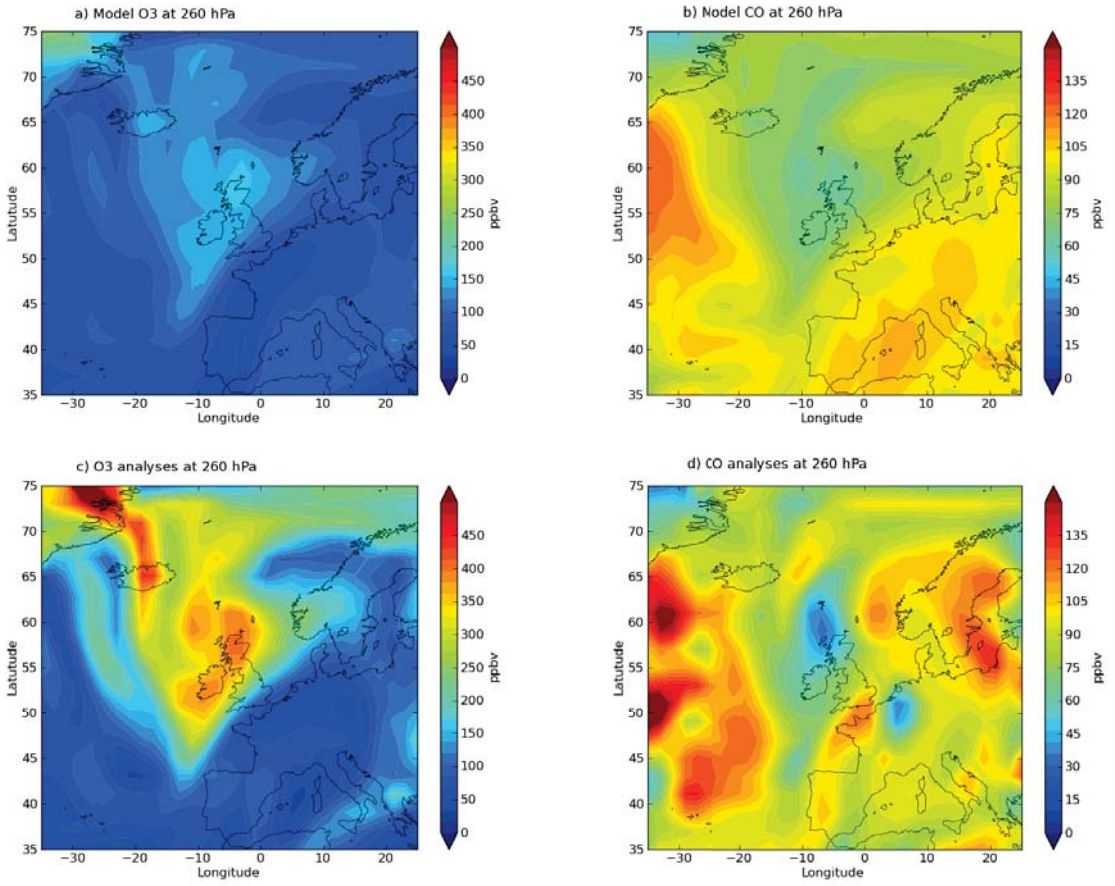


Figure 5.1 – Longitude-latitude maps at 260 hPa of model O_3 **(a)**, model CO **(b)**, O_3 analyses **(c)** and CO analyses **(d)** for 15 August 2007 at 12 :00 UT

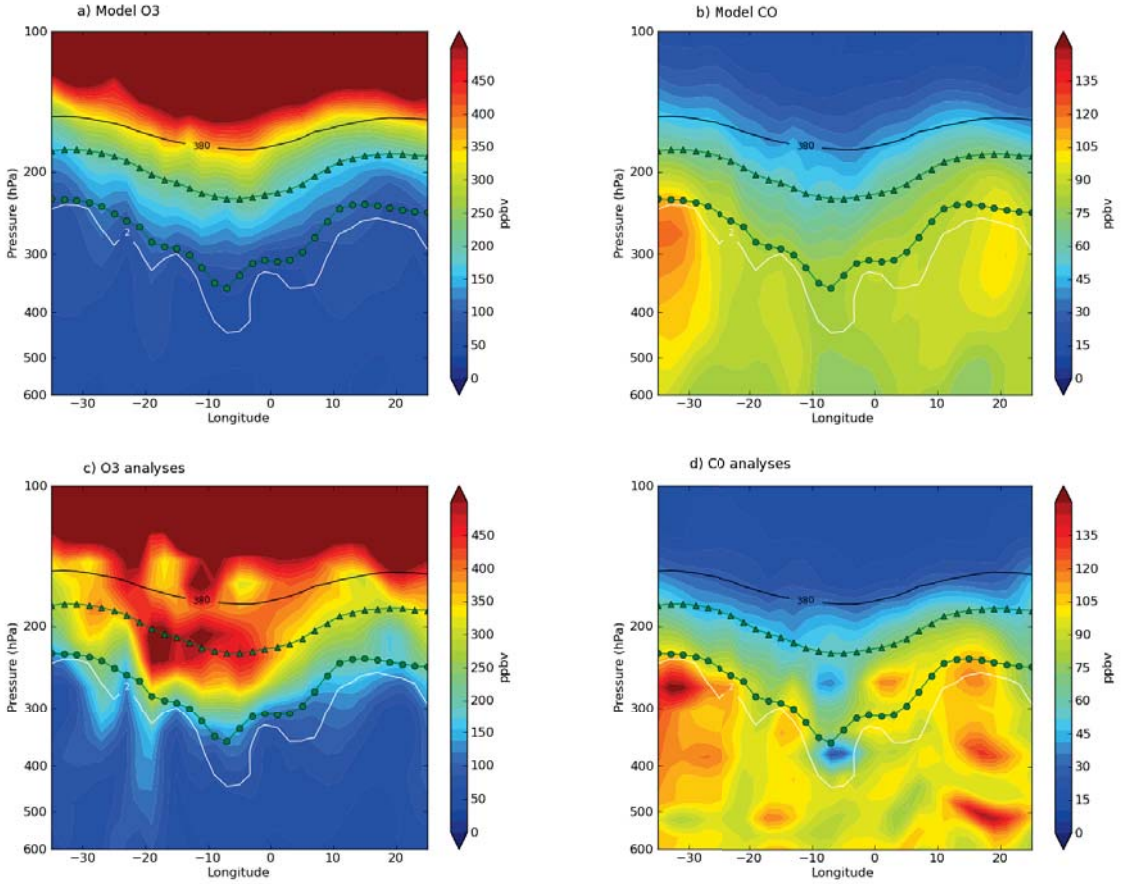


FIGURE 5.2 – Zonal cross sections at 59°N between 40°W and 40°E longitude and between 600 and 100 hPa in the vertical for model O_3 **(a)**, model CO **(b)**, O_3 analyses **(c)** and CO analyses **(d)**. The white line corresponds to the 2 potential vorticity units contour. The black line and green triangles correspond to the 380-K and 360-K isentropic contours, respectively. The green circle corresponds to the thermal tropopause. Panels are for 15 August 2007 at 12 :00 UT.

In the latitude-longitude maps, O_3 analyses (Fig. 5.1c) show increased values in the STE structure compared to the model. Conversely, CO analyses (Fig. 5.1d) tend to exhibit decreased values in the STE structure compared to the model and also increased values around the STE. Along the vertical, O_3 analyses (Fig. 5.2c) show increased O_3 in the 200-300 hPa layer compared to the model O_3 field. LEA2010 showed that the O_3 maximum of 500 ppbv located in the intrusion (between 10°W and 0°W) shows a better agreement with independent data (MOZAIC flights and WOUDC ozone sondes) than the model O_3 run. For CO analyses, a minimum of CO in the cross section (Fig. 5.2d) is well reproduced within the stratospheric intrusion (between 10°W and 0°W) down to 400 hPa. At the LMS height range and at longitudes around the intrusion, the CO assimilated fields also display higher values than the model CO fields. LEA2010 also showed that CO analyses are in better agreement with independent data than the model CO run. LEA2010 suggested that O_3 analyses have the capability to better represent downward motions because higher O_3 values are entrained in the LMS and in the troposphere. LEA2010 also suggested that CO analyses have the capability to better represent upward (downward) motions, as higher (lower) CO values are represented in the UTLS than the model CO. A perspective of LEA2010 was to focus on the quantification of the contribution of O_3 and CO assimilated species in the mixing process between the stratosphere and the troposphere. To quantify the contribution of each experiment presented here, we have used the three diagnostics discussed by Pan et al. [2007] :

- 1) O_3-CO correlations : to empirically select the CO and O_3 values which belong to the stratosphere, the troposphere and the ExTL.
- 2) Profile comparisons using relative altitude coordinates : to remove the geophysical variability from the planetary wave activity and to diagnose the effect of data assimilation on the UTLS CO and O_3 gradients.
- 3) Sharpness of the transition : to quantify the depth and the location of the ExTL.

5.2.3.1 Diagnostic 1 : O_3-CO correlation

Tracer-tracer correlation methods help to identify the chemical transition between the stratosphere and the troposphere and the mixing processes in the LMS region [Fischer et al., 2000; Zahn et al., 2000; Hoor et al., 2002 2004; Pan et al., 2004 2007]. In this section, we use O_3-CO correlations to determine empirically the chemical transition region from model and analysed fields. Figure 5.3 shows the O_3-CO relationships for model O_3 vs model CO (Fig. 5.3a), O_3 analyses vs model CO (Fig. 5.3b), model O_3 vs CO analyses (Fig. 5.3c) and O_3 analyses vs CO analyses (Fig. 5.3d). As described by Pan et al. [2007], the O_3-CO relationship is 'L' shaped and has a stratospheric branch (high O_3 values and low CO values) and a tropospheric branch (low O_3 values and high CO values). These two branches can be represented by an approximate quasi-linear relation between O_3 and CO. Between these two branches the relationship between O_3 and CO is nonlinear due to the different chemical composition of the stratosphere and the troposphere.

We have applied the O_3-CO correlation diagnostic on 15 August 2007 12 :00 UT between 30°W - 10°E, 40°N - 65°N where the STE takes place. The stratospheric branch,

Table 5.1 – Fitting coefficients for the ExTL region of O_3-CO correlations, assuming a quadratic form $y=a_2x^2+a_1x+a_0$. CO and O_3 values are defined by x and y, respectively.

	a_2	a_1	a_0
model O_3 vs model CO	9.73×10^{-2}	-1.78×10^{1}	9.11×10^{2}
O_3 analyses vs model CO	-2.99×10^{-1}	3.07×10^{1}	-3.17×10^{2}
model O_3 vs CO analyses	5.31×10^{-2}	-9.75	5.77×10^{2}
O_3 analyses vs CO analyses	-8.84×10^{-2}	7.39	2.80×10^{2}

where high O_3 variability and low CO variability are observed, is empirically identified with a selection criterion defined by Pan et al. [2007]. In figure 5.2, low CO values are mainly located in the stratosphere (above the 380-K isentrope) in the MOCAGE CO and in the MOPITT CO analyses. A quadratic fit is done with the CO values less than 25 ppbv. CO values which are below $+3\sigma$ (where σ is the standard deviation of the selected data) from the fit are considered as stratospheric (blue dots on Fig. 5.3). The tropospheric branch, where low O_3 variability and high CO variability are observed, is also empirically identified with a selection criterion defined by Pan et al. [2007]. In figure 5.2, these low O_3 values are mainly located in the troposphere (below the 2-PVU line) in the MOCAGE O_3 and in the MLS O_3 analyses. A linear fit is done with O_3 values lower than 70 ppbv. O_3 values which are lower than $+3\sigma$ from the fit are considered as tropospheric (red dots on Fig. 5.3). Between these two branches a set of points (green dots on Fig. 5.3) mark a transitional region which represents the ExTL between the stratosphere and the troposphere.

The 'L' shape is detected in the four O_3-CO correlations but the transition region differs significantly between them. The transition region is composed by mixing lines corresponding to O_3-CO vertical relationships for each latitude-longitude location of the model. To illustrate this concept we have plotted in black the points located between 20°W and 0°W on the 59°N vertical plane corresponding to the stratospheric air mass intrusion displayed in the cross sections (Fig. 5.2). We also have over-plotted a quadratic fit of these points in figure 5.3 ; coefficients of the fit are provided in Table 5.1. The model O_3 vs model CO shows a 'convex' and compact relationship in the ExTL. This compact relationship shows that the mixing lines connecting the stratosphere and the troposphere at different locations are similar. Thus, the spatial variability of model CO and model O_3 fields is low in the ExTL. Compared to the model O_3 vs model CO correlations, the O_3 analyses vs model CO correlations show an increase of O_3 values in the ExTL. The relationship between O_3 analyses and model CO is less compact, showing different shapes of mixing lines at different locations illustrating the O_3 variability induced by MLS assimilation in the tropopause region (see Fig. 5.2c).

In the location of the intrusion, the mixing lines show a strong 'concave' shape owing to the ozone maximum observed between 200 and 250 hPa and between 20°W and 0°W. Figure 5.3b shows that the O_3 analyses tended to increase in the ExTL region. The model O_3 vs CO analyses correlations show a more angular 'L' shape and a less compact relationship than model O_3 vs model CO correlations. In this case CO values are decreased in the ExTL and tend to be increased in the upper troposphere (see Fig. 5.2d). This effect

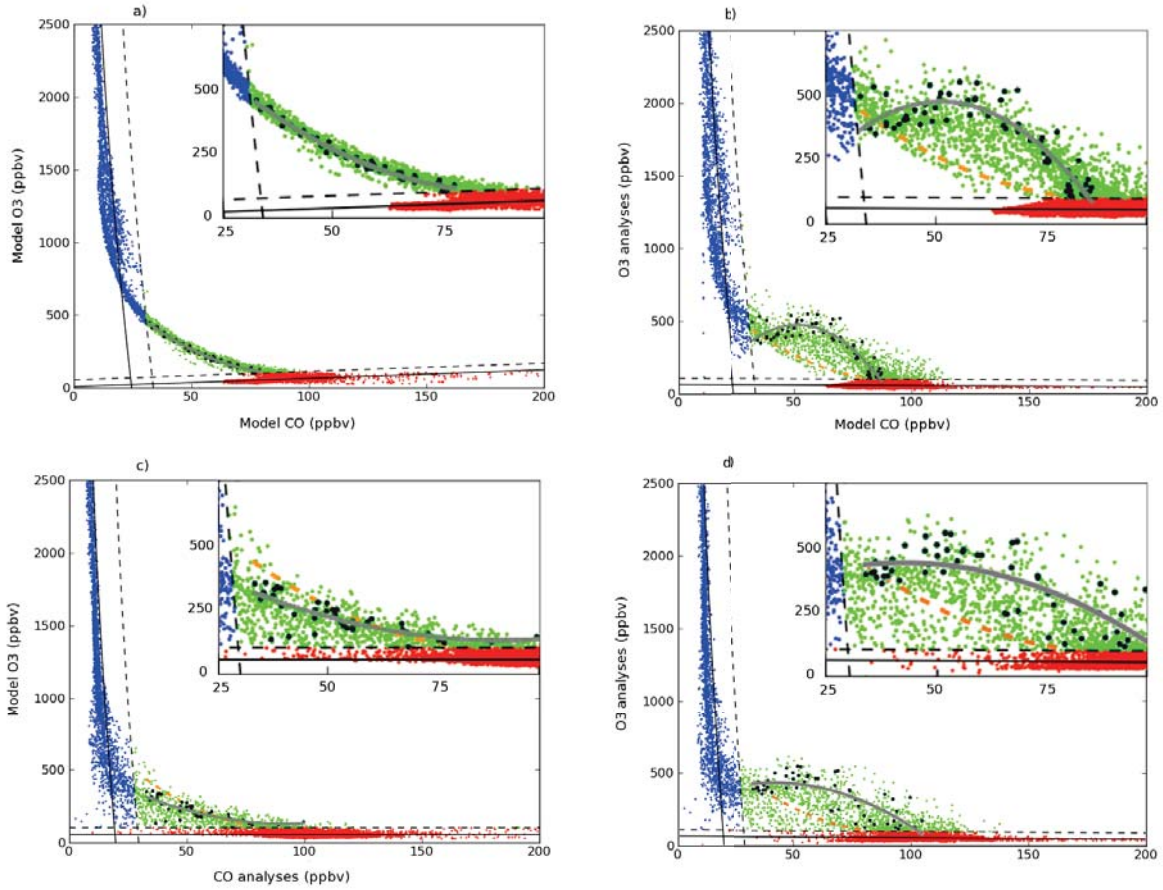


Figure 5.3 – Comparisons of the O_3-CO relationships between model O_3 vs model CO **(a)**, O_3 analyses vs model CO **(b)**, model O_3 vs CO analyses **(c)** and O_3 analyses vs CO analyses **(d)** in the area between 30°W - 10°E, 40°N - 65°N on 15 August 2007 at 12 :00 UT. In all cases, red and blue dots are identified as tropospheric and stratospheric model grid points, respectively. Black solid lines indicate fits to tropospheric and stratospheric values and the dashed lines are the $+3\sigma$ values (where σ is the standard deviation of the selected data) from those fits. The green dots are identified as the transition between stratospheric and tropospheric air. The transitional points between 20°W and 0°W on the 59°N vertical plane are in black and are fitted by the gray line. The model O_3 vs model CO fit is over-plotted on **(b-d)** in dashed orange (see text for details). Within each plot box a zoom of the transition region is provided (top-right) on each panel.

is seen in the location of the intrusion since the slope of the fit is decreased compared to the model O_3 vs model CO fit. The minimum of CO visible in the analyses between 300 and 400 hPa and between 20°W and 0°W (Fig. 5.2d) (where the dynamical tropopause is the lowest in height) does not provide a significant change in the ExTL O_3-CO correlations. The O_3 analyses vs CO analyses correlations show both the effect of MLS O_3 analyses and MOPITT CO analyses. In the ExTL, O_3 values are increased whereas CO values are decreased. The spread of the O_3-CO correlations in the ExTL is increased compared to the other O_3-CO correlations, showing an increased spatial variability of the O_3-CO mixing lines. In this section, we use O_3-CO correlations to select empirically the ExTL points. The impact of assimilation of O_3 and CO fields on the correlations is discussed. We also diagnose in the next sections, how the assimilation of MOPITT CO and MLS O_3 data affects the spatial extent of the ExTL.

5.2.3.2 Diagnostic 2 : Profile comparisons using relative altitude coordinates

In the second diagnostic, we analyze the tracer behavior in altitude coordinates relative to a chosen tropopause level. Because rapid changes in height of tracer concentrations happen near the tropopause, it is helpful to use a tropopause relative vertical coordinate to reduce the geophysical variability caused by wave activity at synoptic and planetary scales. The thermal tropopause has been used as a reference level by Pan et al. [2007] and Pan et al. [2004] to calculate relative altitudes. The thermal tropopause defined by World Meteorological Organization [1957] and the dynamical tropopause defined by potential vorticity can provide double thermal or dynamical tropopause features related to Rossby wave breaking processes and associated transport [Pan et al., 2009; Homeyer et al., 2010]. These double tropopause structures lead to difficulties in calculating diagnostics and in their interpretation. Figure 5.2 displays the location of the lower values of the thermal tropopause (green circles) and the 360-K isentrope level (green triangles). By taking into account O_3 and CO fields, the 360-K contour follows chemical variability in the UTLS. For these reasons, we have chosen to use the 360-K level as a reference level to calculate relative altitudes in order to reduce the geophysical variability in the CO and O_3 profiles. We do not assume that the 360-K level is the tropopause level.

Figure 5.4 provides O_3 and CO profiles in relative altitude (RALT) coordinates for the four O_3-CO correlations. Blue, red and green dots represent the stratospheric, the tropospheric and the ExTL CO and O_3 values, respectively, as selected in section 5.2.3.1. Compared to the free model run, O_3 analyses (Fig. 5.4c) show more O_3 in the ExTL (green dots) and in tropospheric (red dots) regions. In relative altitude, the ExTL in the O_3 analyses extends into the troposphere by -6 km. It has been shown that the tropospheric O_3 concentrations in MLS analyses (with MOCAGE) are increased due to downward transport during the STE event [Barré et al., 2012a]. Thus, some increased upper tropospheric O_3 values are greater than the tropospheric threshold defined in section 5.2.3.1. In the CO profiles, analyses (Fig. 5.4d) show CO values greater than the values of the free run in the tropospheric region and lower than the values of the free run in the stratospheric region. This leads to a stronger gradient in the ExTL around RALT=0 km. Because of the selection criteria defined in section 5.2.3.1, a stronger gradient gives a sharper extent of the ExTL in RALT coordinates. The distribution of the ExTL points differs signifi-

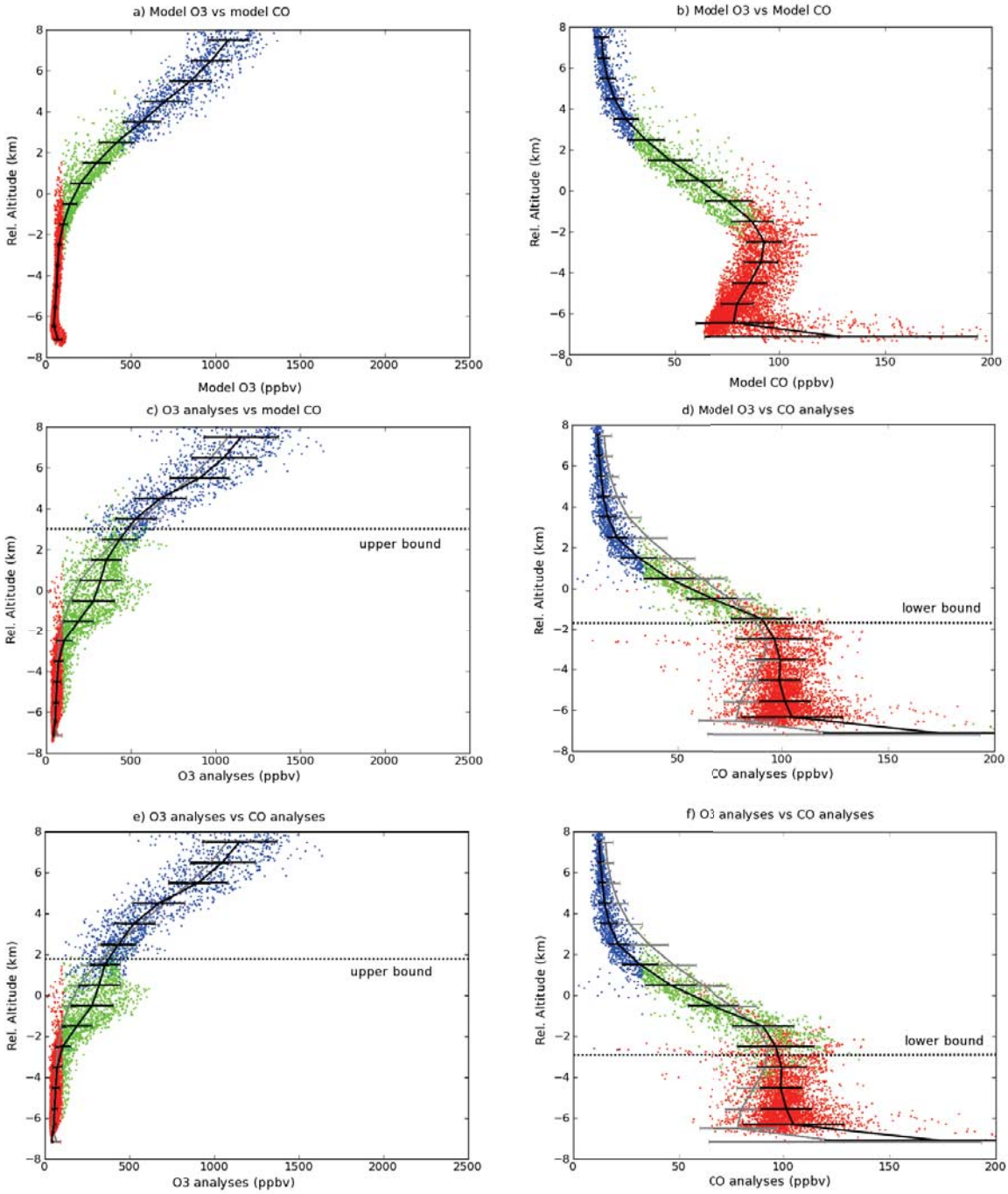


Figure 5.4 – O_3 and CO profiles in the region between 30°W - 10°E, 40°N - 65°N on 15 August 2007 at 12 :00 UT. O_3 profiles (ppbv) in altitude coordinates (km) relative to the 360-K level are provided for model O_3 vs model CO **(a)**, O_3 analyses vs model CO **(c)** and O_3 analyses vs CO analyses **(e)**. CO profiles (ppbv) in relative altitude coordinates (km) are provided for model O_3 vs model CO **(b)**, model O_3 vs CO analyses **(d)** and O_3 analyses vs CO analyses **(f)**. Following selection criteria, red and blue dots are identified as of tropospheric and stratospheric origin, respectively. The green dots are identified as the transitional layer between the stratosphere and the troposphere (see text for details). Black lines represent the mean profile every kilometer and horizontal error bars show the 1σ standard deviation. Over-plotted gray lines and gray error bars **(c-f)** are the free model run mean and standard deviation values for O_3 and CO, respectively.

cantly in the RALT space whether O_3 analyses and CO analyses are used separately or together. If we analyze the differences between Figure 5.4c and Figure 5.4e and between Figure 5.4d and Figure 5.4f, the selection of the ExTL points differs significantly. In the O_3 profiles, the upper bound of the ExTL (green dots) is decreased by about 1 km. In the CO profiles, the lower bound of the ExTL is decreased by about 2 km. CO analyses tend to sharpen in height the ExTL toward the lower stratosphere whereas O_3 analyses expand the ExTL toward the upper troposphere. Where CO analyses and O_3 analyses are used together, the ExTL is lowered by about 1 to 2 km. In the next section, we examine further the ExTL distribution in RALT space.

5.2.3.3 Diagnostic 3 : Sharpness of the transition

The third diagnostic provides the distribution of the ExTL in relative altitude space (as defined in sections 5.2.3.1 and 5.2.3.2). The shape of the ExTL distribution will allow us to quantify its location and depth. Figure 5.5(a-d) displays the distributions for the various O_3-CO relationships : model O_3 vs model CO, O_3 analyses vs model CO, model O_3 vs CO analyses and O_3 analyses vs CO analyses, respectively. The vertical dashed red line and dotted red lines give the mean location of the thermal tropopause and the standard deviation from the mean, respectively. Table 5.2 provides the heights of the mean, the median and the standard deviation of the ExTL distributions in relative altitude space. The free model run distribution has its mean and median heights at about +0.5 km (1.5 km above the thermal tropopause) with a standard deviation of 1.4 km. This shows that the free model run has its ExTL following the 360-K surface in this case study. However, studies using in situ aircraft measurement show that the ExTL is centered on the thermal tropopause with a narrower extent than observed in this study [Pan et al., 2004 2007]. In a multi-model assessment, Hegglin et al. [2010] showed that models simulate a ExTL that is wider than observed in satellite observations, and shifted above the thermal tropopause. The low vertical resolution (800 m) in the model UTLS layers and also the low horizontal resolution ($2^\circ \times 2^\circ$) used in this study is not sufficient to represent the sharp gradients of O_3 and CO observed at the tropopause. This results in a broad transition region in the UTLS. Thus, in our case, a narrower and a lower altitude distribution would be considered an improvement.

Compared to the model O_3 vs model CO distribution, the O_3 analyses vs model CO distribution shows more spread with a standard deviation of 2 km (Fig. 5.5b and Table 5.2). The distribution is also skewed toward negative RALT coordinates. Pan et al. [2004] showed that skewed distributions, particularly toward negative relative altitudes, indicate active mixing from the stratosphere to the troposphere. The mean and the median values of the distribution are both about -0.4 km and the maximum of the distribution at -1.5 km is close to the thermal tropopause. As described in section 5.2.3.2, an increase of tropospheric O_3 values leads to a broadering of the ExTL (down to RALT=-6 km) in the troposphere. No significant changes in the stratospheric region (positive RALT values) of the distribution can be noted. The increase of O_3 in the upper troposphere leads to increase the ExTL depth toward negative RALT. Due to the low sensitivity of the stratospheric selection criterion to the O_3 variations, the stratospheric region of the ExTL is not significantly modified. However, the STE is detected by the tropospheric selection

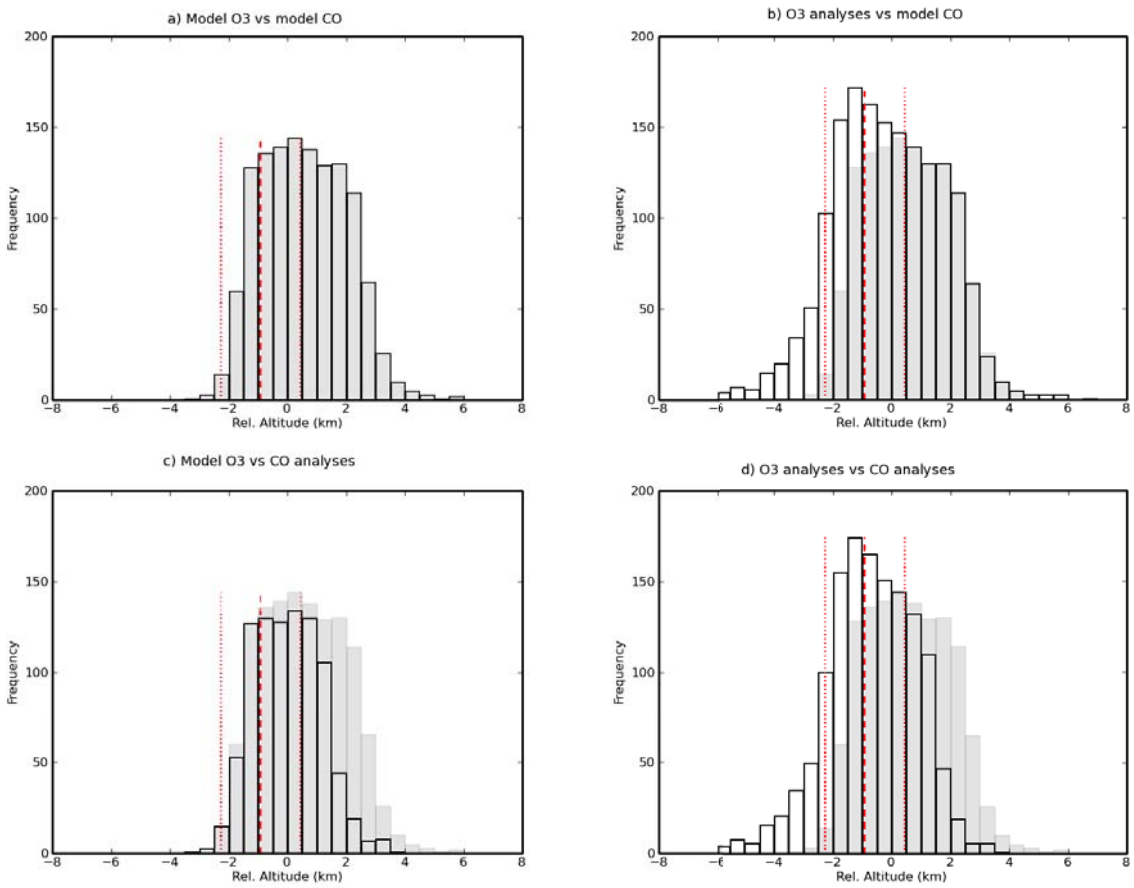


Figure 5.5 – Histograms showing the distributions of the ExTL in relative altitude space in the region between 30°W - 10°E, 40°N - 65°N on 15 August 2007 at 12 :00 UT. model O_3 vs model CO **(a)**, O_3 analyses vs model CO **(b)**, model O_3 vs CO analyses **(c)** and O_3 analyses vs CO analyses **(d)** are displayed in black and model O_3 vs model CO distribution is over-plotted in gray on the plots. Red dashed and dotted vertical lines line show the mean and the standard deviation of the location of the thermal tropopause, respectively. The histograms display the absolute frequencies.

criterion. The ExTL distribution shows a maximum and a mean height corresponding to the thermal tropopause. This is consistent with Figure 5.2c where the ozone gradient in the O_3 analyses follows the thermal tropopause.

Compared to model O_3 vs model CO distribution and the O_3 analyses vs model CO distribution, the model O_3 vs CO analyses provides a narrower ExTL (Fig. 5.5c). The mean and the median of the distribution are very close to 0 km and the standard deviation is reduced to 1.1 km. Compared to the free model run, CO analyses increase the CO gradient between the stratosphere and the troposphere and show a narrower ExTL distribution. However, in this case study the STE characterized by low CO values in the upper troposphere is not detected by the tropospheric selection criterion (described in section 5.2.3.1) which is not very sensitive to CO variations. Moreover, the stratospheric selection criterion is highly sensitive to CO variations. Compared to the model O_3 vs model CO, the spread of the model O_3 vs CO analyses distribution is reduced in the stratospheric region (positive RALT) whereas the tropospheric region (negative RALT) is not significantly modified. This lowers the mean value of the distribution.

Table 5.2 – Heights of the mean, median and standard deviation of the ExTL distribution in relative altitude space (km) for the different experiments.

	Mean	Median	Standard Deviation
model O_3 vs model CO	0.58	0.54	1.42
O_3 analyses vs model CO	-0.39	-0.44	2.01
model O_3 vs CO analyses	0.008	0.016	1.12
O_3 analyses vs CO analyses	-0.85	-0.83	1.43

The O_3 analyses vs CO analyses distribution (Fig. 5.5d) has the same shape as the O_3 analyses vs model CO distribution but is narrower. The maximum of the distribution (-1.5 km) is close to the thermal tropopause and the standard deviation (1.43 km) is lower than the standard deviation of the O_3 analyses vs model CO distribution. The mean value of the O_3 analyses vs model CO analyses distribution (-0.85 km) is close to the mean value of the thermal tropopause (-0.92 km). The ExTL distribution benefits from the combination of the information provided by O_3 analyses and CO analyses. The distribution is centered on the thermal tropopause with an extent narrower than the O_3 analyses vs model CO distribution. Pan et al. [2004] found using aircraft measurements that the center of the ExTL is statistically associated with the thermal tropopause and the thickness of this layer is ∼2 - 3 km in the middle latitudes. The results found with the analyses are consistent with these previous studies (e.g. Hegglin et al. [2010]). In table 5.2, the thickness of the ExTL is ∼2.8 km (2σ) and the mean and median values are lowered by ∼1.4 km. Assimilation of data with vertical information such as MLS stratospheric O_3 profiles or MOPITT CO profiles is well suited for improving the modeled ExTL in the UTLS. Moreover, because of the rapid overturning of air masses in the troposphere and high static stability in the stratosphere, stratosphere to troposphere transport (STT) shows deeper signatures in altitude than troposphere to stratosphere transport (TST) [Hoor et al., 2002]. Consequently, during STT events, the ExTL will show a skewed distribution toward negative RALT. This skewed distribution is only seen with O_3 analyses which provide increased O_3 values in the LMS and below (see for example figure 5.2c) and allow detection of the appropriate STT in these diagnoses.

5.2.4 Global mixing layer for the month of August 2007

In this section, we apply the diagnostic of section 5.2.3.3 (Sharpness of the transition) in the extra-tropics for the month of August 2007 to investigate the impact of data assimilation of MOPITT CO and MLS O_3 on the ExTL representation at the global scale. The diagnostics have been performed on monthly-averaged model output. In this study, we only consider extra-tropical latitudes outside the 20°S - 20°N range. Figure 5.6(a-d) shows zonal means of the model O_3, model CO, O_3 analyses and CO analyses for the month of August 2009, respectively. Black lines denote the LMS bounds (the lower black line is the 2-PVU level and the upper black line is the 380-K isentrope) and black dots give the thermal tropopause location in height. In general, O_3 analyses increase the amount of O_3 in the LMS, especially at Northern extratropical latitudes poleward of 50°N (by more than 200 ppbv). CO analyses increase the tropospheric CO values, except between 20°N

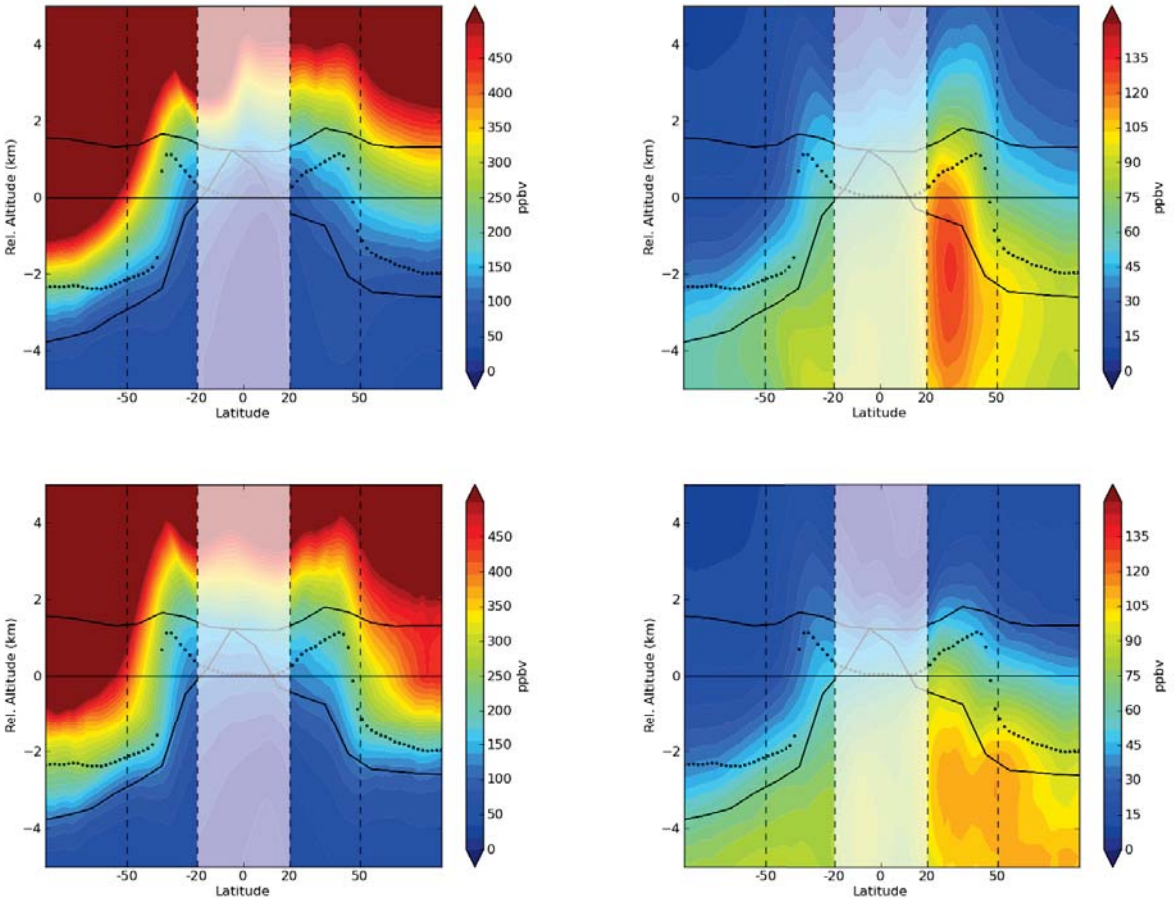


Figure 5.6 – Zonal averages for the month of August 2007 in relatives altitudes (km) of model O_3 **(a)**, model CO **(b)**, O_3 analyses **(c)** and CO analyses **(d)**. Dashed black vertical lines mark the regions of interest. The lowermost stratosphere bounds are represented by the 2-PVU contour in absolute value (lower black line), and the 380-K isentrope (upper black line). Black dots are the thermal tropopause relative altitudes. Tropical latitudes are not shown.

and 40°N, and decrease the lower stratospheric CO values.

We calculate the distribution of the O_3-CO ExTL for latitude bands of 10° between 90°S and 20°S and between 20°N and 90°N with the same selection criteria as in section 5.2.3.1. To be consistent with section 5.2.3, we choose to keep the 360-K level as a reference altitude for the RALT calculations. In Figure 5.7, we provide the latitudinal variations of the ExTL distribution : median (red line), deciles (red to pink filled areas), mean (green line) and standard deviation from the mean (light green lines) in RALT coordinates. The LMS bounds (the lower blue line is the 2-PVU level and the upper blue line is the 380-K isentrope) and the thermal tropopause (black dots) are also over-plotted in RALT coordinates. The ExTL distribution is provided for the four experiments : model O_3 vs model CO, O_3 analyses vs model CO, model O_3 vs CO analyses and O_3 analyses vs CO analyses. Table 5.3 provides mean, median and standard deviation values for the four regions marked by the dashed vertical lines on Figure 5.6 and 5.7 (90°S to 50°S, 50°S to 20°S, 20°N to 50°N and 50°N to 90°N).

In the model O_3 vs model CO distributions, the ExTL has latitudinal variations in the RALT space (Fig. 5.7a). In the Southern hemisphere, the ExTL follows the 2-PVU line (mean and median values) although 0.5 to 1 km above it. Equatorward of 50°S the mean and median values are located between +0.5 km (20°N) and -1.5 km (50°N). Poleward of 50°S, the ExTL location in RALT decreases in height and matches the thermal tropopause (mean and median values -2.2 km). In the Northern hemisphere, the ExTL is about +1.5 km at 20°N and +0.5 km 50°N. At higher latitudes, poleward of 50°N, the ExTL decreases to 0 km. This is about 2 km above the thermal tropopause. In both hemispheres, the standard deviations are reduced from tropical to polar latitudes by about 0.7 km. The standard deviation of the ExTL distribution shows higher values in the Northern hemisphere. A wider extent of the ExTL corresponds to deeper exchanges between the stratosphere and the troposphere (see section 5.2.3) and can be interpreted at the global scale as the STE activity strength. The wider extent of the ExTL in the Northern hemisphere also suggests more intense mixing activity in summer than in winter. Two maxima of ExTL thickness are also identified in both hemispheres near 35°S and 35°N corresponding to the location of the subtropical jets where mixing processes occur [Gettelman et al., 2011]. Pan et al. [2004] deduced from aircraft observations (in the Northern hemisphere) of O_3 and CO a ExTL centered at the thermal tropopause with a thickness between 2 and 3 km expanding into a thicker layer in the vicinity of the subtropical jet.

The O_3 analyses vs model CO data provides slightly wider distributions for the ExTL for all latitudes (Fig. 5.7b) with a standard deviation that is increased between +0.11 km and +0.29 km. When O_3 stratospheric profiles are assimilated, the model is unable to improve the strong O_3 gradients observed in the tropopause region. O_3 analyses move the ExTL location to lower altitudes and always have median and mean values of the distribution below the 380-K level in the LMS region. The mean values of the distributions are significantly lowered in the Northern hemisphere by -0.42 km in the subtropics and by -0.74 km in the middle and polar latitudes closer to the thermal tropopause. This is due to an increase of ozone in the LMS especially in the Northern hemisphere (Fig. 5.6c). Model O_3 vs CO analyses (Fig. 5.7c) show reduction in the ExTL thickness. The layer thickness is strongly reduced as reflected in a reduction of the standard deviation by about -0.55 km in the Northern hemisphere and by -0.2 km in the Southern hemisphere. The mean and the median values match the thermal tropopause poleward of 50°S but remain 1 to 1.5 km above poleward of 50°N. The distribution of O_3 analyses vs CO analyses has the best ExTL representation (Fig. 5.7d). The standard deviations are reduced, between -0.51 km and -0.22 km in the Northern hemisphere. The mean and median values are consistent with the thermal tropopause location poleward of 50°S and 50°N. In the subtropical latitudes, the ExTL is located 2 km below the thermal tropopause. This region is subject to the thermal tropopause break at the location of the subtropical jet providing an instance of a double tropopause. By averaging the model outputs over one month, the double tropopause structures have been smoothed. It has been shown that the ExTL in this region has a contribution from the subtropical jet, the tropical tropopause layer and the mid-latitudes lowermost stratosphere, forming complex structures in the ExTL as double thermal tropopause features [Vogel et al., 2011]. The examination of the subtropical ExTL

merits further investigation but this is out of the scope of this paper.

As described in section 5.2.3.1, stratospheric points are selected using a fit of CO values under 25 ppbv, and tropospheric points are selected using a fit of O_3 values under 70 ppbv. The stratospheric branch has low variability in CO and high variability in O_3. The tropospheric branch has high variability in CO and low variability in O_3. During the MOPITT CO assimilation process, points in O_3-CO tracer space are only moved in the CO dimension quasi-tangentially to the tropospheric branch and quasi-perpendicularly to the stratospheric branch (see Fig. 5.3). During the MLS O_3 assimilation process, points in the O_3-CO tracer space are only moved in the O_3 dimension quasi-tangentially to the stratospheric branch and quasi-perpendicularly to the tropospheric branch. The upper bound of the ExTL distribution is mostly sensitive to CO variations whereas the lower bound of the ExTL distribution is mostly sensitive to O_3 variations. CO analyses have more influence on the stratospheric region of the ExTL and reduce the mixing layer depth. O_3 analyses have more influence on the tropospheric region of the ExTL and are not able to reduce the ExTL depth but have the capability to represent STE at extra-tropical latitudes.

In this section, we have shown that data assimilation helps to improve the ExTL representation between the stratosphere and the troposphere at a global scale in the extra-tropics. CO analyses reduce the spread of the ExTL and O_3 analyses lower the location of the ExTL closer to the thermal tropopause. A combination of these two analyses shows significant better results than each analyses separately : the ExTL location matches the thermal tropopause location at middle and polar latitudes and its spread is in the range of what is observed by in situ and satellite measurements studies. In the Northern hemisphere Pan et al. [2004] deduced from aircraft observations that the ExTL thickness is 2 - 3 km at middle latitudes with enhanced values in the vicinity of the subtropical jet. In table 5.2, the O_3 analyses vs CO analyses distribution shows a strandard deviation (2σ) of $\sim$2.8 km between 50°N and 90°N and of $\sim$3.4 km between 20°N and 50°N. Hegglin et al. [2009] found in satellite measurements an ExTL depth in extra-tropical latitudes between 1.5 km and 4 km which match our results of 2 km to 4 km.

5.2.5 Discussions and conclusions

In the present study, we use the statistical diagnostics defined by Pan et al. [2004] and Pan et al. [2007] to provide a quantitative description of the impact of MLS O_3 and MOPITT CO analyses produced by data assimilation on the ExTL. Firstly, we focus on a STE case study documented and validated by El Amraoui et al. [2010]. O_3-CO relationships are used to characterize the height and depth of the ExTL. Two different O_3 fields are provided, a MOCAGE free model run and MLS analyses, and two different CO fields are provided, a MOCAGE free model run and MOPITT analyses. Then four O_3-CO relationships are studied.

The free model run O_3-CO relationship shows a 3-km wide ExTL distribution which is centered 0.5 km above the 360-K isentrope (1.5 km above the thermal tropopause). This distribution shows the typical behavior of the models representing the atmospheric composition, namely an overestimation of the ExTL depth and of its location in height, above the thermal tropopause. MLS O_3 analyses extend the spread of the distribution

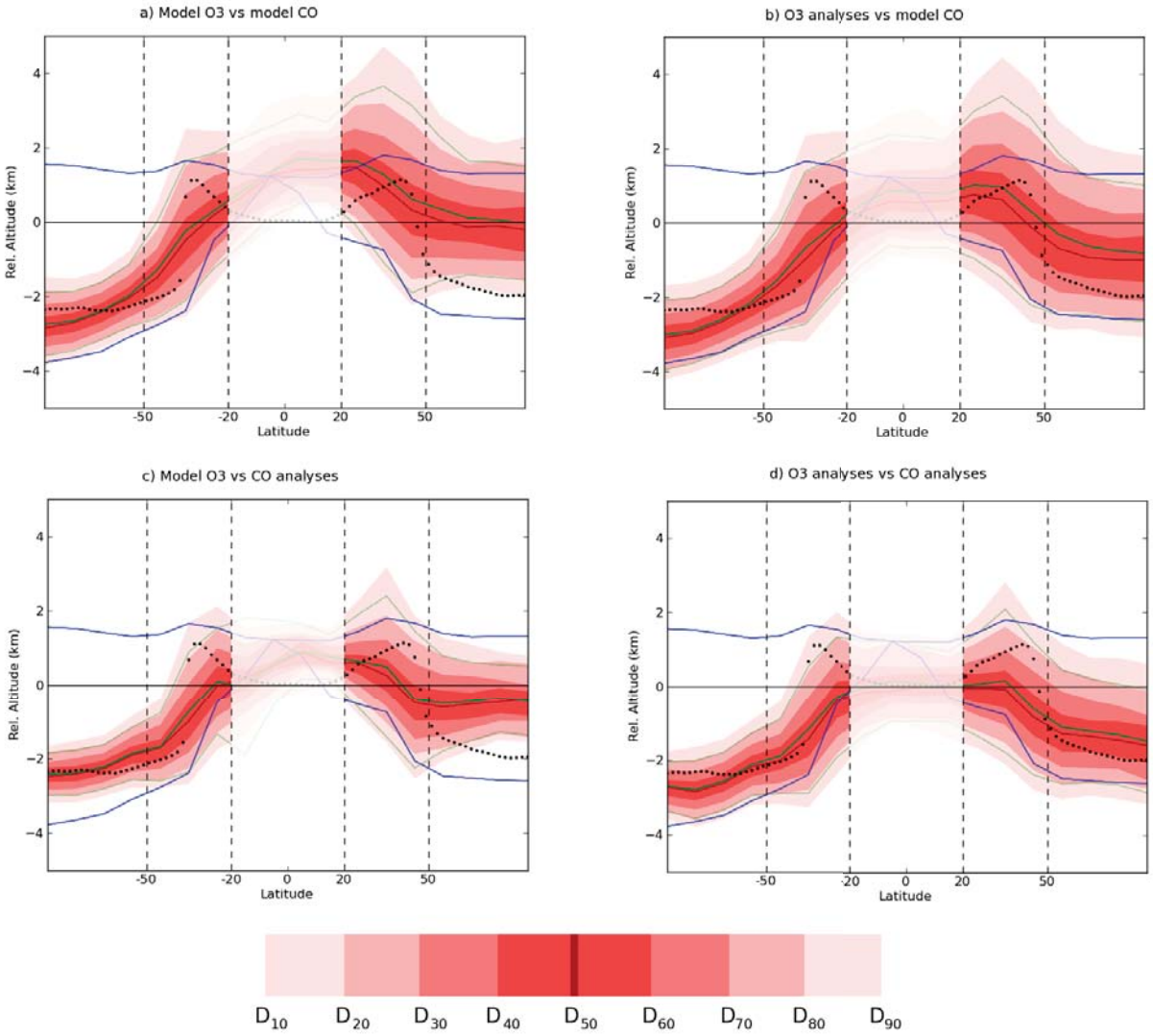


Figure 5.7 – Latitudinal height variations in altitude coordinates (km) relative to the 360-K level of the ExTL distribution for model O_3 vs model CO **(a)**, O_3 analyses vs model CO **(b)**, model O_3 vs CO analyses **(c)** and O_3 analyses vs CO analyses **(d)** in August 2007. Red filled contours provide the decile altitudes of the distribution. Red and green lines are the median and mean altitudes, respectively. Blue lines show the lowermost stratosphere bounds : the lower line provides the 2-PVU contour in absolute value, the upper line provides the 380-K isentropic contour. Black dots show the location of the thermal tropopause. Tropical latitudes are not shown.

Table 5.3 – Heights of the mean, median and standard deviation of the ExTL distribution in relative altitude space (km) for the different experiments and for the different regions over the globe.

		90°S-50°S	50°S-20°S	20°N-50°N	50°N-90°N
model O_3 vs model CO	Mean	-2.18	-0.40	1.18	0.12
	Median	-2.23	-0.59	0.92	-0.10
	Standard Deviation	0.80	1.57	2.20	1.63
O_3 analyses vs model CO	Mean	-2.39	-0.76	0.76	-0.62
	Median	-2.46	-0.96	0.41	-0.90
	Standard Deviation	0.93	1.73	2.31	1.92
model O_3 vs CO analyses	Mean	-2.04	-0.77	0.24	-0.44
	Median	-2.08	-0.90	0.11	-0.49
	Standard Deviation	0.64	1.32	1.67	1.05
O_3 analyses vs CO analyses	Mean	-2.33	-1.12	-0.12	-1.25
	Median	-2.40	-1.27	-0.31	-1.40
	Standard Deviation	0.80	1.45	1.69	1.41

toward tropospheric altitudes due to an increase of O_3 values in the UTLS. This increases the depth of the ExTL by about 1 km and lowers the mean location, by 1 km, closer to the thermal tropopause. The ExTL distribution has its maximum at the thermal tropopause showing the capability of MLS O_3 analyses to represent STE exchange. MOPITT CO analyses have the capability to sharpen the CO gradient in the UTLS. This reduces the spread of the ExTL on its stratospheric side by about 0.4 km showing a mean location on the 360-K isentrope. Due to the low sensitivity to CO tropospheric variations of the diagnostics used in the present study, MOPITT CO analyses do not show a signature of STE in the ExTL distributions. In combining the information provided by MLS O_3 analyses and MOPITT CO analyses, the ExTL distribution has a more realistic shape and location. The ExTL mean location is centered on the thermal tropopause and the spread of the ExTL is not increased compared to the free model run. It has been shown that models simulate an ExTL deeper than observed in aircraft measurements, and shifted above the thermal tropopause [Hegglin et al., 2010]. This is due to the limited vertical and horizontal resolutions of the models, as well as the lack of representativeness in the aircraft observations. However, data assimilation of CO and O_3 satellite measurements helps to improve the representation of the ExTL and overcomes the limitation due to the relatively low model resolution.

We also extend the diagnostics at global extra-tropical latitudes for the August 2007 time period. MLS O_3 analyses show a spread of the ExTL distribution toward the surface which lowers the mean location of the ExTL, and puts it closer to the thermal tropopause. MOPITT CO analyses reduce the spread of the ExTL on its stratospheric side which also lowers the ExTL mean location closer to the thermal tropopause. When MLS O_3 analyses and MOPITT CO analyses are used together, a synergistic effect is observed. The ExTL location poleward of 50°N and 50°S matches the thermal tropopause and the depth of the ExTL is reduced compared to the free model run O_3-CO diagnostics. As shown in the case study, the STE is characterized by the tropospheric extent of the ExTL. In the global

diagnostics, MLS O_3 analyses increase the tropospheric extent of the ExTL distribution below the 2-PVU level showing stratospheric O_3 intrusions into the troposphere.

It is important to note that the ExTL in the extra-tropical Southern latitudes (winter) is shallower than in the extra-tropical Northern hemisphere (summer). This suggests that mixing processes in the UTLS are more active in the Northern hemisphere than in the Southern hemisphere. Further investigation is needed, for example using O_3 and CO fields analyses over longer time scales (e.g. more than one year) to diagnose the seasonal behavior of the ExTL.

Acknowledgements

We thank the Jet Propulsion Laboratory MLS science team for retrieving and providing the O_3 MLS data. We thank the National Center for Atmospheric Research MOPITT science team and NASA for producing and archiving the MOPITT CO product. This work was funded by the Centre National de Recherches Scientifiques (CNRS) and the Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) of Météo-France. VHP, JLA, LEA and WL are supported by the RTRA/STAE (POGEQA project). JLA thanks also the Région Midi Pyrénées (INFOAIR project).

5.3 Conclusions et perspectives

Dans ce dernier chapitre de thèse nous avons mis de coté le domaine à air limitée et la haute résolution horizontale pour étudier la valeur ajoutée de l'assimilation de données d'ozone et de monoxyde de carbone à l'échelle globale. Nous avons montré que l'assimilation de données permet de surmonter le manque de résolution modèle, afin d'avoir une représentation plus réaliste des processus de mélange des espèces chimiques au niveau de l'UTLS. La trop faible résolution modèle est une limite connue pour la représentation des modèles de chimie de l'atmosphère de manière générale. Cela se traduit souvent par une région de transition entre stratosphère et troposphère trop étalée sur la verticale (les gradients d'O_3 et de CO à l'UTLS sont trop faibles) et aussi par une surestimation de l'altitude moyenne de cette région (les processus de mélange y sont sous estimés). L'assimilation de données de CO et d'O_3 permet d'améliorer cette représentation.

Aussi des perspectives de recherche s'ouvrent à la suite de ce travail. De fortes différences inter-hémisphériques sont mises en évidence, comme une couche mélange plus épaisse dans l'hémisphère Nord qui traduirait une plus forte activité des processus de mélange. Avec la couverture temporelle des données satellites (de plus d'une dizaine d'années pour certains sondeurs) dont on dispose maintenant, il est alors envisageable d'étudier les variation saisonnière et inter-annuelle de la ExTL au niveau de l'UTLS. Un lien entre assimilation de données chimiques et des thématiques liés à l'étude du climat est alors possible.

Conclusions et perspectives

La haute troposphère - basse stratosphère (UTLS) est une région importante pour la compréhension des phénomènes météorologiques et du climat. La caractérisation composition chimique précise de l'UTLS et sont impact sur les couches adjacentes de l'atmosphère restent encore mal représentés dans les modèles de chimie de l'atmosphère. Par exemple aux latitudes extra-tropicales, les échanges de masses d'air de la stratosphère vers la troposphère ont une influence significative sur l'état physique et chimique de la troposphère. La forte variabilité des champs météorologiques et chimiques qui caractérise l'UTLS requiert une résolution très accrue des modèles et donc un coût numérique très important. Depuis plus d'une dizaine d'années, la télédétection spatiale permet de restituer des mesures météorologiques et chimiques à l'échelle globale avec un échantillonnage spatio-temporel très élevé. Suivant les différents modes de visée de ces instruments (visée au lime ou au nadir) l'information contenue dans les observations procurera un contenu détaillé sur la verticale ou l'horizontale localisé en troposphère ou en stratosphère. L'assimilation de données constitue un moyen efficace de combiner de manière objective l'information a priori issue des modèles avec les mesures dont on dispose. Ainsi, elle permet de caractériser les mauvaises représentations systématiques des modèles afin de les corriger. En améliorant les modèles pour corriger ces biais, on peut alors tirer pleinement partie des observations assimilées. L'assimilation de données permet une représentation plus réaliste de l'état physique et chimique de la stratosphère, la troposphère mais aussi de l'UTLS.

Les objectifs de cette thèse s'inscrivent dans le cadre de l'assimilation de données chimiques de différents type de sondeurs spatiaux mesurant la stratosphère et la troposphère. Les mesures d'ozone et de monoxyde de carbone ont été assimilées dans le modèle de chimie transport MOCAGE dans des configurations globale, à basse résolution horizontale, et régionale, à haute résolution horizontale, grâce à la technique variationnelle tri-dimensionnelle 3D-FGAT. Les impacts de l'assimilation de profils d'ozone stratosphérique pour une résolution variable du modèle sur la troposphère ont été quantifiés. En connaissant ces impacts, il a ensuite été montré la forte valeur ajoutée de l'assimilation simultanée de colonnes d'ozone troposphérique avec des profils d'ozone stratosphérique dans un modèle à haute résolution. Enfin nous avons pu traiter un cas global, où nous avons comparé l'assimilation de profils troposphériques de monoxyde de carbone avec l'assimilation des profils stratosphériques d'ozone afin de diagnostiquer la couche de transition chimique au niveau de l'UTLS.

Nous avons assimilé les données de l'instrument MLS qui fournit des profils d'ozone stratosphériques afin de quantifier l'impact de l'assimilation de données sur la troposphère

pour une résolution horizontale variable (2° et 0.2°). Dans cette optique, nous avons choisi deux cas d'étude d'intrusion stratosphérique observés au dessus de l'Europe en Juin et Juillet 2009 pour montrer les impact combinés de l'assimilation de MLS et de la haute résolution. A haute résolution les structures filamentaires qui caractérisent l'intrusion stratosphérique sont bien représentées par le modèle. L'assimilation de MLS montre une meilleure représentation de l'ozone au niveau de l'UTLS que le modèle seul. En particulier, à haute résolution horizontale l'assimilation de MLS montre des structures d'ozone très réalistes et le profil vertical se trouve fortement amélioré. Des calcul de rétro-trajectoires et de prévision ont montré l'impact en troposphère de l'assimilation de MLS : un biais augmenté en troposphère mais la représentation plus réaliste de maxima locaux d'ozone provenant de la basse stratosphère polaire. Cette étude montre le besoin important de l'augmentation de la résolution des modèles pour la représentation réaliste des champs chimiques à l'UTLS. D'autre part il faut aussi noter la sous estimation des champs d'ozone du modèle au niveau de la basse stratosphère polaire, et pour la période considérée : le problème est-il d'ordre dynamique, chimique ou numérique ? On pourrait alors penser à diagnostiquer l'information dynamique à partir des champs d'ozone assimilés comme l'a montré Semane et al. [2009]. L'examen de la correction des champs de vent sur de longues période de temps (plus d'une année) pourrait alors nous permettre de mieux caractériser les causes de la sous estimation de l'ozone dans la basse stratosphère polaire.

Nous avons ensuite assimilé les profils d'ozone stratosphériques de l'instrument MLS avec les colonnes d'ozone troposphériques de l'instrument IASI en utilisant une configuration régionale au dessus de l'Europe pendant la période du mois de Juillet 2009. L'étude compare l'assimilation seule et combinée de IASI et de MLS pour mettre en évidence les possibles effets synergiques de l'assimilation combinée. L'interprétation des incréments d'assimilation et des tests OMA, OMF montre que l'assimilation de MLS a un fort impact sur la troposphère et que l'effet de l'assimilation des colonnes troposphériques de IASI sur la stratosphère est très négligeable. L'effet est visible de manière statistique sur tout le mois de Juillet 2009. Pour la validation de la stratosphère les profils issu de l'instrument MIPAS ont été utilisés et montre que l'assimilation de MLS (ainsi que l'assimilation combinée) améliore le profil d'ozone stratosphérique. Les mesures aéroportés MOZAIC sont utilisées pour évaluer les impacts de chaque expérience d'assimilation sur l'UTLS et la troposphère. L'assimilation de IASI montre les meilleures résultats statistiques en troposphère l'assimilation combinée de MLS et IASI montre les meilleurs résultats au niveau de l'UTLS. Enfin la comparaison aux mesures de colonne totale d'ozone provenant d'OMI permet une validation spatio-temporelle statistiquement détaillée. L'assimilation de MLS biaise fortement les valeurs de colonne totale d'ozone mais améliore sa variabilité. Cependant, l'assimilation de IASI ne montre pas de forts impacts sur la colonne totale d'ozone. L'assimilation combinée de MLS et IASI montre la meilleure adéquation avec les mesures OMI par rapport au modèle seul. Le biais, l'écart quadratique moyen sont significativement améliorés en moyenne de 15 et 12 DU respectivement. La corrélation (R^2) quant à elle montre des valeurs supérieures à 0.8 dans la moitié Nord du domaine régional. Cet ensemble de validations montre que la structure verticale du champ d'ozone dans le modèle MOCAGE est fortement améliorée. L'assimilation combinée de profils

stratosphérique mesurés au limbe et et de colonne partielles mesurées au nadir permet de fournir des ré-analyses de haute qualité. Cette étude ouvre des perspectives quant à la caractérisation de la matrice d'erreur d'ébauche comme l'a fait Massart et al. [2012] pour la stratosphère mais étendu à la troposphère grâce aux mesures de IASI.

Enfin dans une troisième partie, nous avons analysé le comportement de la couche de transition extra-tropicale (ExTL) au niveau de l'UTLS en assimilant les profils d'ozone stratosphériques provenant des mesures au limbe de MLS et les profils de monoxyde de carbone troposphériques provenant des mesures au nadir de MOPITT. Des diagnostiques utilisant les corrélations entre O_3 et CO permettent de quantifier l'effet de l'assimilation de données sur l'altitude et l'épaisseur de la ExTL. L'épaisseur de la ExTL nous renseigne sur l'activité du mélange des masses d'air entre la stratosphère et la troposphère. Un cas d'étude STE à été isolé au dessus des îles Britanniques en Août 2007 afin d'étudier les propriétés de la ExTL. L'assimilation des données CO de MOPITT réduit l'épaisseur de la ExTL (qui est surestimée dans le modèle MOCAGE) alors que l'assimilation des données O_3 de MLS étale cette couche vers la surface et augmente son épaisseur. La distribution verticale de la ExTL montre un maximum vers la tropopause thermique quand les données MLS sont utilisées. Quand les champs assimilés de CO et d'O_3 sont utilisés en en même temps dans les diagnostiques, la ExTL montre un comportement plus réaliste et se trouve localisé vers la tropopause thermique. L'étude est aussi étendue à l'échelle globale sur tout le mois d'août 2007. Comme pour le cas d'étude, l'assimilation de données de CO de MOPITT montre toujours une ExTL plus fine que le modèle MOCAGE seul. L'assimilation de données d'O_3 a aussi toujours tendance à étaler vers la surface la ExTL. Quand les analyses de CO et d'O_3 sont utilisées la ExTL suit de manière globale la tropopause thermique pour les moyennes latitudes et les latitudes polaires. Cette étude montre dans un premier temps que l'assimilation de données permet de surmonter le manque de résolution des modèles afin de représenter de manière plus réaliste la tropopause chimique. Nous avons aussi remarqué que l'épaisseur de la ExTL est plus importante dans l'hémisphère Nord (été) que l'hémisphère Sud (hiver). Cela suggérerait une plus forte activité des processus de mélange à l'UTLS dans l'hémisphère Nord que dans l'hémisphère Sud. Ce travail ouvre des perspectives pour l'étude des variations saisonnières et inter-annuelles de la ExTL aux latitudes extra-tropicales. Avec maintenant plus d'une dizaine d'années de mesures satellites pour certains sondeurs, un lien entre assimilation de données chimiques et études à l'échelle décennale est alors possible.

Annexe A : Claeyman et al., 2011

Ce travail de thèse a pu contribuer à l'étude suivante, destinée à évaluer la valeur ajoutée que peuvent apporter deux instruments satellitaires différents dans le modèle MOCAGE au niveau de la surface. L'article est centré sur les experiences de simumation d'observations (OSSE : observing system simulation experiment) afin de comparer les capacités de deux sondeurs géostationnaires mesurant dans l'infrarouge thermique (TIR) l'ozone (O_3) et le monoxyde de carbone (CO) pour la qualité de l'air au dessus de l'Europe. L'origininalité de l'étude est d'utiliser les OSSE afin d'évaluer comment ces sondeurs infrarouges peuvent améliorer les prévisions sur la qualité de l'air. Le premier instrument (GEO-TIR) a une configuration optimisée pour mesurer O_3 et CO dans la basse troposphère (lowermost troposphere : LmT ; entre la surface et 3 km d'altitude), et le second instrument (GEO-TIR2) est conçu pour mesurer la température et l'humidité. Les deux instruments mesurent les radiances dans la même fenêtre spectrale. Les résultats montrent que GEO-TIR a un impact plus significatif sur les analyses d'O_3 et de CO dans la région de la LmT que GEO-TIR2. La valeur ajoutée des mesures des deux instruments est surtout localisée au dessus du bassin méditerranéen mais aussi au dessus de l'Atlantique et du Nord de l'Europe. L'impact de GEO-TIR se situe surtout au dessus de 1 km pour O_3 et CO mais améliore aussi les champs analysés de CO à la surface. Les analyses de GEO-TIR2 montrent un faible impact pour l'O_3 dans la LmT mais un impact significatif (cependant plus faible que pour GEO-TIR) sur les valeurs de CO au dessus de 1 km. Les résultats de cette étude indiquent l'impact bénéfique qu'aurait un instrument infrarouge géostationnaire (GEO-TIR) dédié à la mesure d'O_3 et de CO dans la LmT sur la prévision de la qualité de l'air.

Atmos. Meas. Tech., 4, 1637–1661, 2011
www.atmos-meas-tech.net/4/1637/2011/
doi:10.5194/amt-4-1637-2011
© Author(s) 2011. CC Attribution 3.0 License.

Atmospheric Measurement Techniques

A thermal infrared instrument onboard a geostationary platform for CO and O_3 measurements in the lowermost troposphere: Observing System Simulation Experiments (OSSE)

M. Claeyman[1,2], J.-L. Attié[1,2], V.-H. Peuch[2], L. El Amraoui[2], W. A. Lahoz[2,3], B. Josse[2], M. Joly[2], J. Barré[2], P. Ricaud[1], S. Massart[4], A. Piacentini[4], T. von Clarmann[5], M. Höpfner[5], J. Orphal[5], J.-M. Flaud[6], and D. P. Edwards[7]

[1]Laboratoire d'Aérologie, Université de Toulouse, UMR 5560, CNRS/INSU, Toulouse, France
[2]CNRM-GAME, URA1357, CNRS – Météo-France and Toulouse, Toulouse, France
[3]NILU, 2027 Kjeller, Norway
[4]CERFACS, Toulouse, France
[5]Forschungszentrum Karlsruhe, Inst Meteorol & Klimaforsch, Karlsruhe, Germany
[6]Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques, UMR7583, CNRS – Université de Paris-Est, Créteil, France
[7]National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, USA

Received: 17 December 2010 – Published in Atmos. Meas. Tech. Discuss.: 2 February 2011
Revised: 17 July 2011 – Accepted: 29 July 2011 – Published: 26 August 2011

Abstract. This paper presents observing system simulation experiments (OSSEs) to compare the relative capabilities of two geostationary thermal infrared (TIR) instruments to measure ozone (O_3) and carbon monoxide (CO) for monitoring air quality (AQ) over Europe. The primary motivation of this study is to use OSSEs to assess how these infrared instruments can constrain different errors affecting AQ hindcasts and forecasts (emissions, meteorology, initial condition and the 3 parameters together). The first instrument (GEO-TIR) has a configuration optimized to monitor O_3 and CO in the lowermost troposphere (LmT; defined to be the atmosphere between the surface and 3 km), and the second instrument (GEO-TIR2) is designed to monitor temperature and humidity. Both instruments measure radiances in the same spectral TIR band. Results show that GEO-TIR could have a significant impact (GEO-TIR is closer to the reference atmosphere than GEO-TIR2) on the analyses of O_3 and CO LmT column. The information added by the measurements for both instruments is mainly over the Mediterranean Basin and some impact can be found over the Atlantic Ocean and Northern Europe. The impact of GEO-TIR is mainly above 1 km for O_3 and CO but can also improve the surface analyses for CO. The analyses of GEO-TIR2 show low impact for O_3 LmT column but a significant impact (although still lower than for GEO-TIR) for CO above 1 km. The results of this study indicate the beneficial impact from an infrared instrument (GEO-TIR) with a capability for monitoring O_3 and CO concentrations in the LmT, and quantify the value of this information for constraining AQ models.

Correspondence to: M. Claeyman
(marine.claeyman@aero.obs-mip.fr)

1 Introduction

The atmospheric composition of pollutants in the lowermost troposphere (LmT; defined to be the atmosphere between the surface and 3 km) is a societal issue because it is associated with air quality (AQ). Poor AQ can lead to negative health effects such as respiratory problems, heart disease and lung cancer. Monitoring and forecasting AQ is becoming routine (e.g. Prev'air in France, Honoré et al., 2008). This concerns both gaseous and particle species and includes ground-level ozone (O_3), nitrogen oxides (NO_x) and suspended particulate matter (PM), all of which are identified as potential health hazards (Brunekreef and Holgate, 2002).

O_3 is a key trace gas in the troposphere that plays a significant role in atmospheric chemistry, air quality and radiative forcing (e.g. Jacob, 2000). It is a secondary pollutant produced by the photochemical oxidation of hydrocarbons and

carbon monoxide (CO) in the presence of nitrogen oxides (NO_x). It is a precursor to the formation of the hydroxyl radical which impacts the oxidizing capacity of the atmosphere. It is also an irritant gas which can affect severely the respiratory tract and cause damage to vegetation (Seinfeld and Pandis, 1997). In Europe, tropospheric O_3 levels increased rapidly between 1970 and 1990 as a result of increases in precursor emissions (e.g. Lamarque et al., 2005); but this increase has slowed down or declined since 1990 (e.g. Oltmans et al., 2006). CO is a reactive gas which also plays an important role in tropospheric chemistry (Jacob, 2000). It is an O_3 precursor and a tracer of pollution (e.g. Turquety et al., 2009). In addition to atmospheric chemical sources, CO is also a primary pollutant, emitted during incomplete combustion processes, which makes CO a good tracer for urban/industrial fossil fuel burning (e.g. Branis, 2009), wildfires (e.g. Cristofanelli et al., 2009) and tropical biomass burning (e.g. Edwards et al., 2006; Pradier et al., 2006).

In Europe, despite the definition and the implementation of regulations and laws regarding pollutants, AQ is still a concern for the public and the authorities. Reduction of the AQ impact on health may be achieved both with long- and short-term actions (Menut and Bessagnet, 2010). Long-term actions concern global improvement of AQ by reducing anthropogenic emissions. Short-term actions consist in anticipating pollution events, a few days before they happen, to warn the public in advance in order to reduce exposure and help authorities take effective emission reduction measures. AQ monitoring and forecasting is required to achieve these actions.

Current monitoring and forecasting systems mostly rely on three-dimensional models (e.g. Vaughan et al., 2004; McKeen et al., 2005; Honoré et al., 2008; Hollingsworth et al., 2008). Traditionally, AQ monitoring has been done using measurements from ground-based stations. Ground-based in situ observations have the disadvantage of an inhomogeneous spatial coverage, and present a strong variability in their spatial representativeness, their measurement methods and correction factors (Ignaccolo et al., 2008). The main advantage of satellite observations is the good spatial coverage. Ground-based observations and satellite observations of pollutants complement each other; the former sample the surface, the latter sample in the vertical, typically as a column. For AQ purposes, satellite observations have to measure tropospheric composition at adequate spatial ($\sim 10 \times 10\,km^2$) and temporal ($\sim 1\,h$) resolution (Fishman et al., 2008; Martin, 2008). To complement in situ information (e.g. AQ networks, sondes, aircraft measurements), denser observations at continental scales in the lowermost troposphere (LmT; defined to be the atmosphere between the surface and 3 km) are needed for AQ relevant species (e.g. O_3 and CO). These observations can only be provided by a Geostationary Earth Orbit (GEO) platform (Bovensmann and Orphal, 2005; Edwards, 2006).

Several GEO missions have been proposed to monitor AQ. In the USA, the GEO-CAPE mission (National Research Council, 2007) dedicated to the measurement of tropospheric trace gases is planned toward the end of the decade. In Japan, a similar mission has been proposed by the Japan Society of Atmospheric Chemistry to monitor O_3 and aerosols (including their precursors) from GEO (Akimoto et al., 2008) and has been recently endorsed by the Japanese Space Agency (JAXA). In Korea, the National Institute of Environmental Research is planning GEMS (Geostationary Environment Monitoring Spectrometer, Lee et al 2010) program to be launched in 2017–2018 onboard a MP-GEOSAT (Multi-Purpose GEOstationary SATellite) which is supposed to be the successive mission of COMS (Communication, Ocean and Meteorological Satellite). In Europe, several GEO missions have been proposed to monitor tropospheric constituents at high temporal and spatial resolution such as GeoTrope (Burrows et al., 2004) and GeoFIS (Flaud et al., 2004; Orphal et al., 2005). The Meteosat Third Generation – Thermal Infrared Sounder (MTG-IRS) is a planned mission to be launched from 2017. MTG-IRS will be able to provide information on horizontally, vertically, and temporally resolved water vapour and temperature structures of the atmosphere. It will also be able to provide O_3 and CO measurements in the troposphere, using the long-wave infrared and the mid-wave infrared bands respectively.

The sentinel 4 UVN (ultraviolet-visible-near infrared) payload is also a planned mission and will be deployed on the two MTG-Sounder (MTG-S) satellites in GEO orbit over Europe; UVN is expected to provide measurements of O_3 and nitrogen dioxide column, and aerosol optical depth. To complement Sentinel 4 UVN, the mission Monitoring the Atmosphere from Geostationary orbit for European Air Quality (MAGEAQ) has been proposed as a candidate for the Earth Explorer Opportunity Mission EE-8 call of the European Space Agency (Peuch et al., 2009, 2010). MAGEAQ is a multispectral instrument (thermal infrared and visible) designed to provide height-resolved measurements of O_3 and CO in the LmT.

A method to determine the beneficial impact of future instruments is the Observing System Simulation Experiment (OSSE) (Atlas, 1997). This method is widely used in the meteorological community for assessing the usefulness of new meteorological satellite data (e.g. Lahoz et al., 2005; Stoffelen et al., 2006; Masutani et al., 2010b). There are actually few studies concerning OSSEs on chemical species. However, two recent OSSE studies have been conducted concerning a GEO platform for AQ purposes. The first one consists of an OSSE for CO in the LmT using a multispectral (near-infrared and thermal infrared) instrument (Edwards et al., 2009). The second one concerns a satellite imager to monitor the aerosol optical depth to improve ground level particulate analyses and forecasts (Timmermans et al., 2009).

The aim of this paper is to present a new OSSE for a GEO instrument in the thermal infrared band (called GEO-TIR) with instrument characteristics optimized to monitor O_3 and CO in the LmT. GEO-TIR presents instrument characteristics (signal to noise ratio: SNR and spectral sampling interval: SSI) equivalent to the thermal infrared instrument proposed in the MAGEAQ mission and described in Claeyman et al. (2011). In order to accurately assess the impact of GEO-TIR O_3 and CO observations in an AQ model, we perform several OSSEs to evaluate the sensitivity of the analyses to various key parameters: emissions, meteorology and initial conditions, and for all these parameters simultaneously. We also perform OSSEs for another GEO thermal infrared instrument but with instrument characteristics optimized for temperature and humidity (GEO-TIR2) to evaluate the relative added value of GEO-TIR with respect to GEO-TIR2. GEO-TIR2 has SNR and SSI similar to those of MTG-IRS (Clerbaux et al., 2008a; Stuhlmann et al., 2005). We first evaluate the added value over Europe of GEO-TIR in the LmT column considering several statistical measures (correlation, bias, standard deviation) and then, the vertical impact of GEO-TIR, considering several AQ statistical measures (e.g. good detection, false alarms, missing events).

This paper is organized as follow. In Sect. 2, we describe the OSSE method, the chemistry transport model (CTM), the assimilation scheme used, the synthetic observations, the different experiments, and the statistical measures. In Sect. 3, we discuss the added value of GEO-TIR in an AQ model in the LmT, by comparison with GEO-TIR2. Summary and conclusions are presented in Sect. 4.

2 Methodology and experiment setup

2.1 The Observing System Simulation Experiment

Observing System Simulation Experiments (e.g. Atlas, 1997) are used to assess the impact of future observing systems. To simulate a future observing system, existing observations are generally replaced by synthetic observations, generated by sampling a nature run, according to the instrument characteristics (observational geometry, spatial and temporal resolution, errors). In some cases, a subset of the future observations can be represented by current observations, but the observing platform of interest is always simulated (see Masutani et al., 2010a for further discussion). In this study, the nature run simulates the true state of the atmosphere and the synthetic observations are simulated through the nature run; no current observations are used. Synthetic observations are then assimilated in the control run of the OSSE. The OSSE discussed is composed of the following elements:

1. A nature run produced using a state-of-the-art model which represents the true atmosphere.
2. Synthetic observations which are sampled through the nature run corresponding to the instruments considered.
3. A control run, which yields an alternative representation of the atmosphere, different from the nature run. In this study, the control run is a free model run and includes no assimilated observations. The differences between the control run and the nature run should ideally be similar to the differences between a state-of-the-art model and the real atmosphere.
4. An assimilation run using synthetic observations from the instruments of interest generated from the nature run and the same model setup configuration as for the control run.
5. Assessment of the added value of the instruments of interest by statistical comparison between nature run, control run and assimilation run. In fact, the assessment is based on the differences between the nature run and control run, and between the nature run and assimilation run. If the difference between the assimilation and the nature run is significantly smaller than the difference between the control run and the nature run, we conclude that the instrument of interest has added value.

Note that in the OSSE described in this paper, the future observing system comprises two GEO observing platforms and no other observations (e.g. ground stations). We think this is justified because at this stage we are only interested in providing a reasonably accurate first order estimate of the added value of the proposed observing platform. Furthermore, because of model uncertainties, we focus in providing a comparison of the relative performance of two instruments and not predicting the absolute performance of the two instruments. In a later work, we will extend this study to include a more complete representation of the future observing system, including the ground-based network, and refine our estimate of the added value of the proposed observing platform.

The different elements of the OSSE are described in more detail below.

2.2 The reference atmosphere

The MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmospherique à Grande Echelle) model is used to simulate the nature run. MOCAGE is a three-dimensional CTM for the troposphere and stratosphere (Peuch et al., 1999) which simulates the interactions between the dynamical, physical and chemical processes. It uses a semi-Lagrangian advection scheme (Josse et al., 2004) to transport the chemical species. Its vertical resolution is 47 hybrid levels from the surface up to 5 hPa with a resolution of about 150 m in the lower troposphere increasing to 800 m in the higher troposphere. Turbulent diffusion is calculated with the scheme of Louis (1979) and convective processes with the scheme of Bechtold et al. (2001). The chemical scheme used in this study is RACMOBUS. It

is a combination of the stratospheric scheme REPROBUS (Lefèvre et al., 1994) and the tropospheric scheme RACM (Stockwell et al., 1997). It includes 119 individual species with 89 prognostic variables and 372 chemical reactions.

MOCAGE has the flexibility to be used for stratospheric studies (El Amraoui et al., 2008a) and tropospheric studies (Dufour et al., 2004). It is used in the operational AQ monitoring system in France: Prev'air (Rouïl et al., 2008) and in the pre-operational GMES (Global Monitoring for Environment and Security) atmospheric core service (Hollingsworth et al., 2008).

The model uses 2 nested domains, at 2° over the globe and at 0.5° over Europe, from 32° N to 72° N and from 16° W to 36° E. The nature run simulation covers the period from 1 July 2009 to 1 September 2009. The simulated field for 1 July 2009 has been obtained from a free run with RACMOBUS started from a June climatological initial field. The meteorological analyses of Météo-France, ARPEGE (Courtier et al., 1991) were used to force the dynamics of the model every 6 h. The emission inventory used in the nature run is the inventory provided by TNO (Netherlands Organization for Applied Scientific Research) (Visschedijk and Denier van der Gon, 2005), for the Global and regional Earth-system Monitoring using Satellite and in-situ data (GEMS) project (Hollingsworth et al., 2008); hereinafter noted GEMS-TNO. This inventory has a high spatial resolution of $\sim 8 \times 8\,km^2$, and a temporal resolution of 1 h. It is representative of the year 2003.

2.3 The synthetic observations

In this study, we generate synthetic observations for two nadir infrared GEO platforms. The first one (GEO-TIR) has a SSI ($0.05\,cm^{-1}$) and a Noise Equivalent Spectral Radiance (NESR: $1.00\,nW/(cm^2\,sr\,cm^{-1})$ and $6.04\,nW/(cm^2\,sr\,cm^{-1})$ for the CO and O_3 spectral windows, respectively) dedicated to monitoring CO and O_3 the LmT (Claeyman et al., 2011). The second one (GEO-TIR2) has the same SSI ($0.625\,cm^{-1}$) and NESR ($6.12\,nW/(cm^2\,sr\,cm^{-1})$ and $24.5\,nW/(cm^2\,sr\,cm^{-1})$ for CO and O_3 spectral windows, respectively) as MTG-IRS (Stuhlmann et al., 2005). The spectral window for O_3 is taken between $1000\,cm^{-1}$ to $1070\,cm^{-1}$ and the one for CO is taken between $2085\,cm^{-1}$ and $2185\,cm^{-1}$ for both instruments. The instrument configurations are summarized in Table 1. Considering the high computing cost associated with generating OSSEs, we define a pixel size of $0.5° \times 0.5°$, corresponding to the model spatial resolution and a revisit time of 1 h for both instruments. A resolution of $0.5° \times 0.5°$ for AQ monitoring over Europe is commonly used in operational systems (e.g. Prev'air in France, Honoré et al., 2008). Also, we focus here on O_3 and CO, not on NO_2 and PM that have more spatial variability.

To represent the synthetic observations in the OSSE, we need temperature and water vapour fields and their uncertainty. Following the MTG-IRS retrieval study of Clerbaux et al. (2008a), we assign uncertainties at each vertical level of 0.5 K for temperature and 10 % for water vapour. The number of pixels at $0.5° \times 0.5°$ of an instrument onboard a geostationary platform is very important. In our case, we have to consider about 100 000 profiles per instrument per species per day over the defined domain (Europe). Thus, to study 2 months of synthetic observations for the 2 instruments, we set up a method much faster than using detailed radiative transfer and retrievals models. In the following we define the method and its validation.

Table 1. GEO-TIR and GEO-TIR2 instrument characteristics in the O_3 and CO thermal infrared band: Spectral Sampling Interval (SSI), Noise Equivalent Spectral Radiance (NESR) and Signal to Noise Ratio (SNR) calculated for a surface temperature of 280 K.

Sensor	Band	SSI (cm^{-1})	NESR ($nW/(cm^2\,sr\,cm^{-1})$)	SNR
GEO-TIR	O_3	0.05	6.04	750
GEO-TIR	CO	0.05	1.00	190
GEO-TIR2	O_3	0.625	24.5	180
GEO-TIR2	CO	0.625	6.12	30

Retrievals of LmT O_3 and CO in the infrared strongly depend on the thermal contrast between the surface and the air immediately above it (see e.g. Deeter et al., 2007; Eremenko et al., 2008; Clerbaux et al., 2009). Several parameters (e.g. measurement and temperature error) have to be taken into account to assess the sensitivity of such retrievals. However, among these errors, the smoothing error is the main contributor to the shape of the averaging kernels, which represents the sensitivity of the retrieval to the true atmosphere at different altitudes. From these averaging kernels, one can deduce for example the surface sensitivity of the retrieval. Because of the strong dependence of the averaging kernels on the thermal contrast, we construct a look-up table containing the specific values of the thermal contrast and their corresponding averaging kernels. In addition, to refine the method, we include in the look-up table other errors such as the measurement error and the temperature error, assuming a linear regime between thermal contrast and retrieval. This look-up table is built using the forward model KOPRA (Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm) (Stiller et al., 2002). The retrieval system KOPRA-fit (Höpfner et al., 1998), based on the Tikhonov-Phillips regularization is also employed (Tikhonov, 1963; Phillips, 1962). We generate the averaging kernels and the corresponding covariance matrix error for several thermal contrast values between −20 K and 20 K with a step of 0.2 K representing a total number of 201 values for each instrument configuration. The range of thermal contrast values has been established using statistics on the thermal contrast found in the temperature analyses of the current version of the ARPEGE global

Table 2. Correlation coefficient, standard deviation (%) and bias (%) between observations generated with the look-up tables and observations generated with KOPRA-fit, calculated with respect to observations generated with KOPRA-fit for O_3 (1st and 2nd columns) and CO (3rd and 4th columns) and for the configurations of GEO-TIR (2nd and 4 thcolumns) and GEO-TIR2 (1st and 3rd columns). These statistics have been calculated for data with altitudes between the surface and 10 km.

	GEO-TIR O_3	GEO-TIR2 O_3	GEO-TIR CO	GEO-TIR2 CO
Corr. Coeff.	0.99	0.99	0.99	0.93
Stdev (%)	4.4	2.3	1.7	4.8
Bias (%)	−0.8	1.3	0.1	−0.5

model. This method allows us to provide quickly (with a speed up factor of more than 70 in terms of CPU) the required parameters (errors and averaging kernels) that correspond to any thermal contrast. From these parameters we reconstruct the different trace gas profiles using the quantity (Rodgers, 2000):

$$x_{\mathrm{rsim}} = \mathbf{A}\, x_{\mathrm{t}} + (\mathbf{I} - \mathbf{A})\, x_{\mathrm{a}} + \varepsilon \quad (1)$$

with x_{rsim} the simulated retrieved profile, x_{t} the true profile corresponding to the calculated profile (nature run) from MOCAGE CTM, x_{a} the a priori profile – a climatology over Europe calculated from the MOCAGE model and $\mathbf{A}$ the averaging kernel matrix. ε is defined as a random Gaussian error with a standard deviation corresponding to the square root of the diagonal elements of the error covariance matrix. Note that these quantities are defined in terms of ln(VMR), where VMR stands for the volume mixing ratio. For further details on the averaging kernel shapes and covariance matrix errors of GEO-TIR and GEO-TIR2 the reader should refer to Claeyman et al. (2011).

A similar method was used in Edwards et al. (2009) to simulate CO infrared observations using 3 different averaging kernel sets. We validate the method by comparing the values from the look-up table and the results calculated with the comprehensive KOPRA-fit method. The details of the statistics obtained for the validation exercise for both GEO-TIR and GEO-TIR2 and for observations at altitudes between the surface and 10 km are shown in Table 2. The statistics show a very good agreement between the values provided by the look-up table and the KOPRA-fit method. All the correlation coefficients are greater than 0.9 for both O_3 and CO, and for the two instrument configurations. In addition, standard deviations (between 1.7 % and 4.8 %) and biases (between −0.4 % and 1.3 %) are small. Moreover, the histograms of the relative difference between the look-up table and KOPRA-fit (not shown) show a Gaussian-like shape around the value 0 confirming the validity of the simplified approach.

We then use the look-up table to generate observations for two instrument configurations (GEO-TIR and GEO-TIR2) over the two months of the study. To account for cloudy scenes, cloud estimates from meteorological ARPEGE analyses are used to assign a cloud fraction to the observation pixels. Pixels with a cloud fraction greater than 0.5 are filtered out. The vertical grid is provided by the retrieval, with a step of 1 km from the surface to 39 km. Since we are interested in the relative added value, we use for both instruments the same approximations to generate the observations. This makes the problem tractable, and is not expected to change the results.

2.4 The assimilation scheme

The assimilation system used in this study is MOCAGE-PALM (Massart et al., 2005). The assimilation module is implemented within the PALM framework (Buis et al., 2006). The used assimilation technique is the 3D-FGAT (First Guess at Appropriate Time, Fisher and Andersson, 2001). This technique is a compromise between the 3D-Var (3d-variational) and the 4D-Var (4d-variational) methods. It has been validated during the assimilation of ENVISAT data project (ASSET, Lahoz et al., 2007) and has produced good quality results compared to independent data and other assimilation systems (Geer et al., 2006). Further details on the assimilation system can be found in Massart et al. (2009), El Amraoui et al. (2008b) and Claeyman et al. (2010). We use in this study an assimilation window of 1 h.

2.5 The experiments

To study the sensitivity of the OSSEs to various key parameters, we perform several experiments summarized in Table 3. For these simulations, we also used MOCAGE but with different degraded configurations in order to have an alternative representation of the atmospheric composition, a priori less realistic than the nature run. For all experiments (except the nature run), we perform 3 simulations: the control run without data assimilation, the assimilation run with assimilation of GEO-TIR and the assimilation run with the assimilation of GEO-TIR2.

The first sensivity test concerns the input meteorological forcings. In the nature run we use the ARPEGE analysis every 6 h whereas in the control run and assimilation run we use instead 48 h forecasts every 6 h. It is denoted hereafter EXP1.

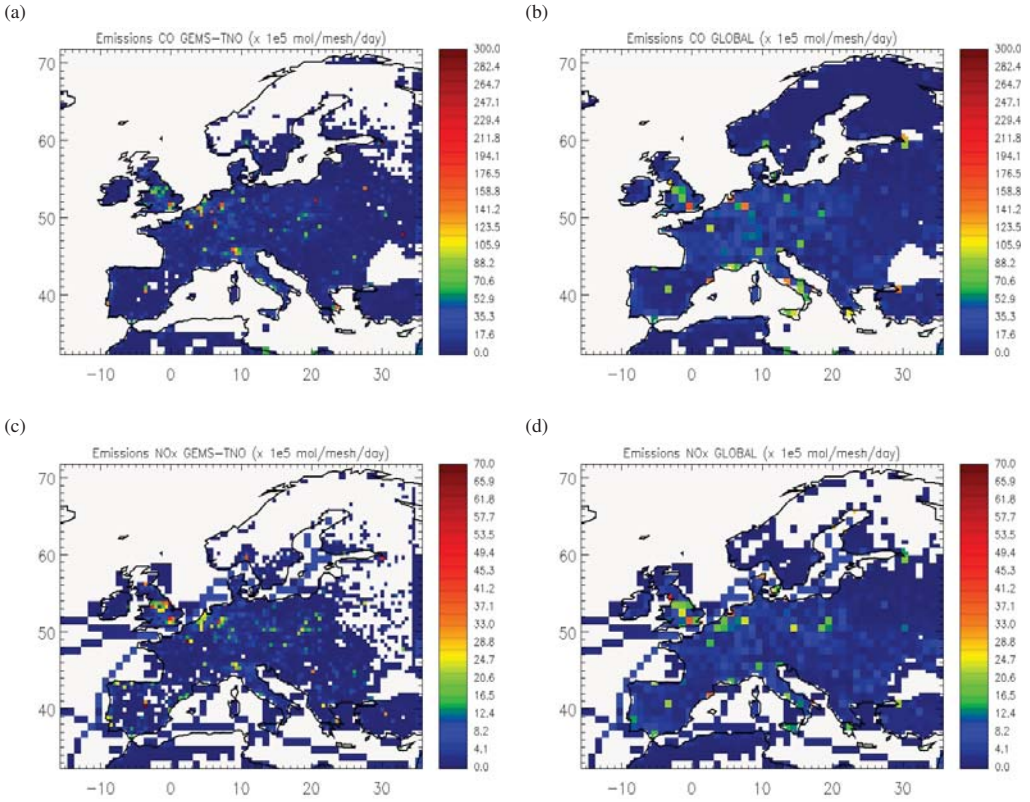


Fig. 1. Total CO emitted by day and by model mesh (0.5°) over Europe on 6 July 2009 with GEMS-TNO emission inventory **(a)** and global emission inventory **(b)**. **(c)** and **(d)** are as **(a)** and **(b)** but for $NO_x = NO + NO_2$.

In a second sensitivity test, we change the emission inventory. Instead of the detailed GEMS-TNO inventory used in the nature run, we use a global inventory where emissions are given as a monthly mean for biomass burning and a yearly mean for other sources (Dentener et al., 2006) representing the year 2000 (EXP2). Both inventories use different daily and monthly emission factors. Figure 1 shows the emission map of CO and NO_x ($NO + NO_2$, an O_3 precursor), emitted over Europe on 6 July 2009 according to both inventories. In the GEMS-TNO inventory, emissions show a higher variability than in the global inventory. For example, over Paris or over Madrid the maximum values are higher in the GEMS-TNO inventory, whereas in Northern Europe or in Spain over rural areas, CO and NO_x emissions are lower in the GEMS-TNO inventory. However, both inventories show the same emissions of NO_x from ships. In Fig. 2, the emission diurnal cycle is shown for CO and NO_x and emissions are accumulated over Europe for each hour of 6 July 2009. Generally, more CO and NO_x are emitted by the global inventory than by the GEMS-TNO inventory but locally over large European cities the opposite is the case. Three peaks are observed in the global inventory at 06:00, 12:00 and 18 UTC for both CO and NO_x emissions whereas only 2 are observed at 08:00 and 17:00 UTC for CO, and at 08:00 and 18:00 UTC for NO_x in the GEMS-TNO inventory.

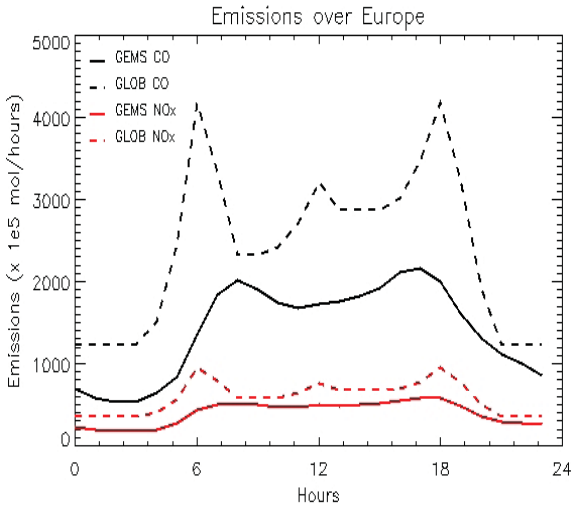


Fig. 2. Diurnal cycle of CO (black line) and ozone (red line) total emissions over Europe for the GEMS-TNO emission inventory (solid line) and for the global emission inventory (dashed line) for 6 July 2009.

Table 3. Description of the different experiments. The NR experiment represents the nature run or the true atmosphere. The experiments with a change in the meteorology, emissions and initial condition are referred as EXP1, EXP2 and EXP3, respectively. The experiments with a change in the meteorology and emission and initial condition are referred as EXP4. The (a), (b) and (c) extensions represent the experiments with no assimilation, with assimilation of GEO-TIR2 and with assimilation of GEO-TIR, respectively. See text for further details.

Experiment	Meteorology	emissions	Initial condition	Assim
NR	ARPEGE analysis	GEMS	free run	No
EXP1a	ARPEGE forecast 48 h	GEMS	free run	No
EXP1b	ARPEGE forecast 48 h	GEMS	free run	GEO-TIR2
EXP1c	ARPEGE forecast 48 h	GEMS	free run	GEO-TIR
EXP2a	ARPEGE analysis	GLOBAL	free run	No
EXP2b	ARPEGE analysis	GLOBAL	free run	GEO-TIR2
EXP2c	ARPEGE analysis	GLOBAL	free run	GEO-TIR
EXP3a	ARPEGE analysis	GEMS	changed every week	No
EXP3b	ARPEGE analysis	GEMS	changed every week	GEO-TIR2
EXP3c	ARPEGE analysis	GEMS	changed every week	GEO-TIR
EXP4a	ARPEGE forecast 48 h	GLOBAL	changed every week	No
EXP4b	ARPEGE forecast 48 h	GLOBAL	changed every week	GEO-TIR2
EXP4c	ARPEGE forecast 48 h	GLOBAL	changed every week	GEO-TIR

In the third sensitivity test, the initial conditions are modified (EXP3). In the nature run, the initial condition from 1 July 2009 is provided from a previous free run. For the control run and the assimilation runs, we change the initial condition every week by taking the field from the nature run one week before (e.g. the initial field from 1 July 2009 in the control run and assimilation runs is provided by the field from 25 May 2009 from the nature run). We repeat this change every week to keep a significant difference between the nature run and the control run (see Sect. 3); after one week the influence of the initial condition is very low in the LmT on O_3 and CO concentrations (not shown). This modification introduces discontinuity in the O_3 and CO time-series, and this effect is considered in the next section.

The last experiment (EXP4) involves all of the 3 sensitivity tests (meteorology, emissions and initial condition). This experiment contains the main errors encountered in an AQ model (e.g. Menut and Bessagnet, 2010), except the chemical scheme and the transport scheme which are kept the same for all experiments presented here. Although this may impact the results of the study, we consider that for this OSSE, the nature run and the control run, and the nature run and the assimilation runs have enough realistic differences to make the experiments meaningful (see Sect. 3).

Table 4 presents the correlation, the bias and the RMS between the 4 control runs (EXP1a, EXP2a, EXP3a and EXP4a) and the nature run averaged over 2 months over Europe (see domain in Fig. 1). The 4 sensitivity tests generate different errors: EXP1a is characterized by high RMS ($\sim$10 % for O_3 and $\sim$7 % for CO) and low bias (0.19 % for O_3 and -1.02 % for CO); EXP2a by high bias ($\sim$8 % for O_3 and CO), high correlation (>0.9) and low RMS ($\sim$5 %); EXP3a by a low correlation (<0.7), high RMS ($\sim$13 % for O_3 and $\sim$8 % for CO) and low bias ($\sim$2 %). EXP4a mixes up all these effects and is characterized by high bias ($\sim$7 %), high RMS ($\sim$17 % for O_3 and $\sim$11 % for CO) and low correlation ($\sim$0.5). The 4 experiments have thus different characteristics and can bring information on the capabilities of GEO-TIR and GEO-TIR2 to constrain several parameters in the LmT.

Table 4. Correlation, bias and RMS in % calculated for ozone and CO LmT column between the nature run and the control run (a), between the nature run and GEO-TIR2 assimilation run (b) and between the nature run and the GEO-TIR assimilation run (c) for the 4 experiments averaged over 2 months (July and August 2009).

	Ozone			CO		
Experiment	Corr.	Bias (%)	RMS (%)	Corr.	Bias (%)	RMS (%)
EXP1a	0.793	0.19	10.42	0.780	−1.02	6.78
EXP1b	0.800	1.84	10.41	0.814	−0.08	6.27
EXP1c	0.823	0.58	9.64	0.849	−0.10	5.54
EXP2a	0.935	8.60	5.31	0.919	8.46	5.22
EXP2b	0.936	8.41	5.22	0.934	6.24	4.45
EXP2c	0.948	5.74	4.56	0.935	3.59	4.12
EXP3a	0.693	2.07	12.98	0.693	1.73	8.13
EXP3b	0.715	1.66	12.56	0.757	1.59	7.13
EXP3c	0.798	1.26	10.48	0.841	0.75	5.65
EXP4a	0.528	7.78	17.27	0.545	7.11	11.41
EXP4b	0.554	7.16	16.74	0.616	6.23	10.28
EXP4c	0.650	5.77	14.51	0.732	3.91	8.16

2.6 Statistical analysis

The impact of the observations (GEO-TIR and GEO-TIR2) is evaluated by comparing the results from the control run and the assimilation runs with the "truth" represented by the nature run. To provide a degree of robustness to our OSSEs, we perform significance tests to check at the 0.95 and 0.99 confidence limit if differences between the control run and the nature run and differences between the assimilation runs and the nature run are significant, as was done in Lahoz et al. (2005). The null hypothesis is that the means of the differences between the control run and the nature run and the differences between the assimilation runs and the nature run are the same. The datasets have sufficient data to assume a normal distribution.

We used the two-sample hypothesis z-test defined as:

$$Z = \frac{\overline{|\mathrm{CR} - \mathrm{NR}|} - \overline{|\mathrm{AR} - \mathrm{NR}|}}{\sqrt{\frac{\sigma^2_{\mathrm{CR-NR}}}{N} + \frac{\sigma^2_{\mathrm{AR-NR}}}{N}}} \quad (2)$$

where NR is the nature run dataset, CR is the control run dataset, AR is the assimilation run dataset, σ is the root-mean square (RMS) and N is the number of grid points. Vertical lines indicate absolute value.

Furthermore, in order to quantify the GEO-TIR and GEO-TIR2 added values, we compute indicators commonly used in AQ modelling evaluation: absolute difference, RMS difference and temporal correlation. For the protection of public health, the WHO (World Health Organization, 2005; Krzyzanowski and Cohen, 2008) has established a threshold at 100 µg m^{-3} of O_3 concentrations for the daily maximum of a 8-h running average. We use this threshold to calculate 3 contingency tables: the percentage of good detections (GD), the percentage of correct analyses above threshold (GD+) and the percentage of false alarms (FA) calculated as follows:

$$\mathrm{GD} = 100 \times \frac{(\mathrm{NR1_AR1} + \mathrm{NR0_AR0})}{N} \quad (3)$$

$$\mathrm{GD+} = 100 \times \frac{\mathrm{NR1_AR1}}{\mathrm{NR1}} \quad (4)$$

$$\mathrm{FA} = 100 \times \frac{\mathrm{NR0_AR1}}{\mathrm{AR1}} \quad (5)$$

where NR1_AR1 represents the number of grid points where the nature run is greater than 100 µg m^{-3} and the assimilation run (or control run) is above 100 µg m^{-3}; NR0_AR0 represents the number of grid points where the nature run is less than 100 µg m^{-3} and the assimilation run (or control run) is less than 100 µg m^{-3}; N is the number of all grid points; NR1 represents the number of grid points where the nature run is greater than 100 µg m^{-3}; NR0_AR1 represents the number of grid points where the nature run is less than 100 µg m^{-3} and the assimilation run (or control run) is greater than 100 µg m^{-3}; and AR1 represents the number of grid points where the assimilation run (or control run) is greater than 100 µg m^{-3}.

Table 5. Correlation coefficients (2nd column), biases (3rd column) and root-mean square (4th column) in µg m^{-3} and in % (in brackets) between ground based station observations and MOCAGE nature run for France from 1 July 2009 to 31 August 2009 computed on an hourly mean basis.

Species	Corr.	Bias	RMS
Ozone	0.76	12.0 (∼18 %)	18.2 (∼26 %)
CO	0.63	19.9 (∼17 %)	59.9 (∼52 %)

3 Results

3.1 Evaluation of the nature run

We compare the nature run provided by the MOCAGE model to O_3 and CO ground-based station observations over France from 1 July 2009 to 31 August 2009, to verify that the nature run is representative of the "true atmosphere".

Figure 3 shows the time-series of CO (panels a and b) and O_3 (panels e and f) simulated by MOCAGE (nature run) and observed by ground stations over France in July and August 2009. CO from the nature run is generally higher than CO from ground stations. Some maxima are well represented (e.g. 28 and 29 July 2009), some maxima are overestimated (e.g. 10 August 2009) and some other are underestimated (e.g. 19 August 2009). However, most importantly, the CO concentrations simulated in the nature run are in the same range of values (globally between 50 and 500 µg m^{-3}) as those observed by ground stations, and show similar temporal variability. O_3 concentrations simulated in the nature run are also globally overestimated compared to ground measurements. However, the diurnal cycle of production and destruction of O_3 is well represented in the nature run. The minima of O_3 in the nature run are generally overestimated, except over particular periods, where the nature run and the observations show a good agreement (e.g. from 28 July to 1 August; from 5 August to 6 August or from 16 August to 20 August).

Table 5 shows the correlation, the bias and the RMS between the nature run and the ground stations over France on a hourly mean basis for O_3 and CO. The correlation coefficients are 0.76 and 0.63 for O_3 and CO, respectively. For both O_3 and CO a positive bias is observed (12 µg m^{-3} (∼18 %) and 19.9 µg m^{-3} (∼17 %), respectively). The RMS is larger for CO (59.9 µg m^{-3} ∼52 %) than for O_3 (18.2 µg m^{-3} ∼26 %) likely because CO concentrations have a great variability and can be locally very high at the surface (>1000 µg m^{-3}).

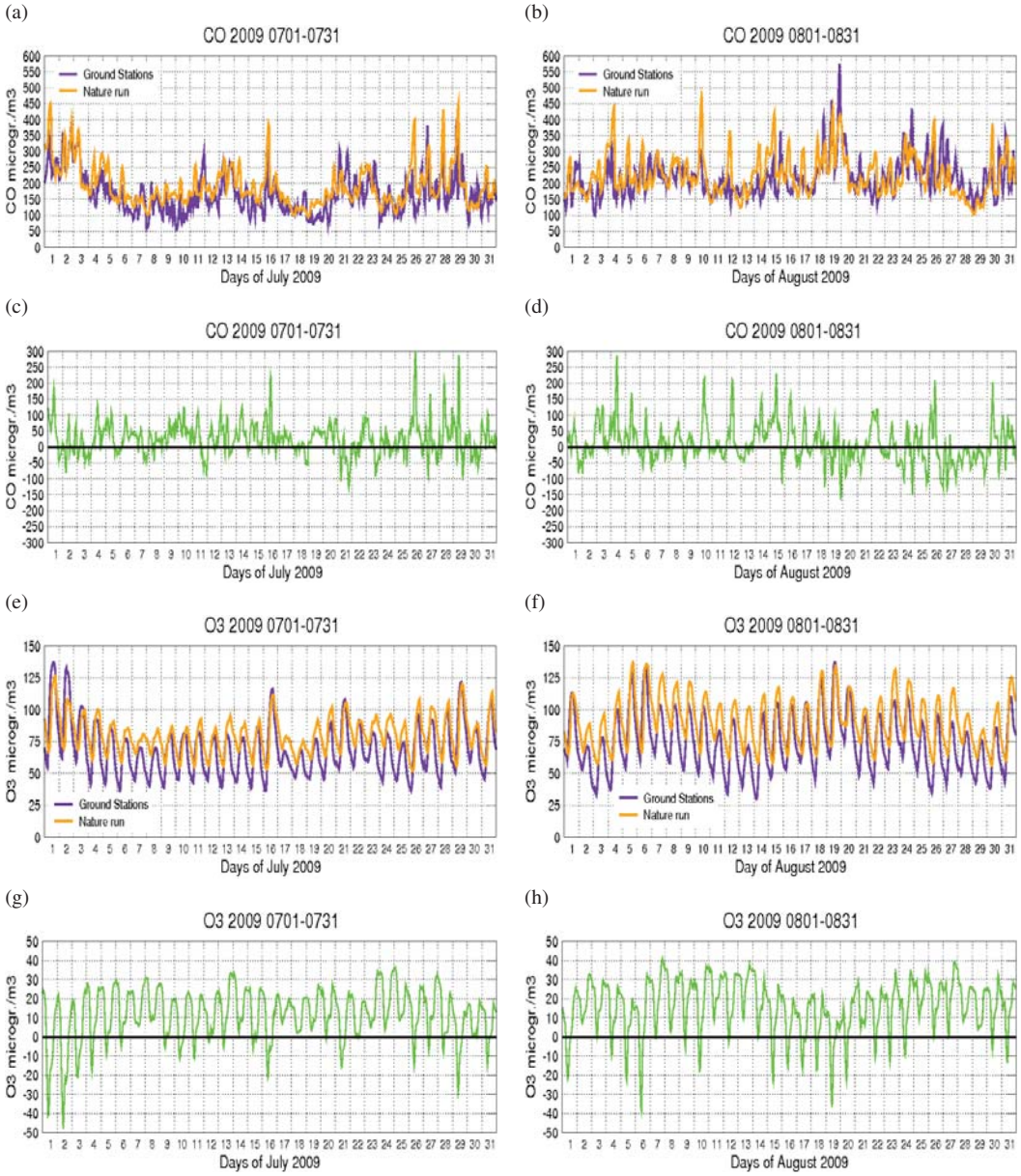


Fig. 3. Timeseries of the CO concentrations from the nature run (orange) and measured by ground based stations (purple), averaged each hour over France in July 2009 **(a)** and August 2009 **(b)** and respective differences between the nature run and the surface observations – **(c)** and **(d)**. **(e)**–**(h)** are as **(a)**–**(d)** but for O_3. For CO, all types of ground based stations are considered because of their limited numbers, whereas for O_3 only "rural" ground stations are considered in order to be closer to the model resolution of $0.5° \times 0.5°$.

Despite the fact that the simulations are performed using a horizontal resolution of $0.5° \times 0.5°$, the results concerning the comparison between ozone surface observations and the nature run over France are comparable to those commonly observed in the current state-of-the art AQ forecasting. For example, Pagowski et al. (2006) computed bias, RMS and correlation of hourly concentration forecasts over the Eastern USA and Southern Canada for July and August 2004. They used seven AQ models compared to hourly surface ozone measurements over 350 sites. The bias ranges between 10.6 and 62.2 $\mu g\,m^{-3}$, the RMS between 33.0 and 74.9 $\mu g\,m^{-3}$ and the correlation between 0.55 and 0.72. In another study using the French AQ forecasting system Prev'air, Honoré et al. (2008) found a bias for the ozone hourly forecasts of 12.3 $\mu g\,m^{-3}$, a RMS of 28.2 $\mu g\,m^{-3}$ and a correlation of 0.67. Finally, the scores found for the nature run are in the same range of values than Pagowski et al. (2006) and Honoré et al. (2008) which indicates that the nature run can be assumed to be representative of the "true atmosphere" over the European domain.

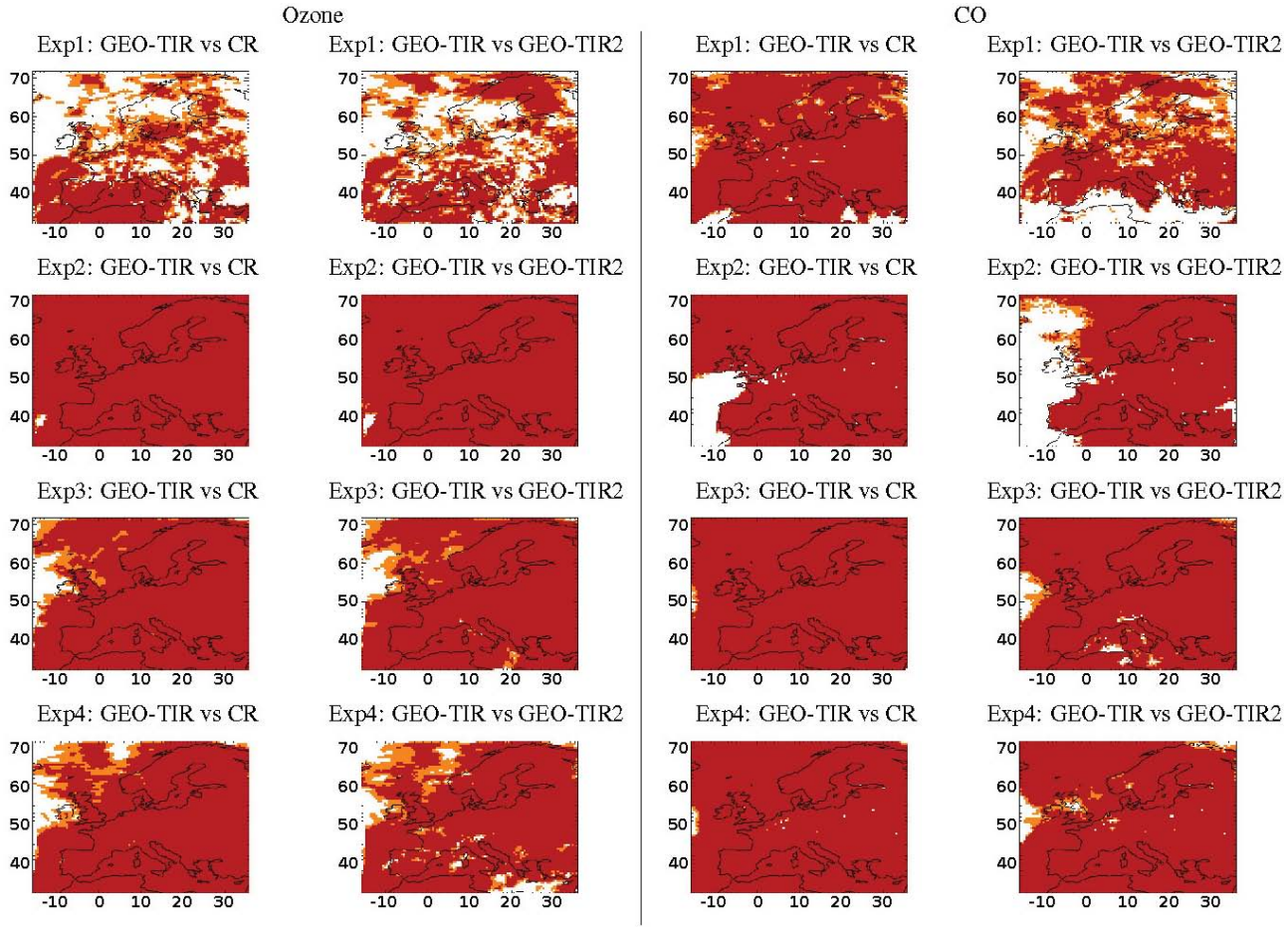


Fig. 4. 1st and 3rd column: z-test where the absolute difference between GEO-TIR and the NR, and between the CR and the NR are different at the 0.95 confidence level (orange and red) and 0.99 confidence level (red) for Ozone and CO LmT column, respectively. 2nd and 4th: same as 1st and 3rd column but for the absolute difference between GEO-TIR and the NR, and between the GEO-TIR2 and the NR. The 1st row is for EXP1 (change in the meteorology), the 2nd row is for EXP2 (change in the emissions), the 3rd row is for EXP3 (change in the initial condition) and the 4th row is for EXP4 (change in the meteorology, in the emissions and in the initial condition). See text for further details.

3.2 Spatial distribution of the impact of geostationary infrared measurements in the lowermost troposphere

Figure 4 presents the area of Europe where differences between various experiments are significant at the 0.95 and 0.99 confidence limit for the O_3 and CO LmT columns using the two-sample hypothesis z-test (Sect. 2.6). This test assesses whether the control run and the GEO-TIR assimilation run; and the GEO-TIR2 assimilation run and the GEO-TIR assimilation run, are significantly different (with a confidence limit of 95 and 99 %). Figure 4 shows that EXP2, EXP3 and EXP4 have large areas of significance at the 0.99 confidence limit (red areas). Areas which are not significant at the 0.99 confidence limit nor at the 0.95 confidence limit are generally over sea, which is less important for AQ purposes as we are interested in highly populated areas. However, EXP1 shows less significant areas at the 0.95 confidence limit than other experiments. All the statistics presented hereafter are for a period of 2 months (July and August 2009). Statistical differences almost everywhere indicate that the set ups are very different.

Our objective is to have a statistically robust evaluation of the added value of GEO-TIR synthetic observations for air quality hindcasts. However, it will be difficult to substantiate the reasons for the spatial distribution of the OSSE increments averaged over two months; indeed, over such a period, there is a combination of different conflicting effects explaining variations of the strength of the constraint brought by GEO-TIR and GEO-TIR2 synthetic observations. These can only be understood by studying cases on a day-by-day basis, which is outside the scope of this paper.

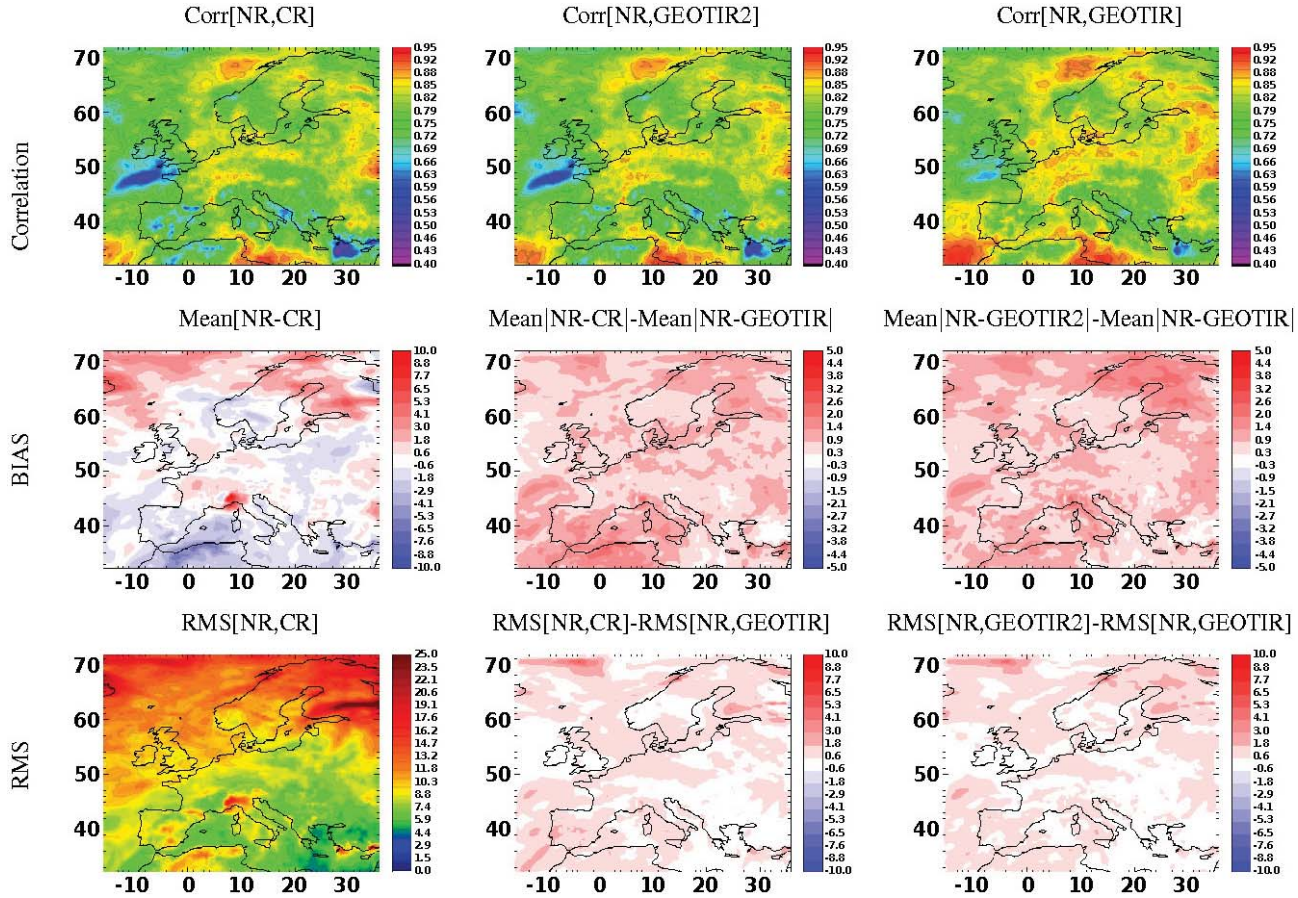


Fig. 5. Correlations (upper panel), absolute difference (middle panel) and root-mean square (lower panel) between the nature run (NR) and the control run (EXP1a) for the O_3 LmT column (1st column) for the experiment with a change in the meteorology (EXP1). For the 2nd and 3rd rows: (i) the 2nd column shows the difference between the nature run and the assimilation of GEO-TIR (EXP1c); and between the nature run and EXP1a; (ii) the 3rd column shows the difference between the nature run and EXP1c; and between the nature run and the assimilation of GEO-TIR2 (EXP1b). Red colours indicate that the assimilation of GEO-TIR improves the correlation (1st column) and reduces the absolute difference (2nd row) or the RMS (3rd row) whereas blue colours indicate a deterioration by using GEO-TIR.

3.2.1 Sensitivity study on meteorology: experiment 1

We performed a sensitivity study using different meteorology for the control run (EXP1a) and assimilation runs (EXP1b and EXP1c) compared to the ones used for the nature run, to determine the capability of GEO-TIR to reduce differences generated by the meteorology used in our analyses. Figure 5 shows the correlation, the bias and the RMS for the O_3 LmT column between the nature run and the control run and the improvement added by the assimilation of GEO-TIR compared to the control run and to the assimilation run for GEO-TIR2.

The correlation between the nature run and the control run for O_3 ranges between 0.5 and 0.9. The added value of GEO-TIR (red colours) is mainly over Spain, North Africa and the Atlantic Ocean where the results are significant at the 0.95 confidence limit. The assimilation of GEO-TIR increases the correlation from ∼0.7 in the control run to ∼0.8 in the GEO-TIR assimilation run, mainly over the Atlantic ocean and over Spain. Similar results are observed concerning the added value of the GEO-TIR assimilation run compared to the GEO-TIR2 assimilation run: GEO-TIR is closer to the nature run. The bias between the nature run and control run for O_3 is low (between −8 % and 8 %) and mainly negative over the Mediterranean Basin and positive over Northern Europe. The GEO-TIR assimilation run reduces the bias over the Mediterranean Basin and over the Nordic countries, which are regions with significance at the 0.99 confidence limit compared to the control run and to the GEO-TIR2 assimilation run. The RMS between the nature run and the control run is between 4 and 25 % for O_3. The GEO-TIR assimilation run reduces globally the RMS to 5 % over sea and land areas.

Figure 6 shows the same diagnostics but for the CO LmT column. The correlation between the nature run and the control run for CO ranges also between 0.5 and 0.9. The positive

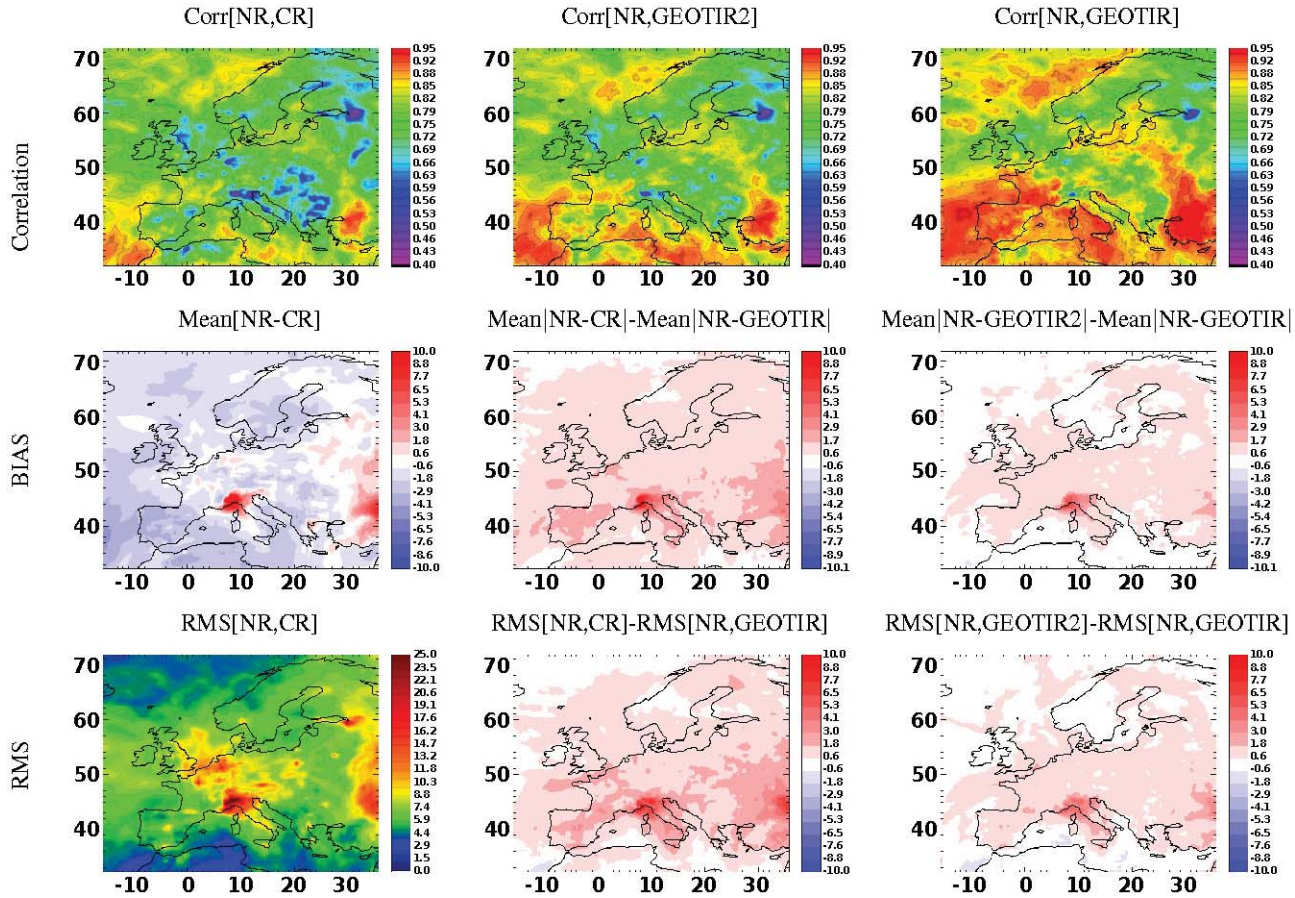


Fig. 6. Same as Fig. 5 (EXP1) but for CO.

impact of the GEO-TIR assimilation run on the control run is bigger than for O_3 with a significant improvement of the correlation (e.g. from 0.7 between the nature run and the control run to 0.85 between the nature run and the GEO-TIR assimilation run over Spain and France, or from 0.85 between the nature run and the control run to 0.95 between the nature run and the GEO-TIR assimilation run over Turkey). The assimilation of GEO-TIR2 also improves the correlation between the nature run and GEO-TIR2 assimilation run compared to the correlation between the nature run and the control run (e.g. over the Atlantic ocean or over Turkey) but the impact of GEO-TIR is higher. The bias between the control run and the nature run for CO is low and mainly negative ($\sim -3\,\%$) except over the Po valley where the bias is high and positive (15 %). This large difference between the control run and the nature run over the Po Valley can be explained by differences in the winds since the meteorology in the nature run is significantly different to that in the control and assimilation runs. In the control run, pollutants are trapped in the Po Valley which is surrounded by the Alps whereas in the nature run, pollutants are transported by the winds. For this particular event, the GEO-TIR assimilation run reduces considerably the bias observed compared to the control run and to the GEO-TIR2 assimilation run, and does this to a lesser extent over France and Eastern Europe. The RMS between the control run and the nature run for CO is $\sim$7 % but can reach 25 % over the Po valley. The GEO-TIR assimilation run reduces globally the RMS observed in the control run and in the GEO-TIR2 assimilation run ($\sim$2 %), with a particular emphasis on the Po valley where the RMS added value is $\sim$11 % compared to the control run and $\sim$7 % compared to the GEO-TIR2 assimilation run. Note that results observed over the Po valley for CO are significant at the 0.99 confidence limit.

In this experiment, we have analysed the capabilities of both instruments to correct errors in the meteorology. The resulting control run generally shows low biases for both CO and O_3 but impacts the correlation and the RMS. For this particular experiment, the GEO-TIR assimilation run improves considerably the RMS and locally the bias and the correlation.

3.2.2 Sensitivity study on emissions: experiment 2

In this experiment (EXP2), we use another emission inventory in the control run (EXP2a) and assimilation runs with a coarser spatio-temporal resolution than the one used in the

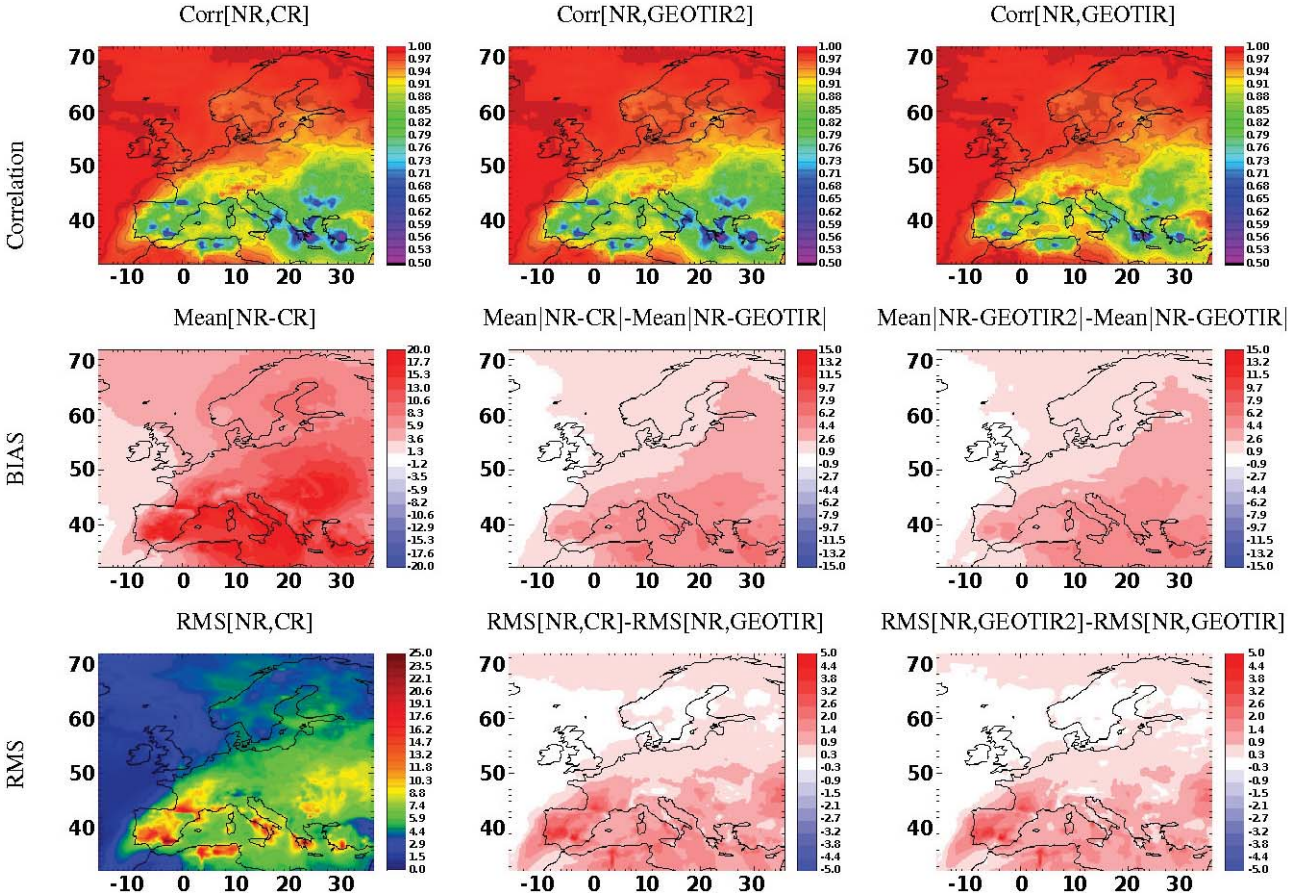


Fig. 7. Same as Fig. 5 but for the experiment with a change in the emissions (EXP2).

nature run (see Sect. 2.5). Figure 7 shows also the correlation, the bias and the RMS for the O_3 LmT column between the nature run and the control run and the improvement added by the assimilation of GEO-TIR (EXP2c) compared to the control run and to the assimilation run for GEO-TIR2 (EXP2b).

The correlation between the nature run and control run is very high for O_3 (>0.95), especially over sea where both inventories use the same emissions. The impact of the GEO-TIR assimilation on the correlation coefficient is relatively small compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run and is located over the Eastern Mediterranean Basin where the correlation between the nature run and the control run is lower (~ 0.7). However, the bias between the nature run and control run is positive and high (up to 20 %) because emissions of NO_x and CO are higher in the inventory used in the control run and assimilation runs (Fig. 2). The impact of the GEO-TIR assimilation run is very high and can reduce by a factor of 2 the bias over the Mediterranean Basin both for the control run and the GEO-TIR2 assimilation run. The RMS between the nature run and control run for O_3 is very low over sea (less than 4 %), but over land it can reach 15 % (e.g. Spain, South West of France, Northern Africa). The GEO-TIR assimilation run reduces by $\sim$1 % the RMS compared to the control run and to the GEO-TIR2 assimilation run over Southern Europe (except over the Atlantic ocean) but locally over specific areas (e.g. over Spain), GEO-TIR can bring an improvement of 5 %. Note that the significance is at the 0.99 confidence limit almost everywhere for O_3 for this experiment (except over a small region over the Atlantic ocean, see Fig. 4).

Figure 8 shows similar diagnostics to Fig. 7 but for CO. As for O_3, the correlation coefficient between the control run and the nature run is very high which leads to a very low impact of GEO-TIR compared to the control run and to the GEO-TIR2 assimilation run. This impact can locally be slightly negative (e.g. over the Atlantic ocean). This negative impact may come from the observation errors, which are discussed in detail in Claeyman et al. (2011) for an instrument similar to GEO-TIR. As for O_3, the bias between the control run and the nature run is very high and can reach 20 % as the inventory used in the control run and assimilation runs emitted more CO, but only locally. Over large cities (e.g. Paris, Turin, Amsterdam, Saint Petersburg, consistent with the emission map in Fig. 1), the results for CO in the LmT reflect differences between the global and the

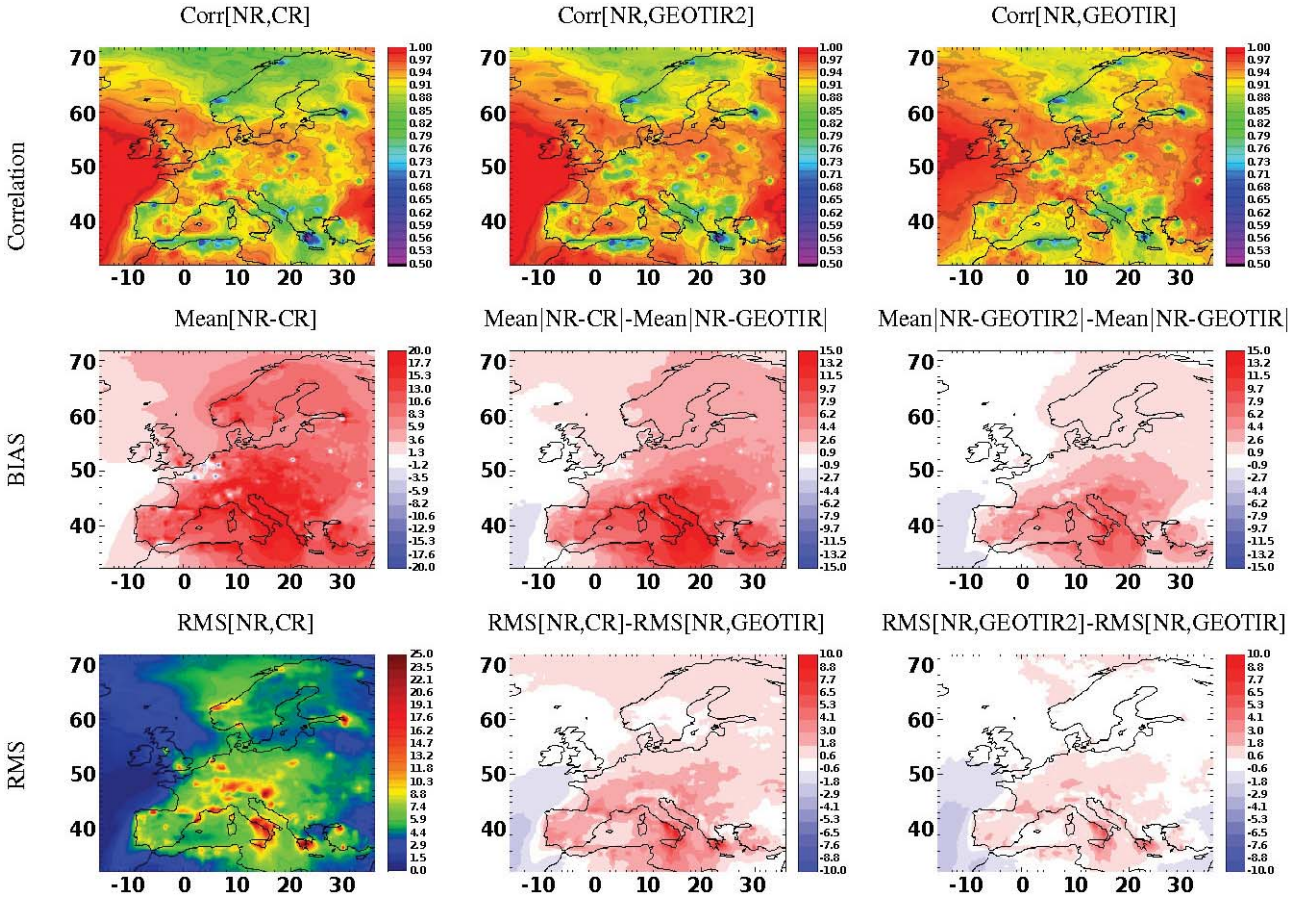


Fig. 8. Same as Fig. 7 (EXP2) but for CO.

GEMS-TNO emissions inventories. The GEO-TIR assimilation run reduces the overall bias to 15 % and 10 % over the Mediterranean Basin compared to the control run and GEO-TIR2 assimilation run, respectively, but brings little improvement over these large cities where CO concentrations in the control run and GEO-TIR2 assimilation run are low. The RMS between the nature run and the control run is ∼7 % over land and very low over the Atlantic ocean, but can locally reach 20 % (e.g. South Italy, Greece). GEO-TIR improves also the RMS compared to the control run and especially over land and over the Mediterranean Basin compared to the GEO-TIR2 assimilation run. The RMS of GEO-TIR degrades over the Atlantic ocean (where significance is not at the 0.95 confidence limit) but also in South East Europe compared to GEO-TIR2 assimilation run where the RMS between the control run and the nature run is low. This can also be explained by the GEO-TIR observation errors.

In this experiment, we analyse the capability of the 2 observing systems to correct errors in the emissions. This experiment shows that GEO-TIR is able to considerably reduce the global bias observed in the control run in the LmT for both O_3 and CO and can also bring significant skill compared to GEO-TIR2.

3.2.3 Sensitivity study on the initial condition: experiment 3

In this experiment (EXP3), we change the initial condition every week (see Sect. 2.5) in the control run (EXP3a) and in the assimilation runs to quantify the capability of GEO-TIR (EXP3c) and GEO-TIR2 (EXP3b) to correct for these differences. Figure 9 shows that the correlation for the O_3 LmT column between the nature run and the control run ranges between 0.3 (e.g. over Atlantic Ocean or Turkey) and 0.9 (e.g. over Italy). The correlation coefficient for O_3 is lower than in previous experiments (EXP1 and EXP2) since the artificial modification of the initial condition every week brings down considerably the correlation. The GEO-TIR assimilation run improves the correlation compared to the control run and to the GEO-TIR2 assimilation run, both over land and sea. This positive impact of GEO-TIR can improve the correlation (e.g. from 0.3 between the nature run and the control run and 0.5 between the nature run and GEO-TIR2 assimilation run up to 0.8 between the nature run and the GEO-TIR assimilation run over Turkey). The bias between the control run and the nature run for O_3 is low in the Southern part of Europe and is mainly positive over the Atlantic Ocean and

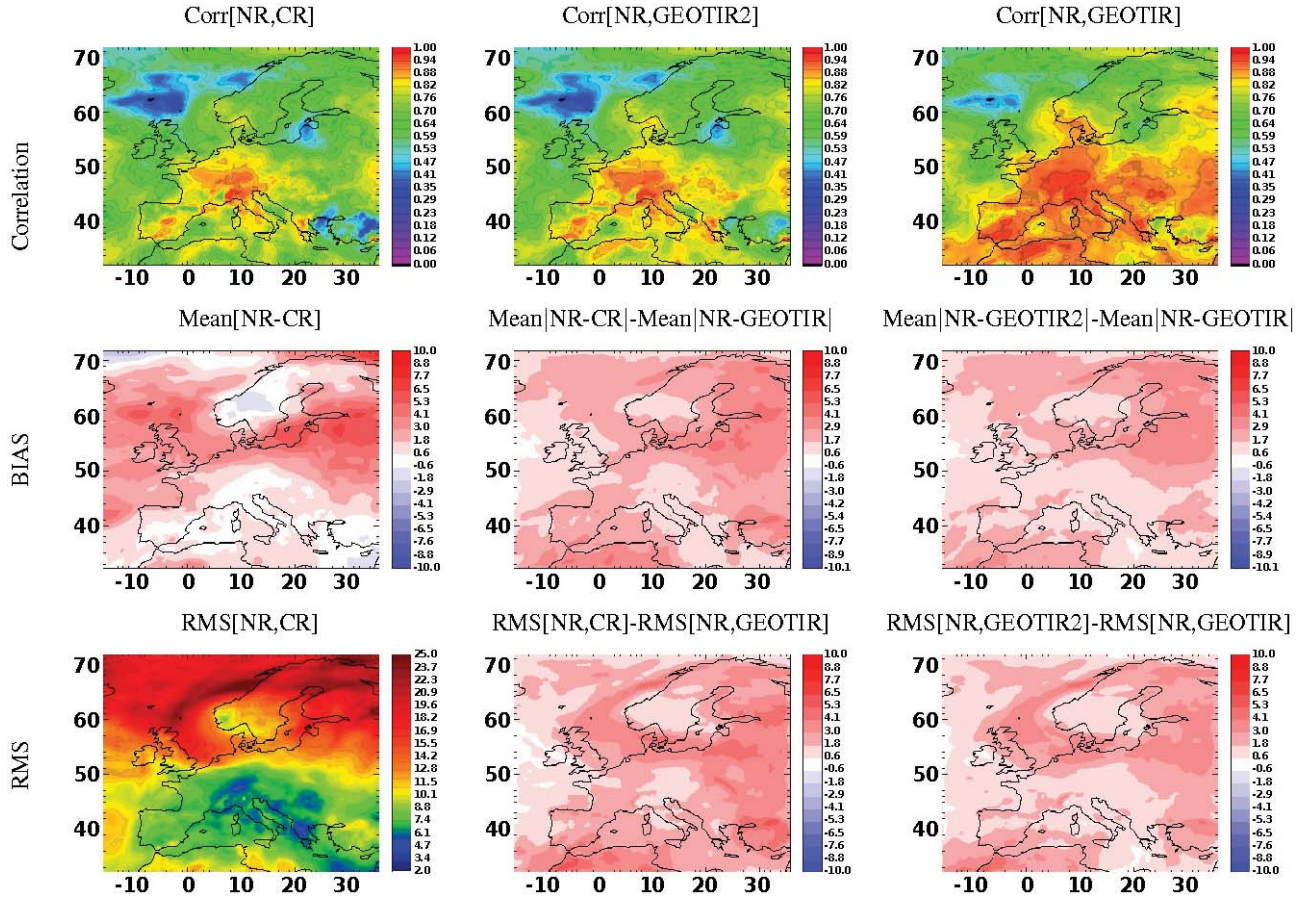


Fig. 9. Same as Fig. 5 but for the experiment with a change in the initial condition (EXP3).

over Russia. The added value of GEO-TIR compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run is overall low but positive (∼1 %) and is higher over Russia where the significance is at the 0.99 confidence limit (but can reach 6 % and 4 % compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run, respectively). The RMS between the nature run and the control run is higher in the Northern part of Europe (∼20 %) than in the Southern part (∼7 %). The assimilation of GEO-TIR reduces the RMS by ∼2%, particularly where the RMS difference between the nature run and the control run is high ∼5 % (e.g. Northern Atlantic ocean).

The correlation between the nature run and the control run for the CO LmT column ranges between 0.3 (e.g. over Aegean Sea) and 0.9 (e.g. over France and Germany). The assimilation of GEO-TIR improves considerably the correlation compared to the control run (from ∼0.7 between the nature run and the control run to ∼0.9 between the nature run and the GEO-TIR assimilation run) over the Mediterranean Basin, where the significance is at the 0.99 confidence limit. The GEO-TIR assimilation run also improves the correlation compared to the GEO-TIR2 assimilation run especially over the Aegean Sea, Spain and North Africa. The bias and the RMS between the nature run and the control run for CO are low: ∼2 % for the bias and between 4 and 12 % for the RMS. The impact of GEO-TIR assimilation run on the bias is then positive but very low compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run; and the impact on the RMS is locally high, 7 % and 6 % compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run, respectively over Turkey and over Spain, and is positive but low elsewhere.

The modification of the initial condition mainly impacts the correlation for both CO and O_3. This experiment shows that the assimilation of GEO-TIR can improve considerably the correlation coefficient over land and sea for the CO and O_3 LmT column.

3.2.4 Sensitivity study on the emissions, meteorology and initial condition: experiment 4

We perform a final sensitivity test by simultaneously changing the emissions, the meteorology and the initial condition (Fig. 11). The control run (EXP4a) for the O_3 LmT column is characterized by low correlation (between 0 and 0.7), high bias (∼15 % on average), and high RMS (∼17 % on average)

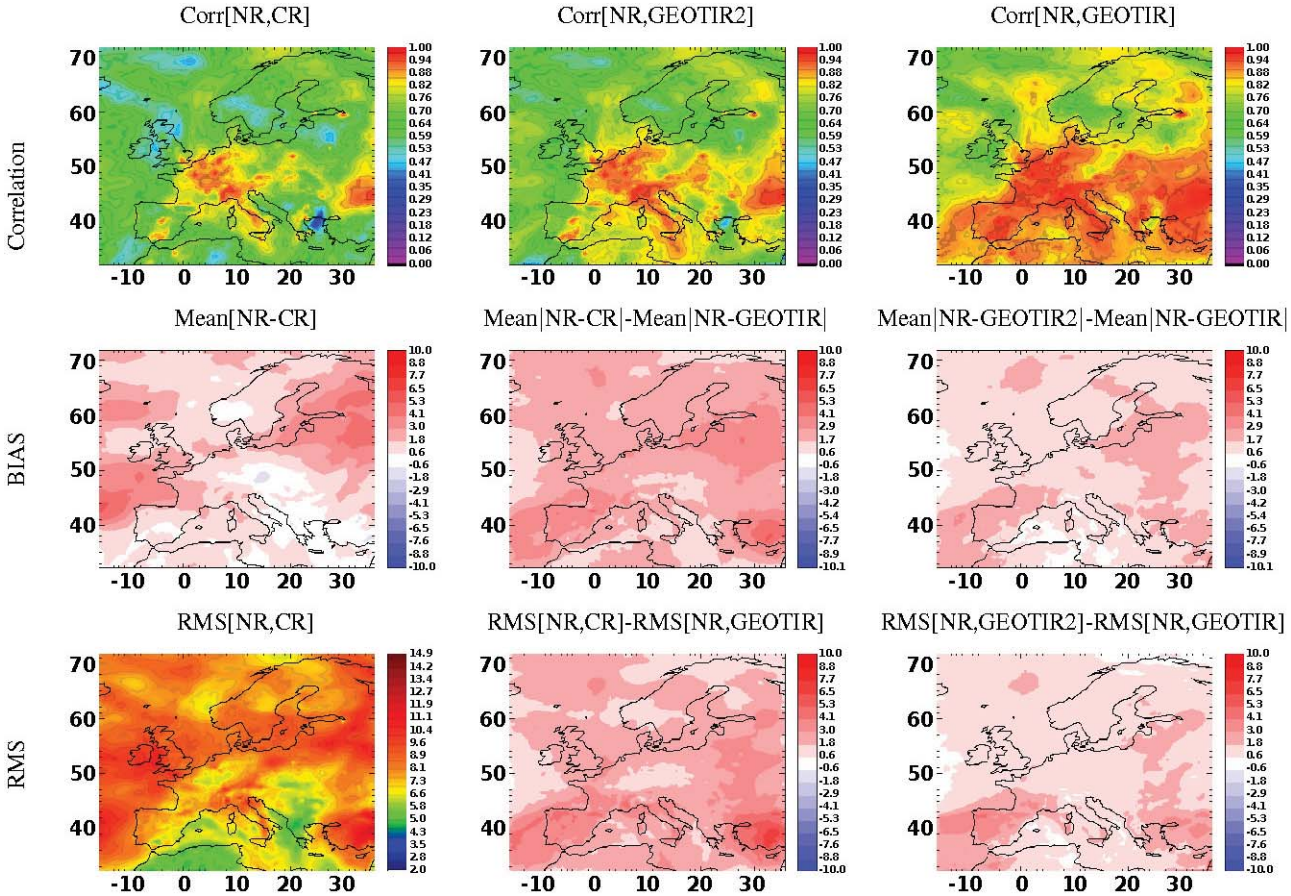


Fig. 10. Same as Fig. 9 (EXP3) but for CO.

compared to the nature run. By construction, we expect this experiment to provide results that differ the most from the nature run. The impact of the assimilation of GEO-TIR (EXP4c) is high compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run (EXP4b). The added value of GEO-TIR for the correlation coefficient is positive over Europe and increases significantly the correlation coefficient (e.g. over Turkey, Germany, Atlantic Ocean). The GEO-TIR assimilation run reduces the bias by 3 % and 2 % in average but locally the impact is ∼5 % and ∼6%, compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run, respectively. The RMS is considerably reduced all over all Europe up to 12 % and 10 % compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run, respectively.

The differences between the nature run and the control run for the CO LmT column (Fig. 12) are similar to those for O_3: low correlation coefficient (between 0 and 0.8), high bias (∼11 % on average) and high RMS (∼11 % on average). As for O_3, this CO experiment provides results that differ the most from the nature run, as expected. The impact of the assimilation of GEO-TIR is positive over all the Europe, where the significance is at the 0.99 confidence limit: it increases the correlation (from 0.4 between the nature run and the control run and 0.6 between the nature run and the GEO-TIR2 assimilation run up to 0.8 between the GEO-TIR assimilation run over Turkey), reduces the bias (up to 20 % and 15 % over the Po valley compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run, respectively); and reduces the RMS (up to 14 % and 9 % over Turkey compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run, respectively).

We have presented a statistical analysis over 2 months to characterize the added value of the two instrument configurations. The results of the 4 experiments show that the assimilation of GEO-TIR improves significantly the O_3 and CO LmT columns compared to the control run and the assimilation of GEO-TIR2. The assimilation of GEO-TIR is able to effectively constrain the O_3 and CO fields perturbed by different sources of error in air quality prognoses: meteorology, emission, initial state (Table 4).

The added value of GEO-TIR is high over land and over sea. Concerning results over land, nadir infrared measurements are well known to be sensitive to the LmT with high thermal contrast and high surface temperature (namely over land during day) (e.g. Deeter et al., 2007; Eremenko et al.,

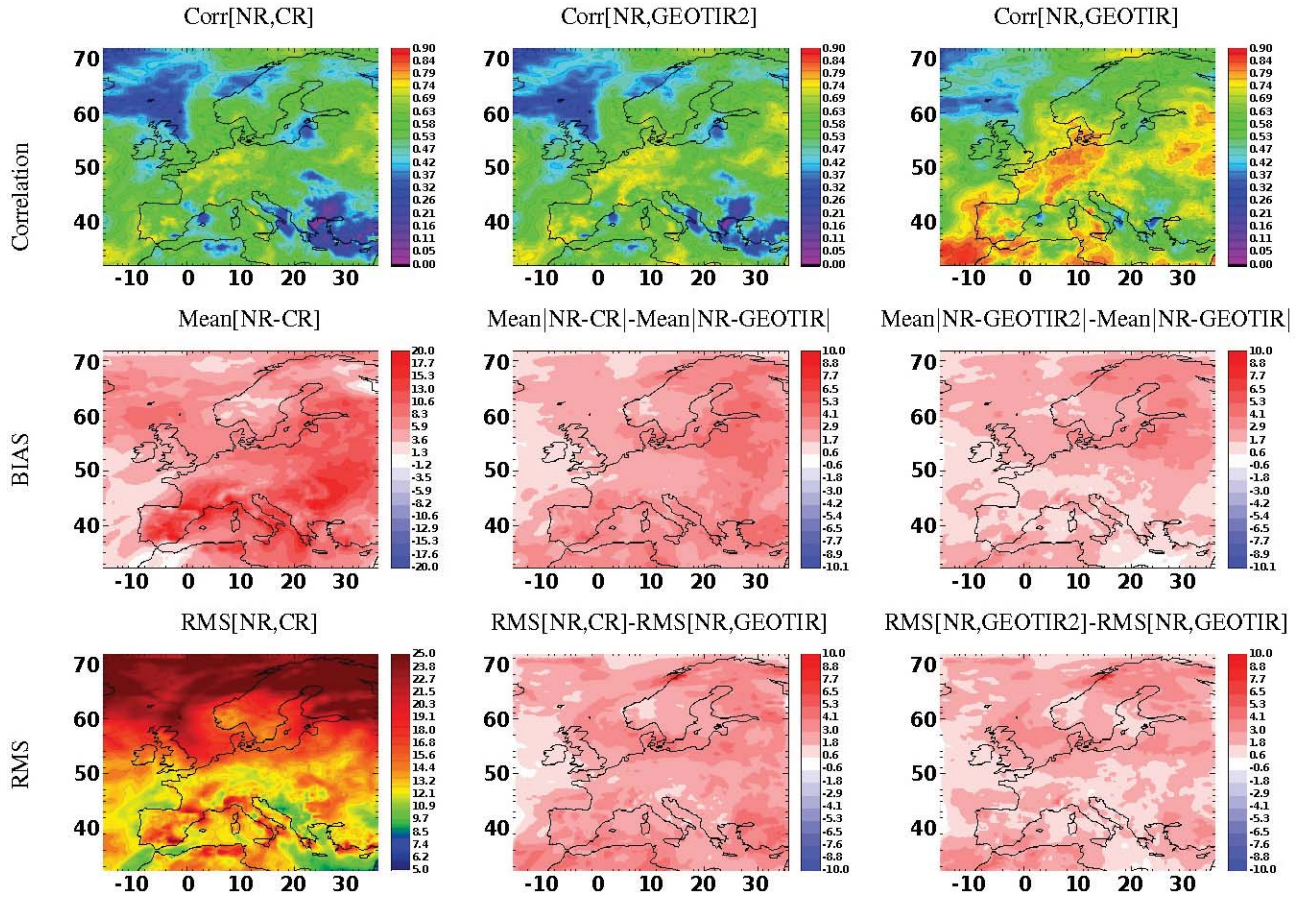


Fig. 11. Same as Fig. 5 but for the experiment with a change in the emissions, meteorology and initial condition (EXP4).

2008; Clerbaux et al., 2009). Concerning results over sea, they suggest that via direct assimilation and/or transport of successive increments by the model, the added value of GEO-TIR also impacts the sea (e.g. vertical and horizontal transport, Foret et al., 2009).

The largest effects are mainly located over the Mediterranean Basin, where the cloud fraction is smaller and surface temperatures and thermal contrasts are high over country surrounding coastal areas. In contrast, the added value of GEO-TIR is rather limited over the North Western part of the domain (Atlantic Ocean). Due to predominant winds blowing from the West in the area, air masses are largely influenced by incoming fluxes situated outside the field of view of our simulated geostationary platforms, and the effects of assimilation are mitigated. Also, the spatial distribution of the efficiency of GEO-TIR simulated observations to bring the assimilation run statistically close to the nature run are governed to a large extent by the spatial distribution of the differences between the nature run and the different control runs: GEO-TIR can in fact better constrain fields where the nature and control runs differ most, while where nature and control runs agree, little effect from the assimilation is expected, as seen in practice.

3.3 Vertical distribution of the impact of geostationary infrared measurements in the lowermost troposphere

In Sect. 3.2, we have quantified the added value of the assimilation of GEO-TIR for four sensitivity studies on the CO and O_3 LmT column over Europe. In this section, we concentrate on the vertically resolved added value of GEO-TIR in the lower troposphere (0–5 km) compared to the control run and the GEO-TIR2 assimilation run. Figure 13 show the correlation, the absolute relative difference and the RMS between the control run and the nature run, the GEO-TIR2 assimilation run and the nature run, and the GEO-TIR assimilation run and the nature run, for the four sensitivity studies (EXP1, EXP2, EXP3 and EXP4) averaged over Europe for 2 months (July and August 2009) as a function of altitude (surface up to 5 km) for O_3. For the O_3 correlation, the impact of the assimilation of GEO-TIR improves considerably it for EXP3 and EXP4, slightly for EXP1 but is not significant for EXP2. The vertical improvement of the correlation by the assimilation of GEO-TIR is very low at the surface, slight at 1 km, but high from 2 to 5 km, whereas the impact of GEO-TIR2 is very low for all levels between the surface and 5 km for

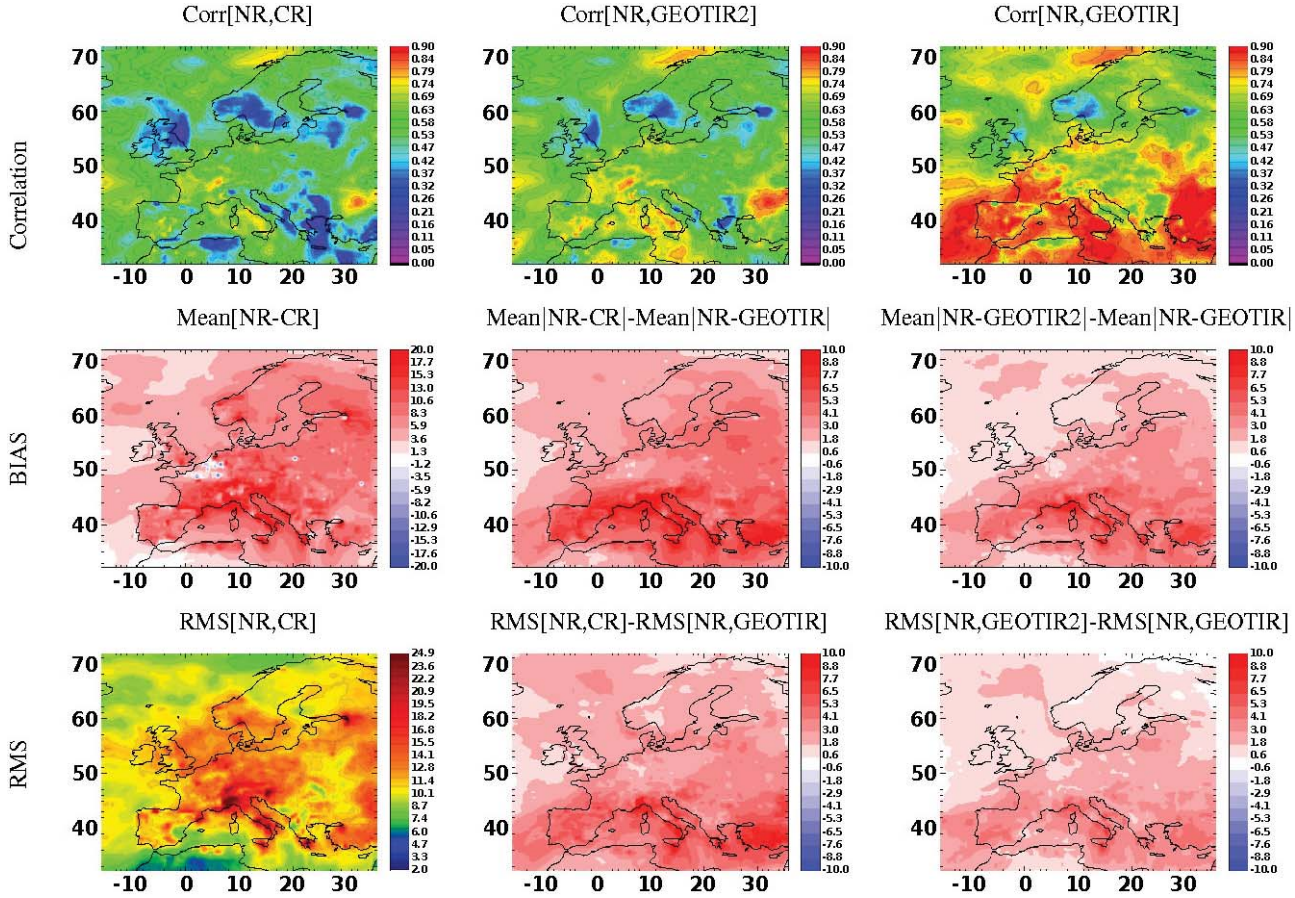


Fig. 12. Same as Fig. 11 (EXP4) but for CO.

O_3. For the absolute relative difference and the RMS, similar conclusions can be made: the impact of GEO-TIR is highly dependent on the experiment and the altitude, and reduces the absolute relative difference and the RMS mainly for altitudes above ∼1 km whereas the impact of GEO-TIR2 is very low for O_3.

The results are highly dependent on the experiments, but the impact of the assimilation of GEO-TIR improves considerably the O_3 analyses compared to the nature run above 1 km. Note that Honoré et al. (2008) showed that the mean model absolute relative difference of daily ozone maxima was mostly under 5 µg m^3 (∼7 %), RMS was generally less than 20 µg m^3 (∼30 %) and temporal correlation was more than 0.8 on average over Western Europe compared to O_3 surface observations, which indicates that the correlation and the absolute relative difference observed between the nature run and the control runs are realistic. The RMS in the control run is underestimated which may be because in the study from Honoré et al. (2008) the average is made over land and over Western Europe, whereas in this study the average is made over Europe (including the sea where O_3 concentrations show less variability at the surface).

Figure 14 shows similar results as Fig. 13 but for CO. The assimilation of GEO-TIR improves considerably the CO correlation for EXP1, EXP3 and EXP4 but has little impact on EXP2, which has already a high correlation coefficient. The positive impact of GEO-TIR is mainly situated above 1 km except for EXP4, which has a lower correlation (∼0.7); the assimilation of GEO-TIR improves the correlation at the surface. The assimilation of GEO-TIR2 CO also improves the correlation (but not at the surface) but the GEO-TIR assimilation run is closer to the nature run. The assimilation of GEO-TIR and GEO-TIR2 also reduces the absolute relative difference and the RMS, especially for EXP2 and EXP4 which show high biases, but the GEO-TIR assimilation run is closer to the nature run than the GEO-TIR2 assimilation, particularly at the surface.

3.4 Ozone evaluation at the surface

As for AQ purposes we are mainly interested by pollutant surface concentrations, we focus on the added values of both geostationary instruments on ozone surface concentrations.

We compute the percentage of good detection (GD), the percentage of correct detection above treshold (GD+) and

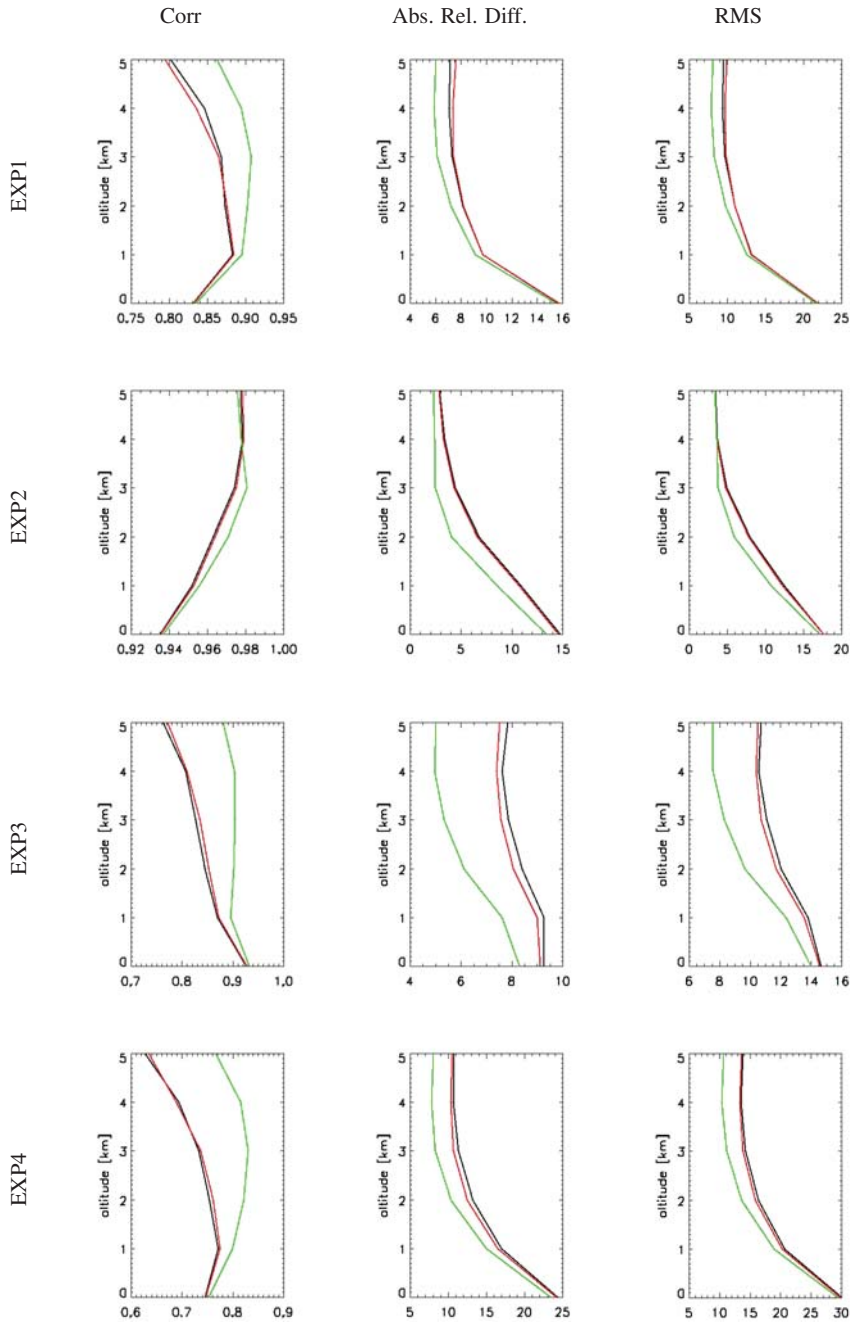


Fig. 13. Correlation (left panel), absolute relative difference in % (middle panel) and RMS difference in % (right panel) between the nature run (NR) and the control run (black); between the nature run and the assimilation run of GEO-TIR2 (red) and between the nature run and the assimilation run of GEO-TIR (green). Percentages are with respect to the nature run. The 1st row is for EXP1 (change in the meteorology), the 2nd row is for EXP2 (change in the emissions), the 3rd row is for EXP3 (change in the initial condition) and the 4th row is for EXP4 (change in the meteorology, in the emissions and in the initial condition).

the percentage of false alarms (FA) (see Sect. 2.6) for the control run, the GEO-TIR2 assimilation run and the GEO-TIR assimilation run for the four experiments at the surface over land for the European domain (Table 6). The observations are simulated throughtout the nature run. We select as an indicator of skill the treshold at 100 µg m^{-3} for the daily maximum of the 8-h running average, established by the WHO (World Health Organization, 2005) for the protection of public health. We do not compute the same scores for CO since the treshold for the protection of public health for the maximum of the 8-h running average is 10 000 µg m^{-3} which is seldom observed outdoors. Furthermore, CO is interesting

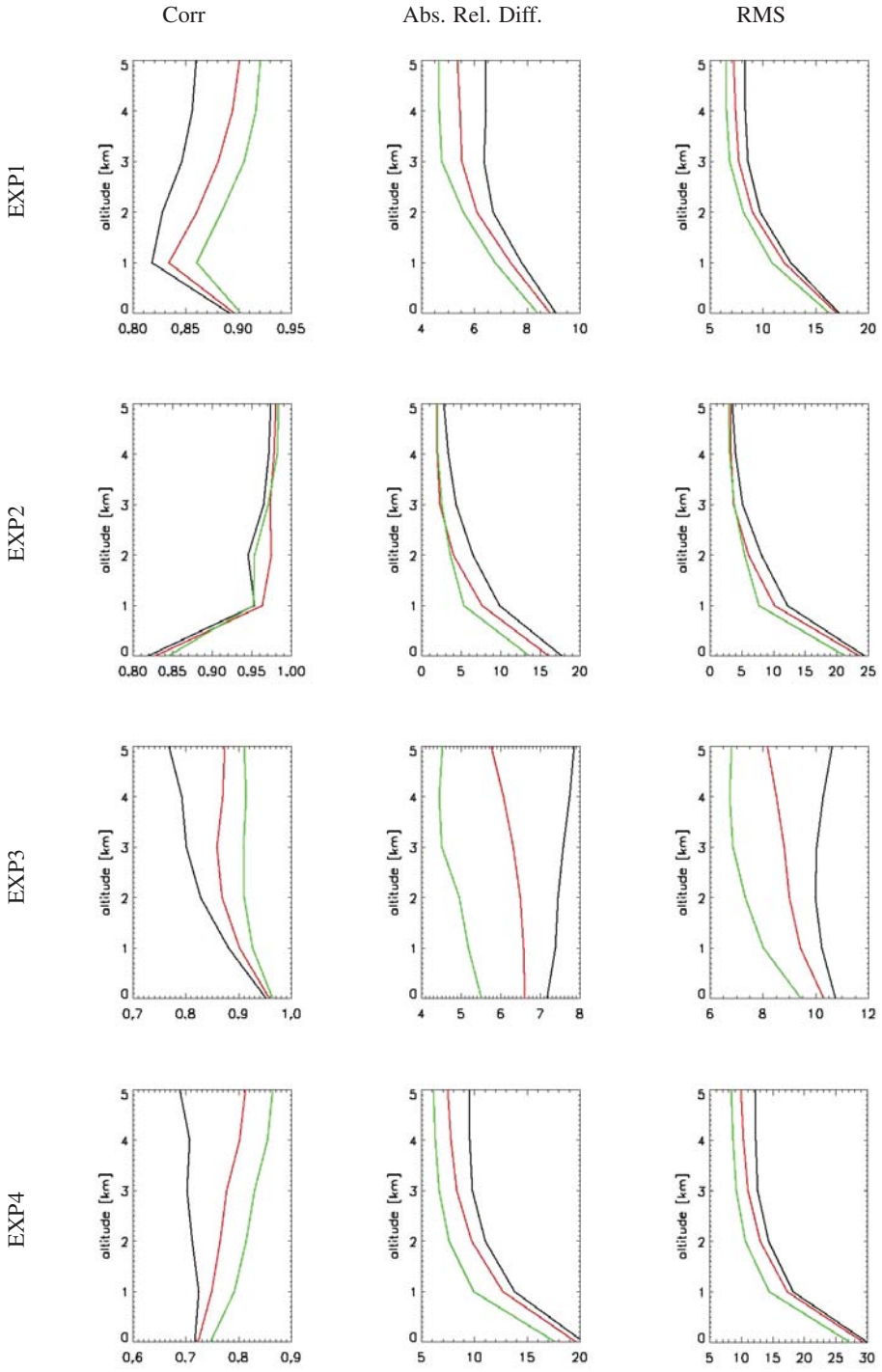


Fig. 14. Same as Fig. 13 but for CO.

for AQ because it is a proxy for pollutant sources and transport processes and not because of its direct impact on human health.

We have already shown that in general the added value of GEO-TIR and GEO-TIR2 for O_3 at the surface is low. However, for particular cases (high concentrations of O_3 above the threshold) the results presented in Table 6 indicate that the assimilation of geostationary instruments can help better detect high concentration events. In all cases, except EXP1 for GEO-TIR2, good detection and false alarm scores are enhanced both for GEO-TIR and GEO-TIR2. Concerning threshold-overshoot detections, results are more contrasted.

Annexe B : Liste des publications

Barré, J.,Peuch, V.-H., Attié, J.-L., El Amraoui, L., Lahoz, W. A., Josse, B., Claeyman, M., and Nédélec, P. : Stratosphere-troposphere ozone exchange from high resolution MLS ozone analyses, Atmos. Chem. Phys., 12, 6129-6144, doi :10.5194/acp-12-6129-2012, 2012.

Barré, J., Peuch, V.-H., Attié, J.-L., Lahoz, W. A., El Amraoui, L., Josse, B., Eremenko, M., Dufour, G., Piacentini, A., Nedelec., P., and Von Clarmann, T. : Combined data assimilation of ozone tropospheric columns and stratospheric profiles in a regional CTM, soumis dans Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 2012.

Barré, J., El Amraoui, L., Ricaud, P., Attié, J.-L., Lahoz, W. A., Peuch, V.-H., Josse, B., and Marécal, V. : Diagnosing the transition layer in the extra-tropical lowermost stratosphere using MLS O3 and MOPITT CO analyses, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 12, 22023-22057, doi :10.5194/acpd-12-22023-2012, 2012.

Claeyman, M., Attié, J.-L., Peuch, V.-H., El Amraoui, L., Lahoz, W. A., Josse, B., Joly, M., **Barré, J.**, Ricaud, P., Massart, S., Piacentini, A., von Clarmann, T., Höpfner, M., Orphal, J., Flaud, J.-M., and Edwards, D. P. : A thermal infrared instrument onboard a geostationary platform for CO and O3 measurements in the lowermost troposphere : Observing System Simulation Experiments (OSSE), Atmos. Meas. Tech., 4, 1637-1661, doi :10.5194/amt-4-1637-2011, 2011.

Liste des acronymes

3D-FGAT	three-dimensional - First Guess at Appropriate Time
3D-VAR	three-dimensional variational
4D-VAR	four-dimensional variational
ADOMOCA	Assimilation de Données pour les Modèles de Chimie Atmosphérique
ALADIN	Aire Limitée et Adaptation Dynamique
AROME	Applications de la Recherche à l'Opérationnel à Méso-Echelle
ARPEGE	Action de Recherche Petite Echelle Grande Echelle
ASSET	ASSimilation of ENVISAT data
CFC	Chloro Fluoro Carbures
COV	Composé Organique Volatil
CTM	Chemical Transport Model
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
ExTL	Extra-tropical Transition Layer
FTS	Fourier Transform Spectrometer
GEMS	Global and regional Earth-system (Atmosphere) Monitoring using Satellite and in-situ data
GMES	Global Monitoring for Environment and Security
IASI	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer
IPCC	International Panel on Climate Change
KOPRA	Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm
LEFE	Les enveloppes fluides et l'environnement
LIDAR	LIght Detection And Ranging
MACC	Monitoring Atmospheric Composition and Climate
MIPAS	Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding
MOBIDIC	MOdèle BIDImensionnel de Chimie
MOCAGE	MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle
MOPITT	Measurements Of Pollution In The Troposphere
MLS	Microwave Limb Sounder
NO_x	Oxydes d'azote (NO + NO_2)
OMA	Observation Minus Analyses
OMF	Observations Minus Forecast

OMI	Oozone Monitoring Instrument
PALM	Projet d'Assimilation par Logiciel Multi-Méthodes
ppbv	part per billion by volume
PV	Potential Vorticity
PVU	Potential Vorticity Units
RACM	Regional Atmospheric Chemistry Mechanism
RACMOBUS	réunion des schémas chimiques RACM et REPROBUS
REPROBUS	Reactive Processes Ruling the Ozone Budget in the Stratosphere
RMSE	Root Mean Square Error
TES	Tropospheric Emission Spectrometer
UTLS	Upper Troposphere and Lower Stratosphere
WHO	World Health Organization
WMO	World Meteorological Organization

Bibliographie

Ancellet, G., Pelon, J., Beekmann, M., Papayannis, A., et Mégie, G. : Ground based lidar studies of ozone exchanges between the stratosphere and the troposphere, J. Geophys. Res., 96, 22 401–22 421, 1991.

Appenzeller, C. et Davies, H. C. : Structure of stratospheric intrusion into the troposphere, Nature, 358, 570–572, 1992.

Appenzeller, C., Davies, H. C., et Norton, W. A. : Fragmentation of stratospheric intrusions, J. Geophys. Res., 101, 1435–1456, 1996.

Austin, J. : Toward the 4-dimensional assimilation of stratospheric chemical-constituents, JGR, 97, 2569–2588, 1992.

Barré, J., Peuch, V.-H., Attié, J.-L., El Amraoui, L., Lahoz, W. A., Josse, B., Claeyman, M., et Nédélec, P. : Stratosphere-troposphere ozone exchange from high resolution MLS ozone analyses, Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 11, 33 419–33 463, doi : 10.5194/acpd-11-33419-2011, 2011.

Barré, J., Amraoui, L. E., Ricaud, P., Attié, J. L., Lahoz, W., Peuch, V.-H., Josse, B., et Marécal, V. : Diagnosing the mixing layer in the extra-tropical lowermost stratosphere using MLS O3 and MOPITT CO analyses., Atmos. Chem. Phys. Discuss., 2012a.

Barré, J., Peuch, V.-H., Attié, J.-L., Lahoz, W. A., Amraoui, L. E., Josse, B., Emerenko, M., Dufour, G., Piacentini, A., Nedelec, P., et Clarmann, T. V. : ombined data assimilation of ozone tropospheric columns and stratospheric profiles in a regional CTM, Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 2012b.

Barré, J., Peuch, V.-H., Attié, J.-L., El Amraoui, L., Lahoz, W. A., Josse, B., Claeyman, M., et Nédélec, P. : Stratosphere-troposphere ozone exchange from high resolution MLS ozone analyses, Atmospheric Chemistry and Physics, 12, 6129–6144, doi : 10.5194/acp-12-6129-2012, 2012a.

Bechtold, P., Bazile, E., Guichard, F., Mascart, P., et Richard, E. : A mass-flux convection scheme for regional and global models, Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 96, 869–886, 2001.

Beekmann, M., Ancellet, G., et Mégie, G. : Climatology of tropospheric ozone in southern Europe and its relation to potential vorticity, JGR, 99, 841–853, 1994.

Bencherif, H., Amraoui, L. E., Sernane, N., Massart, S., Charyulu, D. V., Hauchecorne, A., et Peuch, V.-H. : Examination of the 2002 major warming in the southern hemisphere using ground-based and Odin/SMR assimilated data : stratospheric ozone distributions and tropic/mid-latitude exchange, Can. J. Phys., 85, 1287–1300, 2007.

Bethan, S., Vaughan, G., et Reid, S. : A comparison of ozone and thermal tropopause heights and the impact of tropopause definition on quantifying the ozone content of the troposphere, QJRMS, 122, 929–944, doi :{10.1002/qj.49712253207}, 1996.

Bousserez, N., Attié, J.-L., Peuch, V.-H., Michou, M., Pfister, G., Edwards, D., Emmons, L., Mari, C., Barret, B., Arnold, S. R., Heckel, A., Richter, A., Schlager, H., Lewis, A., Avery, M., Sachse, G., Browell, E. V., et Hair, J. W. : Evaluation of the MOCAGE chemistry transport model during the ICARTT/ITOP experiment, J. Geophys. Res., 112, D10S42, doi :10.1029/2006JD007595, 2007.

Brasseur, G., Orlando, J., et Tyndall, G. : Atmospheric Chemistry and Global Change, Oxford University Press, 1999.

Brewer, A. W. : Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere., Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 75, 351–363, 1949.

Browning, K. A. : Evolution of a mesoscale upper tropospheric vorticity maximum and comma cloud from a cloud-free two-dimensional potential vorticity anomaly, QJRMS, 119, 883–906, doi :10.1002/qj.49711951302, 1993.

Buis, S., Piacentini, A., et Déclat, D. : PALM : a computational framework for assembling high-performance computing applications, Concurrency Computat. : Pract. Exper., 18, 231–245, doi :10.1002/cpe.914, 2006.

Büker, M. L., Hitchmann, M. H., Tripoli, G. J., Pierce, R. B., Browell, E. V., et Avery, M. A. : Resolution dependence of cross-tropopause ozone transport over East Asia, J. Geophys. Res., 110, D03 107, doi :10.1029/2004JD004739, 2005.

Cariolle, D. : Présentation d'un modèle bidimensionnel photochimique de l'ozone stratosphérique, Note de travail de l'etablissement d'etudes et de recherches météorologiques, 1982.

Cariolle, D. et Déqué, M. : Southern hemisphere medium-scale waves and total ozone disturbances in a spectral general circulation model, J. Geophys. Res., 91, 10 825–10 846, 1986.

Cariolle, D., Evans, M. J., Chipperfield, M. P., Butkovskaya, N., Kukui, A., et Lebras, G. : Impact of the new HNO_3-forming channel of the HO_2+NO reaction on tropospheric HNO_3, NO_x, HO_x and ozone, Atmos. Chem. Phys., 8, 4061–4068, 2008.

Chapman, S. : On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere., PHILOSOPHICAL MAGAZINE, 10, 369–383, 1930.

Claeyman, M., Attié, J.-L., El Amraoui, L., Cariolle, D., Peuch, V.-H., Teyssèdre, H., Josse, B., Ricaud, P., Massart, S., Piacentini, A., Cammas, J.-P., Livesey, N. J., Pumphrey, H. C., et Edwards, D. P. : A linear CO chemistry parameterization in a chemistry-transport model : evaluation and application to data assimilation, Atmos. Chem. Phys., 10, 6097–6115, doi :10.5194/acp-10-6097-2010, 2010.

Clark, H. L., Cathala, M.-L., Teyssèssdre, H., Cammas, J.-P., et Peuch, V.-H. : Cross-tropopause fluxes of ozone unsing assimilation of MOZAIC observations in a global CTM, Tellus, 59B, 39–49, 2007.

Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Turquety, A. R. S., Wespes, C., et Coheur, P.-F. : Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, Atmos. Chem. Phys., 9, 6041–6054, 2009.

Coman, A., Foret, G., Beekmann, M., Eremenko, M., Dufour, G., Gaubert, B., Ung, A., Schmechtig, C., Flaud, J.-M., et Bergametti, G. : Assimilation of IASI partial tropospheric columns with an Ensemble Kalman Filter over Europe, Atmospheric Chemistry and Physics, 12, 2513–2532, doi :10.5194/acp-12-2513-2012, 2012.

Cooper, O. R., Parrish, D. D., Stohl, A., Trainer, M., Nédélec, P., Thouret, V., Cammas, J. P., Oltmans, S. J., Johnson, B. J., Tarasick, D., Leblanc, T., McDermid, I. S., Jaffe, D., Gao, R., Stith, J., Ryerson, T., Aikin, K., Campos, T., Weinheimer, A., et Avery, M. A. : Increasing springtime ozone mixing ratios in the free troposphere over western North America, Nature, 463, 344–348, doi :10.1038/nature08708, 2010.

Courtier, P., Freydier, C., Geleyn, J. F., Rabier, F., et Rochas, M. : The ARPEGE project at Météo France, dans : Atmospheric Models, vol.2, pp. 193–231, Workshop on Numerical Methods, Reading, U.K., 1991.

Crutzen, P. : Influence of nitrogen oxides on atmospheric ozone content, QJRMS, 96, 320–&, doi :{10.1002/qj.49709640815}, 1970.

Crutzen, P. J., Lawrence, M. G., et Poschl, U. : On the background photochemistry of tropospheric ozone., TELLUS, 51A-B, 123–146, 1999.

Dajet, N. : Revue des méthodes dássimilation, Technical report cerfacs, 2007.

Danielsen, E. F. : Stratosphere-troposphere exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity, J. Atmos. Sci., 25, 502–518, 1968.

Deeter, M. N., Emmons, L. K., Francis, G. L., Edwards, D. P., Gille, J. C., Warner, J. X., Khattatov, B., Ziskin, D., Lamarque, J.-F., Ho, S. P., Yudin, V., Attié, J.-L., Packman, D., Chen, J., Mao, D., et Drummond, J. R. : Operational carbon monoxide retrieval algorithm and selected results for the MOPITT instrument, J. Geophys. Res., 108, 4399, doi :10.1029/2002JD003186, 2003.

Deeter, M. N., Edwards, D. P., Gille, J. C., et Drummond, J. R. : Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, J. Geophys. Res., 112, D24306, doi :10.1029/2007JD008929, 2007.

Delmas, R., Megie, G., et Peuch, V.-H. : Physique et chimie de l'atmosphére, collection Echelles, Edition Belin, 2005.

Dimet, F.-X. L. et Talagrand, O. : Variational algorithms for analysis and assimilation of meteorological observations : theorical aspects, Tellus, 38A, 97–110, 1986.

Dobson, G. M. B. : Origin and distribution of the polyatomic molecules in the atmosphere., Proc. Roy. Soc. A., 236, 187–193, 1956.

Drummond, J. R. et Mand, G. S. : Evaluation of operational radiances for the Measurement of Pollution in the Troposphere (MOPITT) instrument CO thermal-band channels, J. Geophys. Res., 109, D03308, doi :10.1029/2003JD003970, 1996.

Dufour, A., Amodei, M., Ancellet, G., et Peuch, V.-H. : Observed and modelled "chemical weather" during ESCOMPTE, Atmos. Res., 74, 161–189, doi :10.1016/atmosres.2004.04.013, 2005.

Dufour, G., Eremenko, M., Orphal, J., et Flaud, J.-M. : IASI observations of seasonal and day-to-day variations of tropospheric ozone over three highly populated areas of China : Beijing, Shanghai, and Hong Kong, ACP, 10, 3787–3801, doi : 10.5194/acp-10-3787-2010, 2010.

El Amraoui, L., Peuch, V.-H., Ricaud, P., Massart, S., Semane, N., Teyssèdre, H., Cariolle, D., et Karcher, F. : Ozone loss in the 2002–2003 Arctic vortex deduced from the assimilation of Odin/SMR O3 and N2O measurements : N2O as a dynamical tracer, Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 134, 217–228, doi :10.1002/qj.191, 2008a.

El Amraoui, L., Semane, N., Peuch, V.-H., et Santee, M. L. : Investigation of dynamical processes in the polar stratospheric vortex during the unusually cold winter 2004/2005, Geophys. Res. Lett., 35, L03803, doi :10.1029/2007GL031251, 2008b.

El Amraoui, L., Attié, J.-L., Semane, N., Claeyman, M., Peuch, V.-H., Warner, J., Ricaud, P., Cammas, J.-P., Piacentini, A., Cariolle, D., Massart, S., et Bencherif, H. : Midlatitude stratosphere-troposphere exchange as diagnosed by MLS O3 and MOPITT CO assimilated fields, Atmos. Chem. Phys., 10, 2175–2194, 2010.

Elbern, H., Schimdt, H., et Elbel, A. : Variational data assimilation for tropospheric chemistry modeling, J. Geophys. Res., 102, 15 967–15 985, 1997.

Eremenko, M., Dufour, G., Foret, G., Keim, C., Orphal, J., Beekmann, M., Bergametti, G., et Flaud, J.-M. : Tropospheric ozone distributions over Europe during the heat wave in July 2007 observed from infrared nadir spectra recorded by IASI, Geophys. Res. Lett., 35, L18805, doi :10.1029/2008GL03803, 2008.

European Space Agency : Report for Mission Selection : PREMIER, Esa sp-1324/3 (3 volume series), Noordwijk, The Netherlands, 2012.

Fischer, H., Wienhold, F. G., Hoor, P., Bujok, O., Schiller, C., Siegmund, P., Ambaum, M., Scheeren, H. A., et Lelieveld, J. : Tracer correlations in the northern high latitude lowermost stratosphere : Influence of cross-tropopause mass exchange, GRL, 27, 97–100, doi :10.1029/1999GL010879, 2000.

Fisher, M. et Andersson, E. : Developments in 4D-Var and Kalman filtering, dans : Technical Memorandum Research Department, vol. 347, ECMWF, Reading, UK, 2001.

Fisher, M. et Lary, D. J. : Lagrangian four-dimensional variational data ssimilation of chemical species, Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 121, 1681–1704, 1995.

Foret, G., Hamaoui, L., Schmechtig, C., , Eremenko, M., Keim, C., Dufour, G., Boynard, A., Coman, A., Ung, A., et Beekmann, M. : Evaluating the potential of IASI ozone observations to constrain simulated surface ozone concentrations, Atmos. Chem. Phys., 9, 8479–8491, doi :10.5194/acp-9-8479-2009, 2009.

Fritts, D. et Alexander, M. : Gravity wave dynamics and effects in the middle atmosphere, RGEO, 41, doi :{10.1029/2001RG000106}, 2003.

Froidevaux, L. et et al. : Validation of Aura Microwave Limb Sounder stratospheric ozone measurements, JGR, 113, doi :10.1029/2007JD008771, 2000.

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., et Segers, A. : The ASSET intercomparison of ozone analyses : Method and first results, Atmos. Chem. Phys., 6, 5445–5474, 2006.

Gettelman, A., Hoor, P., Pan, L. L., Randel, W. J., Hegglin, M. I., et Birner, T. : The Extratropical Upper Troposphere and Lower Stratosphere, Rev. Geophys., 49, doi : 10.1029/2011RG000355, 2011.

Giorgi, F. et Chameides, W. : Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model, J. Geophys. Res., 91(D13), 14 367–14 376, 1986.

Gouget, H., Vaughan, G., Marenco, A., et Smit, H. G. J. : Decay of a cut-off low and contribution to stratosphere-troposphere exchange, JGR, 126, 1117–1141, doi :10.1002/qj.49712656414, 2000.

Hauchecorne, A., Godin, S., Marchand, M., Heese, B., et Souprayen, C. : Quantification of the transport of chemical constituents from the polar vortex to midlatitudes in the lower stratosphere using the high-resolution advection model MIMOSA and effective diffusivity, J. Geophys. Res., 107, 8289, doi :10.1029/2001JD000491, 2002.

Hegglin, M. I., Boone, C. D., Manney, G. L., et Walker, K. A. : A global view of the extratropical tropopause transition layer from Atmospheric Chemistry Experiment Fourier Transform Spectrometer O-3, H2O, and CO, J. Geophys. Res., 114, doi : 10.1029/2008JD009984, 2009.

Hegglin, M. I., Gettelman, A., Hoor, P., Krichevsky, R., Manney, G. L., Pan, L. L., Son, S. W., Stiller, G., Tilmes, S., Walker, K. A., Eyring, V., Shepherd, T. G., Waugh, D., Akiyoshi, H., Anel, J. A., Austin, J., Baumgaertner, A., Bekki, S., Braesicke, P., Bruehl, C., Butchart, N., Chipperfield, M., Dameris, M., Dhomse, S., Frith, S., Garny, H., Hardiman, S. C., Joeckel, P., Kinnison, D. E., Lamarque, J. F., Mancini, E., Michou, M., Morgenstern, O., Nakamura, T., Olivie, D., Pawson, S., Pitari, G., Plummer, D. A., Pyle, J. A., Rozanov, E., Scinocca, J. F., Shibata, K., Smale, D., Teyssedre, H., Tian, W., et Yamashita, Y. : Multimodel assessment of the upper troposphere and lower stratosphere : Extratropics, J. Geophys. Res., 115, doi :10.1029/2010JD013884, 2010.

Hitchman, M. H., Büker, M. L., Tripoli, G. J., Browell, E. V., Grant, W. B., McGee, T. J., et Burris, J. F. : Nonorographic generation of Arctic polar stratospheric clouds during December 1999, J. Geophys. Res., 108, 8325, doi :10.1029/2001JD001034, 2003.

Hoerling, M. P., Schaak, T. K., et Lenzen, A. J. : Global objective tropopause analysis., MWR, 119, 1816–1831, 1991.

Hollingsworth, A., Engelen, R. J., Textor, C., Benedetti, A., Boucher, O., Chevallier, F., Dethof, A., Elbern, H., Eskes, H., Flemming, J., Granier, C., Kaiser, J. W., Morcrette, J.-J., Rayner, P., Peuch, V.-H., Rouil, L., Schultz, M. G., Simmons, A. J., et Consortium, G. : Toward a monitoring and forecasting system for atmospheric composition : The GEMS project, BAMS, 89, 1147+, doi :{10.1175/2008BAMS2355.1}, 2008.

Holton, J. R., Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Douglass, A. R., Rood, R. B., et Pfister, L. : Stratosphere-troposphere exchange, Rev. Geophys., 4, 403–439, 1995.

Homeyer, C. R., Bowman, K. P., et Pan, L. L. : Extratropical tropopause transition layer characteristics from high-resolution sounding data, J. Geophys. Res., 115, doi : 10.1029/2009JD013664, 2010.

Honoré, C., Rouïl, L., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagne, B., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J.-M., Malherbe, L., Meleux, F., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V.-H., et Poisson, N. : Predictability of European air quality : Assessment of 3 years of operational forecasts and analyses by the PREV'AIR system, J. Geophys. Res., 113, D04301, doi :10.1029/2007JD008761, 2008.

Hood, L., Rossi, S., et Beulen, M. : Trends in lower stratospheric zonal winds, Rossby wave breaking behavior, and column ozone at northern midlatitudes, JGR, 104, 24 321–24 339, doi :{10.1029/1999JD900401}, 1999.

Hoor, P., Fischer, H., Lange, L., Lelieveld, J., et Brunner, D. : Seasonal variations of a mixing layer in the lowermost stratosphere as identified by the CO-O-3 correlation from in situ measurements, JGR, 107, doi :{10.1029/2000JD000289}, 2002.

Hoor, P., Gurk, C., Brunner, D., Hegglin, M. I., Wernli, H., et Fischer, H. : Seasonality and extent of extratropical TST derived from in-situ CO measurements during SPURT, ACP, 4, 1427–1442, 2004.

Hoskins, B., McIntyre, M., et Robertson, A. : On the use and significance of isentropic potential vorticity maps, QJRMS, 111, 877–946, doi :{10.1256/smsqj.47001}, 1985.

Hsu, J. et Prather, M. J. : Stratospheric variability and tropospheric ozone, JGR, 114, doi :10.1029/2008JD010942, 2009.

IPCC 1996 : IPCC, Climate Change 1995. The Science of Climate Change, edited by J. T. Houghton et al., 1996.

Jing, P., M.Cunnold, D., Wang, H. J., et Yang, E. S. : Isentropic Cross-Tropopause Ozone Transport in the Northern Hemisphere., JAS, 61, 1068–1078, 2004.

Josse, B., Simon, P., et Peuch, V.-H. : Radon global simulation with the multiscale chemistry transport model MOCAGE, Tellus, 56, 339–356, 2004.

Kalman, R. E. : A new appoach to linear filtering and prediction problems, J. Basis. Eng, 82D, 35–45, 1960.

Kalnay, E. : Atmospheric modeling, data assimilation, and predictability., University Press, Cambridge, 2003.

Kawatani, Y., Takahashi, M., et Tokioka, T. : Gravity waves around the subtropical jet of the southern winter in an atmospheric general circulation model, GRL, 31, doi : {10.1029/2004GL020794}, 2004.

Keim, C., Eremenko, M., Orphal, J., Dufour, G., Flaud, J.-M., Höpfner, M., Boynard, A., Clerbaux, C., Payan, S., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Claude, H., Dier, H., Johnson, B., Kelder, H., Kivi, R., Koide, T., López Bartolomé, M., Lambkin, K., Moore, D.,

Schmidlin, F. J., et Stübi, R. : Tropospheric ozone from IASI : comparison of different inversion algorithms and validation with ozone sondes in the northern middle latitudes, ACP, 9, 9329–9347, doi :10.5194/acp-9-9329-2009, 2009.

Lahoz, W. A., Errera, Q., Swinbank, R., et Fonteyn, D. : Data assimilation of stratospheric constituents : a review, Atmos. Chem. Phys., 7, 5745–5773, 2007.

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., et von Clarmann, T. : The Assimilation of Envisat data (ASSET) project, ACP, 7, 1773–1796, 2007.

Lamarque, J. F. et Hess, P. G. : Cross-Tropopause mass-exchange and potential vorticity budget in a simulated tropopause folding, J. Atmos. Sci., 51, 2246–2269, 1994.

Law, K. S., Plantevin, P.-H., Thouret, V., Marenco, A., Asman, W. A. H., Lawrence, M., Crutzen, P. J., Muller, J.-F., Hauglustaine, D. A., et Kanakidou, M. : Comparison between global chemistry transport model results and Measurement of Ozone and Water Vapor by Airbus In-Service Aircraft (MOZAIC) data, JGR, 105, 1503–1525, doi :10.1029/1999JD900474, 2000.

Leblanc, T., Tripathi, O. P., McDermid, I. S., Froidevaux, L., Livesey, N. J., Read, W. G., et Waters, J. W. : Simultaneous lidar and EOS MLS measurements, and modeling, of a rare polar ozone filament event over Mauna Loa Observatory, Hawaii, Geophys. Res. Lett., 33, L16 801, doi :10.1029/2006GL026257, 2006.

Leblanc, T., McDermid, I., et Hauchecorne, A. : A study of ozone variability and its connection with meridional transport in the northern Pacific lower stratosphere during summer 2002, JGR, 109, doi :{10.1029/2003JD004027}, 2004.

Lefèvre, F., Brasseur, G. P., Folkins, I., Smith, A. K., et Simon, P. : Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter : three dimensional model simulations, J. Geophys. Res., 99, 8183–8195, 1994.

Lelieveld, J. et Dentener, F. J. : What controls tropospheric ozone ?, JGR, 105, doi : 10.1029/1999JD901011, 2000.

Louis, J.-F. : Parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, Boundary Layer Meteorol., 17, 187–202, 1979.

Luk'yanov, A. N., Karpechko, A. Y., Yushkov, V. A., Korshunov, L. I., Khaikin, S. M., Gan'shin, A. V., Kyro, E., Kivi, R., Maturilli, M., et Voemel, H. : Estimation of water-vapor and ozone transport in the upper troposphere-lower stratosphere and fluxes through the tropopause during the field campaign at the Sodankyla station (Finland)., Izvestiya Atmospheric and Oceanic Physics, 45, 294–301, doi : 10.1134/S0001433809030037, 2009.

Marchand, M., Godin, S., Hauchecorne, A., Lefèvre, F., Bekki, S., et Chipperfield, M. : Influence of polar ozone loss on northern midlatitude regions estimated by a high-resolution chemistry transport model during winter 1999/2000, J. Geophys. Res., 108, 8326, doi :10.1029/2001JD000906, 2003.

Marenco, A., Thouret, V., Nedelec, P., Smit, H. G., Helten, M., Kley, D., Karcher, F., Simon, P., Law, K., Pyle, J., Poschmann, G., Wrede, R. V., Hume, C., et Cook, T. : Measurement of ozone and water vapour by Airbus in-service aircraft : the MOZAIC airborne program, an overview, J. Geophys. Res., 103, 25 631±25 242, 1998.

Mari, C., Jacob, D. J., et Bechtold, P. : Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, J. Geophys. Res., 105(D17), 22 255–22 267, 2000.

Massart, S., Cariolle, D., et Peuch, V.-H. : Towards an improvement of the atmospheric ozone distribution and variability by assimilation of satellite data, C. R. Geosci., 337, 1305–1310, doi :10.1016/j.crte.2005.08.001, 2005.

Massart, S., Piacentini, A., Cariolle, D., El Amraoui, L., et Semane, N. : Assessment of the quality of the ozone measurements from the Odin/SMR instrument using data assimilation, Can. J. Phys., 85, 1209–1223, 2007.

Massart, S., Clerbaux, C., Cariolle, D., Piacentini, A., Turquety, S., et Hadji-Lazaro, J. : First steps towards the assimilation of IASI ozone data into the MOCAGE-PALM system, ACP, 9, 5073–5091, 2009.

Massart, S., Piacentini, A., et Pannekoucke, O. : Importance of using ensemble estimated background error covariances for the quality of atmospheric ozone analyses, QJRMS, 138, 889–905, doi :{10.1002/qj.971}, 2012.

McPeters, R., Kroon, M., Labow, G., Brinksma, E., Balis, D., Petropavlovskikh, I., Veefkind, J. P., Bhartia, P. K., et Levelt, P. F. : Validation of the Aura Ozone Monitoring Instrument total column ozone product, J. Geophys. Res., 113, D15S14, doi : 10.1029/2007JD008802, 2008.

McPeters, R. D., Labow, G. J., et Logan, J. A. : Ozone climatological profiles for satellite retrieval algorithms, JGR, 12, doi :10.1029/2005JD006823, 2007.

Menard, R. et Changs, L. : Assimilation of stratospheric chemical tracer observations using a Kalman filter. Part II : chi(2)-validated results and analysis of variance and correlation dynamics, MWR, 128, 2672–2686, doi :10.1175/1520-0493(2000)128, 2000.

Menard, R., Cohn, S., Chang, L., et Lyster, P. : Assimilation of stratospheric chemical tracer observations using a Kalman filter. Part I : Formulation, MWR, 128, 2654–2671, doi :10.1175/1520-0493(2000)128, 2000.

Michou, M. et Peuch, V.-H. : Surface exchanges in the MOCAGE multiscale Chemistry and Transport Model, Water Res., 15, 173–203, 2002.

Michou, M., Laville, P., Serca, D., Fotiadi, A., Bouchou, P., et Peuch, V.-H. : Measured and modeled dry deposition velocities over the ESCOMPTE area, Atmos. Res., 47, 89–116, 2004.

Murphy, D. M. et Fahey, D. W. : An estimate of the flux of stratospheric reactive nitrogen and ozone into the troposphere., JGR, 99, 5325–5332, 1994.

Olsen, M. A., Douglass, A. R., et Schoeberl, M. R. : stimating downward cross-tropopause ozone flux using column ozone and potential vorticity., JGR, 107, 4636, doi :10.1029/2001JD002041, 2002.

Olsen, M. A., Douglass, A. R., et Schoeberl, M. R. : A comparison of Northern and Southern Hemisphere cross-tropopause ozone flux., GRL, 30, 1412, doi :10.1029/2002GL016538, 2003.

Organization, W. H. : Air Quality Guidelines : Global Update 2005, Rap. tech., 2005.

Pan, L. L., Randel, W. J., Gary, B. L., Mahoney, M. J., et Hintsa, E. J. : Definitions and sharpness of the extratropical tropopause : A trace gas perspective, JGR, 109, doi :10.1029/2004JD004982, 2004.

Pan, L. L., Wei, J. C., Kinnison, D. E., Garcia, R. R., Wuebbles, D. J., et Brasseur, G. P. : A set of diagnostics for evaluating chemistry-climate models in the extratropical tropopause region, JGR, 112, doi :0.1029/2006JD007792, 2007.

Pan, L. L., Randel, W. J., Gille, J. C., Hall, W. D., Nardi, B., Massie, S., Yudin, V., Khosravi, R., Konopka, P., et Tarasick, D. : Tropospheric intrusions associated with the secondary tropopause, J. Geophys. Res., 114, doi :10.1029/2008JD011374, 2009.

Peuch, V.-H., Amodei, M., Barthet, T., Cathala, M.-L., Michou, M., et Simon, P. : MOCAGE, 1999.

Pisso, I., Real, E., Law, K. S., Legras, B., Bousserez, N., Attié, J.-L., et Schlager, H. : Estimation of mixing in the troposphere from Lagrangian trace gas reconstructions during long-range pollution plume transport, J. Geophys. Res., 114, D19301, doi :10.1029/2008JD011289, 2008.

Pisso, I., Real, E., Law, K. S., Legras, B., Bousserez, N., Attie, J. L., et Schlager, H. : Estimation of mixing in the troposphere from Lagrangian trace gas reconstructions during long-range pollution plume transport, JGR, 114, doi :{10.1029/2008JD011289}, 2009.

Postel, G. A. et Hitchman, H. M. : A climatology of Rossby wave breaking along the subtropical tropopause, J. Atmos. Sci., 56, 359–373, 1999.

Ramaswamy, V., Boucher, O., Haigh, J., Hauglustaine, D., Haywood, J., Myhre, G., Nakajima, T., Shi, G. Y., et Solomon, S. : Radiative Forcing of Climate Change, in : Climate Change 2001 : The Scientific Basis. Contribution of working group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge Univ. Press, New York, pp. 349–416, 2001.

Ricaud, P., Barret, B., Attie, J. L., Motte, E., Le Flochmoeen, E., Teyssedre, H., Peuch, V. H., Livesey, N., Lambert, A., et Pommereau, J. P. : Impact of land convection on troposphere-stratosphere exchange in the tropics, Atmos. Chem. Phys., 7, 5639–5657, doi :10.5194/acp-7-5639-2007, 2007.

Ricaud, P., Attié, J.-L., Teyssèdre, H., El Amraoui, L., Peuch, V.-H., Matricardi, M., et Schluessel, P. : Equatorial total column of nitrous oxide as measured by IASI on MetOp-A : implications for transport processes, Atmos. Chem. Phys., 9, 3947–3956, 2009.

Rodgers, C. D. : Inverse Methods for Atmospheric Sounding : Theory and Practice, Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics, vol. 2, World Scientific, 2000.

Rouil, L., Honore, C., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Malherbe, L., Meleux, F., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J.-M., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V.-H., et Poisson, N. : PREV'AIR An Operational Forecasting and Mapping System for Air Quality in Europe, BAMS, 90, 73–83, doi :{10.1175/2008BAMS2390.1}, 2009.

Semane, N., Peuch, V.-H., Amraoui, L. E., Bencherif, H., Massart, S., Cariolle, D., Attié, J.-L., et Abidab, R. : An observed and analysed stratospheric ozone intrusion over the high Canadian Arctic UTLS region during the summer of 2003, Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 133, 171–178, doi :10.1002/qj.141, 2007.

Semane, N., Peuch, V.-H., Pradier, S., Desroziers, G., El Amraoui, L., Brousseau, P., Massart, S., Chapnik, B., et Peuch, A. : On the extraction of wind information from the assimilation of ozone profiles in Météo-France 4D-Var operational NWP suite, Atmos. Chem. Phys., 9, 4855–4867, 2009.

Sigmond, M., Meloen, J., et Siegmund, P. : Stratosphere-troposphere exchange in an extratropical cyclone, calculated with a Lagrangian method, ANNALES GEOPHYSICAE-ATMOSPHERES HYDROSPHERES AND SPACE SCIENCES, 18, 573–582, doi : {10.1007/s00585-000-0573-1}, 2000.

Sprenger, M., Wernli, H., et Bourqui, M. : Stratosphere-troposphere exchange and its relation to potential vorticity streamers and cutoffs near the extratropical tropopause, JAS, 64, 1587–1602, doi :{10.1175/JAS3911.1}, 2007.

Stiller, G. P., ed. : The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm (KOPRA), vol. FZKA 6487 de *Wissenschaftliche Berichte*, Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.

Stiller, G. P., Kiefer, M., Eckert, E., von Clarmann, T., Kellmann, S., Garcia-Comas, M., et et al., B. F. : Validation of MIPAS IMK/IAA temperature, water vapor, and ozone profiles with MOHAVE-2009 campaign measurements, Atmos. Meas. Tech. Discuss., 4, 4403–4472, doi :10.5194/amtd-4-4403-2011, 2011.

Stockwell, W. R., Kirchner, F., Khun, M., et Seefeld, S. : A new mechanism for regional atmospheric chemistry modelling, J. Geophys. Res., 102, 25 847–25 879, 1997.

Stohl, A., Bonasoni, P., Cristofanelli, P., Collins, W., Feichter, J., Frank, A., Forster, C., Gerasopoulos, E., Gaggeler, H., James, P., Kentarchos, T., Kromp-Kolb, H., Kruger, B., Land, C., Meloen, J., Papayannis, A., Priller, A., Seibert, P., Sprenger, M., Roelofs, G., Scheel, H., Schnabel, C., Siegmund, P., Tobler, L., Trickl, T., Wernli, H., Wirth, V., Zanis, P., et Zerefos, C. : Stratosphere-troposphere exchange : A review, and what we have learned from STACCATO, JGR, 108, doi :{10.1029/2002JD002490}, 2003.

Struthers, H., Brugge, R., Lahoz, W., O'Neill, A., et Swinbank, R. : Assimilation of ozone profiles and total column measurements into a global general circulation model, JGR, 107, doi :10.1029/2001JD000957, 2002.

Talagrand, O. : Assimilation of observations, an introduction, J. Meteorol. Soc. Jpn, 75, 191–209, 1997.

Terao, Y., Logan, J. A., Douglass, A. R., et Stolarski, R. S. : Contribution of stratospheric ozone to the interannual variability of tropospheric ozone in the northern extratropics, JGR, 113, doi :10.1029/2008JD009854, 2008.

Teyssèdre, 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., , et 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, 2007.

Thépaut, J.-N. et Courtier, P. : Four-dimensional variational data assimilation using the adjoint of a multilevel primitive-equation model, Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 117, 1225–1254, 1991.

Thorncroft, C. D., Hoskins, B. J., et McIntyre, M. E. : Two paradigms of baroclinic-wave life-cycle behaviour., QJRMS, 119, 17–55, doi :10.1002/qj.49711950903, 1993.

Thouret, V., Marenco, A., Logan, J., Nédélec, P., et Grouhel, C. : Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC airborne program and the ozone sounding network at eight locations, J. Geophys. Res., 103, 25 695–25 720, 1998.

Tiedtke, M. : A comprehensive mass flux scheme for cumulus parametrization in large scale models, Mon. Wea. Rev., 117, 1779–1800, 1989.

Tripathi, O. P., Leblanc, T., McDermid, I. S., Lefèvre, F., Marchand, M., et Hauchecorne, A. : Forecast, measurement, and modeling of an unprecedented polar ozone filament event over Mauna Loa Observatory, Hawaii , J. Geophys. Res., 111, D20 308, doi : 10.1029/2006JD007177, 2006.

Vogel, B., Pan, L. L., Konopka, P., Guenther, G., Mueller, R., Hall, W., Campos, T., Pollack, I., Weinheimer, A., Wei, J., Atlas, E. L., et Bowman, K. P. : Transport pathways and signatures of mixing in the extratropical tropopause region derived from Lagrangian model simulations, J. Geophys. Res., 116, doi :10.1029/2010JD014876, 2011.

von Clarmann, T., Clercq, C. D., Ridolfi, M., Hopfner, M., et Lambert, J. C. : The horizontal resolution of MIPAS, Atmos. Meas. Tech., 2, 47–54, doi :10.5194/amt-2-47-2009, 2009.

Wargan, K., Pawson, S., Stajner, I., et Thouret, V. : Spatial structure of assimilated ozone in the upper troposphere and lower stratosphere, J. Geophys. Res., 115, D24 316, doi :10.1029/2010JD013941, 2010.

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. 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. B., 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., Snyder, W. V., Tope, M. C., Wagner, P. A., et Walch, M. J. : The Earth Observing System Microwave Limb Sounder (EOS MLS) on the Aura satellite, IEEE Trans. Geosci. Remote Sens., 44(5), 1075–7092, 2006.

Weaver, A. et Courtier, P. : Correlation modelling on the sphere using a generalized diffusion equation, QJRMS, 127, 1815–1846, doi :10.1256/smsqj.57517, 2001.

Wei, M. Y. : A new formulation of the exchange of mass and trace constituents between the stratosphere and troposphere, J. Atmos. Sci., 44, 3079–3086, 1987.

Wei, M. Y. : A new formulation of the exchange of mass and trace constituents between the stratosphere and troposphere - Reply, JAS, 52, 2494, doi :{10.1175/1520-0469(1995)052⟨2494:R⟩2.0.CO;2}, 1995.

Wernli, H. et Sprenger, M. : Identification and ERA-15 climatology of potential vorticity streamers and cutoffs near the extratropical tropopause, JAS, 64, 1569–1586, doi :{10.1175/JAS3912.1}, 2007.

Wesely, M. J. : Parameterization of surface resistances to gazeous dry deposition in regional-scale numerical models, Atmos.-Environ., 23, 1293–1304, 1989.

Williams, J. E., Scheele, R., van Velthoven, P., Bouarar, I., Law, K., Josse, B., Peuch, V.-H., Yang, X., Pyle, J., Thouret, V., Barret, B., Liousse, C., Hourdin, F., Szopa, S., et Cozic, A. : Global chemistry simulations in the AMMA multimodel intercomparaison project, BAMS, 91, 611+, doi :{10.1175/2009BAMS2818.1}, 2010.

Williamson, D. L. et Rasch, P. J. : Two-dimensional semi-lagrangian transport with shape-preserving interpolation, Mon. Wea. Rev., 117, 102–129, 1989.

Wimmers, A., Moody, J., Browell, E., Hair, J., Grant, W., Butler, C., Fenn, M., Schmidt, C., Li, J., et Ridley, B. : Signatures of tropopause folding in satellite imagery, JGR, 108, doi :{10.1029/2001JD001358}, 2003.

Wirth, V. et Egger, J. : Diagnosing extratropical synoptic-scale stratosphere-troposphere exchange : A case study, QJRMS, 125, 635–655, doi :{10.1256/smsqj.55412}, 1999.

World Meteorological Organization : Definition of the tropopause, No. 6, 1957.

World Meteorological Organization : Atmospheric Ozone : 1985, Global ozone research and monitoring project report no. 16, 1986.

World Meteorological Organization : Scientific Assessment of Ozone Depletion : 2006, Global ozone research and monitoring project report no. 50, 2007.

Zahn, A., Brenninkmeijer, C. A. M., Maiss, M., Scharffe, D. H., Crutzen, P. J., Hermann, M., Heintzenberg, J., Wiedensohler, A., Gusten, H., Heinrich, G., Fischer, H., Cuijpers, J. W. M., et van Velthoven, P. F. J. : Identification of extratropical two-way troposphere-stratosphere mixing based on CARIBIC measurements of O-3, CO, and ultrafine particles, JGR, 105, 1527–1535, doi :10.1029/1999JD900759, 2000.