



Impact de la variabilité solaire sur l’ozone de la moyenne atmosphère

Sébastien Bossay

► To cite this version:

Sébastien Bossay. Impact de la variabilité solaire sur l’ozone de la moyenne atmosphère. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Université Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines, 2015. Français. NNT: . tel-01139519v1

HAL Id: tel-01139519

<https://insu.hal.science/tel-01139519v1>

Submitted on 6 Apr 2015 (v1), last revised 5 Nov 2015 (v2)

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

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

Thèse de Doctorat de l'Université Versailles Saint Quentin en Yvelines

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

Spécialité : Climatologie

Impact de la variabilité solaire sur l'ozone de la moyenne atmosphère

Présentée par

Sébastien BOSSAY

Soutenue le 2 Février 2015
devant le jury composé de :

Président :

M^{me} CIARLETTI Valérie

Rapporteurs :

M. DUDOK DE WIT Thierry

M. CARIOLLE Daniel

Examineur :

M. BOLSEE David

Directeurs de thèse :

M. BEKKI Slimane

M^{me} MARCHAND Marion

Table des matières

Introduction	7
1 Contexte scientifique	11
1.1 Le Soleil et sa variabilité	12
1.1.1 Le Soleil : notre étoile	12
1.1.2 La variabilité solaire	15
1.1.3 Le rayonnement solaire	18
1.2 L'atmosphère terrestre	20
1.2.1 Structure verticale de l'atmosphère	20
1.2.2 Dynamique, activité ondulatoire et transport dans la moyenne atmosphère	22
1.3 Photochimie de l'atmosphère	24
1.3.1 Photochimie de l'oxygène moléculaire	24
1.3.2 Photochimie de l'ozone	26
1.3.3 Photochimie de la vapeur d'eau	27
1.4 Influence solaire sur le système Terre	31
1.4.1 Influence particulière	31
1.4.2 Influence radiative	33
2 Outils	35
2.1 Données solaires	36
2.1.1 Modèle NRL-SSI	36
2.1.2 Modèle MGNM-SSI	37
2.2 Données ozone	38
2.2.1 MLS/UARS	38
2.2.2 MLS/Aura	38
2.2.3 GOMOS/ENVISAT	39
2.3 LMDz-Reprobus : un modèle de chimie climat (CCM)	40
2.3.1 Définition d'un CCM	40
2.3.2 LMDz-Reprobus	41
3 Méthodes	43
3.1 Analyse spectrale	44
3.1.1 Analyse FFT	44
3.1.2 Périodogramme de Lomb-Scargle	45
3.1.3 Analyse en ondelettes	47
3.2 Analyse croisée	47
3.2.1 Corrélation et Régression	47

3.2.2	Cohérence	49
3.3	Analyse statistique	49
3.3.1	Test de Student	49
3.3.2	Bootstrap	50
4	Sensitivity of tropical stratospheric ozone to rotational UV variations estimated from UARS and Aura MLS observations during the declining phases of solar cycles 22 and 23	51
4.1	Introduction	54
4.2	Data description	57
4.2.1	205 nm solar flux	57
4.2.2	Tropical stratospheric ozone	58
4.3	Results and discussion	59
4.3.1	Analysis of raw data	59
4.3.2	Analysis of filtered data	68
4.3.3	Analysis of interannual variations	72
4.4	Summary and concluding remarks	78
5	Sensitivity of tropical stratospheric ozone to rotational UV variations at different time scales : observations vs model	83
5.1	Introduction	86
5.2	Data and Model description	87
5.2.1	The 205 nm solar flux (or F205)	87
5.2.2	Tropical stratospheric ozone satellite observations	88
5.2.3	LMDz-Reprobus	89
5.3	Ozone response to the 27-day solar cycle over a 3-year time scale	90
5.4	Temporal variability of the ozone response	100
5.5	Summary and concluding remarks	106
6	Mesospheric ozone response to solar rotation cycle observed by the GOMOS satellite instrument	111
6.1	Introduction	116
6.2	Ozone and solar data	118
6.3	Results	118
6.4	Summary and concluding remarks	125
	Conclusions	129
	Acronymes	137
	Références	139

Introduction

Depuis maintenant plusieurs décennies, les mesures de température réalisées aux quatre coins du globe montrent un réchauffement climatique sans équivoque ($+0.85^{\circ}\text{C}$ depuis 1880, *IPCC et al.* [2013]). Les trois dernières décennies ont été successivement les décennies les plus chaudes depuis 1400 ans et l'optimum climatique médiéval. Ce réchauffement ne correspond à aucune variabilité naturelle intrinsèque du système Terre observée au cours de ces derniers millénaires. La contribution de l'homme dans ce réchauffement ne fait plus guère de doute. Une notion apparaît importante lorsque la problématique du réchauffement climatique est abordée, c'est la notion de forçage radiatif. En effet, l'équilibre thermique de la Terre, qui conditionne la stabilité du climat, suppose que l'énergie qui entre dans le système terrestre est égale à l'énergie qui en sort. Mais certaines modifications peuvent entraîner une variation des échanges d'énergie, perturbant ainsi cet équilibre. Le déséquilibre engendré se traduit par une tendance au réchauffement ou au refroidissement. Le forçage radiatif représente la variation du bilan énergétique de la Terre. Il est exprimé en W.m^{-2} et souvent calculé par rapport au bilan énergétique d'une année de référence (*e.g.* 1880 for *IPCC et al.* [2013]). Le forçage radiatif est positif lorsqu'il traduit une tendance au réchauffement et est négatif lorsqu'il traduit une tendance au refroidissement.

Afin de quantifier l'impact de l'activité humaine sur les variations climatiques observées au cours des dernières années, il est nécessaire d'évaluer la contribution du forçage naturel. Or dans le contexte actuel, les contributions exactes de chaque forçage (*i.e.* anthropique ou naturel) restent encore sujettes à discussion. Cette détermination représente également un enjeu majeur pour les prédictions futures du changement climatique. Il est donc important de quantifier les contributions des forçages naturels, et en particulier le forçage solaire qui représente la composante principale de cette variabilité naturelle du climat. Les estimations récentes issues du 5^{ème} rapport de l'*IPCC et al.* [2013] montrent que le forçage radiatif d'origine solaire a contribué à hauteur de 0.05 W.m^{-2} au réchauffement climatique entre 1750 (période pré-révolution industrielle) et 2011. Cette contribution est donnée avec une incertitude comprise entre 0.00 et 0.10 W.m^{-2} . Elle est nettement plus faible que celle estimée pour le forçage radiatif d'origine anthropique, sur la même période, dont la contribution s'élève à 2.29 W.m^{-2} (avec une fourchette comprise entre 1.13 et 3.33 W.m^{-2}). Ce 5^{ème} rapport suggère également que les chan-

gements radiatifs d'origine solaire ont joué un rôle majeur jusqu'au début de la deuxième moitié du XX^{ème} siècle (1950) à partir de laquelle le forçage radiatif issu des gaz à effet de serre d'origine anthropique est devenu dominant.

L'impact de la variabilité solaire sur le climat est assez complexe. En effet, cette variabilité influence le climat suivant différents mécanismes mais également à différents échelles de temps. On peut classer ces différents mécanismes selon leurs effets sur le climat. On peut distinguer plusieurs effets : l'effet direct et les effets indirects. L'effet direct est purement radiatif et se traduit par la variation d'énergie solaire atteignant le système Terre (atmosphère + océan). Les autres effets sur le climat sont indirects. Le plus important de ces effets est l'effet de la variabilité solaire sur la stratosphère et plus particulièrement sur l'ozone stratosphérique. En effet, l'ozone est le gaz radiatif clé de la stratosphère, il joue donc un rôle primordial dans l'équilibre radiatif de l'atmosphère.

L'étude des différents processus à l'origine du réchauffement climatique a progressé avec la multiplication des observations et des moyens de calcul. Depuis l'avènement de l'ère spatiale (fin des années 70), de nombreuses données satellitaires sont donc devenues disponibles. Les récentes mesures satellitaires de la variabilité solaire UV ont montré un certain consensus [DeLand and Cebula, 2012]. Cette variabilité est également bien reproduite par les modèles de reconstruction du flux ultraviolet (*e.g.* Lean [1997] ; Krivova *et al.* [2006] ; Unruh *et al.* [2012] ; Lean and DeLand [2012]). Cependant, cette situation a évolué suite au lancement de l'instrument SIM à bord du satellite SORCE en 2003. En effet, les mesures du flux solaire par l'instrument SIM/SORCE ont montré des résultats totalement inattendus. Les données mesurées par SIM/SORCE montrent une diminution 4 à 6 fois supérieure dans le domaine UV (200-400 nm) entre 2004 et 2008 [Harder *et al.*, 2009]. Cette forte diminution est compensée par une augmentation dans le domaine visible de telle sorte que la variabilité de l'éclairement solaire total (flux solaire intégré sur toutes les longueurs d'onde) reste équivalente à celle décrite par les autres satellites et modèles de reconstruction entre le minimum et le maximum d'un cycle solaire de 11 ans (à savoir 0.1%). Lorsque le forçage solaire issu des données SIM/SORCE est utilisé dans les modèles de chimie-climat, la réponse du système Terre est très différente de celle issue du forçage solaire d'un modèle de reconstruction communément utilisé (modèle NRL-SSI, Lean *et al.* [2005]). Par exemple, les taux de chauffage (SW) sont beaucoup plus grands dans la haute stratosphère. De plus la réponse de l'ozone sur la période 2004-2007 apparaît positive dans la basse stratosphère et négative au-dessus de 45 km alors que celle obtenue à partir du forçage reconstruit présente des valeurs positives sur l'ensemble du domaine vertical. Ces différences radiatives et photochimiques peuvent fortement modifier notre compréhension de l'impact de la variabilité solaire sur la stratosphère mais également sur le climat. De plus, les résultats de modèles forcés à partir des spectres solaires de SIM/SORCE semblent être en meilleur accord avec certains jeux de données satellitaires que ne peuvent l'être les résultats issus des modèles de reconstruction de spectre solaire [Haigh *et al.*, 2010; Merkel *et al.*, 2011].

Néanmoins, les mesures SIM/SORCE restent entachées d'incertitudes d'ordre statistique et ins-

trumental. Ceci tendrait à nuancer les résultats précédents, comme en témoigne l'étude réalisée par Woods [2012] dans laquelle de possibles erreurs de calibration de l'instrument SIM pourraient être à l'origine d'une surestimation d'un facteur deux de la variabilité du flux solaire dans le domaine UV. De plus, les données SIM utilisées dans ces études ne couvrent pas un cycle solaire complet et, il est ainsi nécessaire de les extrapoler ce qui ajoute de l'incertitude [Garcia, 2010]. Au-delà de ces incertitudes, les données SIM pourraient remettre en cause notre compréhension des différents processus stratosphériques induits par la variabilité solaire. Le débat autour des données ozone SIM/SORCE reste encore ouvert en attendant de nouvelles données et de nouvelles études.

C'est dans le cadre de cette problématique que s'inscrit cette thèse qui a pour titre : "*Impact de la variabilité solaire sur l'ozone de la moyenne atmosphère*". L'objectif est de mieux quantifier la relation entre la variabilité solaire et la variabilité de l'ozone, relation clé dans l'effet indirect solaire sur l'atmosphère et le climat. C'est un sujet vaste, c'est pourquoi j'ai focalisé ma thèse sur l'étude de l'impact de la variabilité solaire sur la photochimie de l'ozone aux courtes échelles de temps. En effet, dans un souci de robustesse, l'étude du cycle rotationnel à 27 jours fournit une statistique de données beaucoup plus importante que celle du cycle à 11 ans alors que les mécanismes photochimiques mis en jeu lors de ces deux cycles sont les mêmes.

Cette thèse s'articule en sept chapitres. Le premier chapitre résume les connaissances actuelles sur la structure du Soleil, sa variabilité ainsi que les différentes caractéristiques de la moyenne atmosphère. Il détaille également les différentes influences solaires sur le climat connues à ce jour. Le deuxième chapitre est consacré à la description des différents jeux d'observations ainsi que du modèle de chimie-climat LMDz-Reprobus utilisés dans les travaux de cette thèse. Puisque l'analyse du signal solaire dans les séries de données nécessite une approche statistique, le troisième chapitre présente les différentes méthodes d'analyse utilisées dans cette thèse. L'étude de la relation entre le flux solaire ultraviolet et l'ozone stratosphérique à partir de deux séries d'observations satellitaires est présentée dans le chapitre 4. Basée sur la même méthodologie que le chapitre précédent, l'étude de la réponse de l'ozone stratosphérique aux variations d'UV est réalisée à partir des sorties du modèle de chimie-climat LMDz-Reprobus dans le chapitre 5. La variabilité temporelle du cycle à 27 jours sur l'ozone stratosphérique à différentes échelles de temps est également examinée dans ce chapitre. Le chapitre 6 présente une étude de la réponse de l'ozone dans la mésosphère aux variations solaires rotationnelles à partir d'une série d'observations satellitaires. Enfin, le chapitre 7 rappelle les différentes conclusions de chaque chapitre et présente les perspectives de ce travail de thèse.

Chapitre 1

Contexte scientifique

Sommaire

1.1	Le Soleil et sa variabilité	12
1.1.1	Le Soleil : notre étoile	12
1.1.2	La variabilité solaire	15
1.1.3	Le rayonnement solaire	18
1.2	L'atmosphère terrestre	20
1.2.1	Structure verticale de l'atmosphère	20
1.2.2	Dynamique, activité ondulatoire et transport dans la moyenne atmosphère . .	22
1.3	Photochimie de l'atmosphère	24
1.3.1	Photochimie de l'oxygène moléculaire	24
1.3.2	Photochimie de l'ozone	26
1.3.3	Photochimie de la vapeur d'eau	27
1.4	Influence solaire sur le système Terre	31
1.4.1	Influence particulière	31
1.4.2	Influence radiative	33

1.1 Le Soleil et sa variabilité

1.1.1 Le Soleil : notre étoile

L'homme contemple le Soleil depuis l'Antiquité et de nombreuses civilisations lui ont voué un culte et célébré sa puissance. Ce fut la divinité fondamentale, celle qui apportait le bonheur par sa présence et le malheur par son absence. Le Soleil fut donc depuis toujours celui qui était le mystère, celui qui voyageait dans le Ciel, qui faisait le jour et la nuit, qui venait après la pluie et qui apportait chaleur et bien-être. A travers les âges, il fut successivement nommé Râ puis Aton dans l'Égypte ancienne. Il fut incarné par le Dieu Apollon dans la Grèce Antique et personnifié par le Dieu Sol dans la mythologie romaine. On lui prêta également les noms de Sól dans la mythologie nordique et de Huitzilopochtli chez les Aztèques. Aujourd'hui le Soleil est la source principale d'énergie pour le système Terre (atmosphère, océan). Il fournit plus de 99% de l'énergie entrant dans ce système. La question de son impact sur le changement climatique observé au cours de ces dernières décennies est donc légitime.

Le Soleil comme toutes les étoiles s'est formé à partir de gaz interstellaire. Le gaz interstellaire se présente sous la forme de nuages de gaz (ionisés, atomiques ou moléculaire) et de poussière, sièges des processus menant à la formation des étoiles. C'est à la suite d'une collision avec un autre nuage de gaz ou de par la présence de turbulences locales que le processus d'accrétion, processus fondamental de la formation des étoiles, va débuter. Les grands nuages de gaz se contractent et se fractionnent partiellement en nuages beaucoup plus petits qui vont également s'effondrer. Ces derniers donneront chacun naissance à une ou plusieurs étoiles. Chaque petit nuage subit alors des phases de contraction successives, au cours desquelles la densité, la température et la pression du gaz augmentent simultanément. Lors de la contraction gravitationnelle, la température au cœur de l'étoile augmente peu à peu jusqu'à atteindre une température critique (1 million de Kelvins), température au-delà de laquelle les premières réactions nucléaires s'amorcent. Ces réactions sont à l'origine de la luminosité stellaire et de la transmutation des différents éléments chimiques présents au sein de l'étoile. Rapidement, ce sont les réactions nucléaires proton-proton (fusion de quatre atomes d'hydrogène pour former un atome d'hélium) qui vont dominer. L'étoile entre alors dans une phase stable de son existence durant laquelle la chaleur dégagée en surface est compensée par l'énergie produite en son cœur via les réactions nucléaires. La vie d'une étoile peut être représentée sur le diagramme de Hertzsprung-Russel en fonction de sa luminosité, de sa température de surface ainsi que de son type spectral. Le Soleil, qui est situé sur la séquence principale, est actuellement dans sa phase d'évolution lente. Sa température de surface il y a 4.5 milliards n'était que de 2% inférieure à celle d'aujourd'hui (5780 K). Son séjour sur la séquence principale va durer 10 milliards d'années. La phase qui a précédé cette évolution stable a été beaucoup plus rapide puisqu'il est en effet estimé qu'il n'a fallu au Soleil que 50 millions d'années pour atteindre cet état stable à partir duquel le Soleil commence à brûler son hydrogène. Dans 5 milliards d'années, l'hydrogène aura été entièrement consommé ; c'est à ce moment-là que la fusion de l'hélium débutera pour former des éléments plus lourds (carbone, oxygène). Le diamètre solaire augmentera

alors de manière considérable. Il restera encore un million d'années à ce stade de géante rouge, puis il se contractera soudain pour former une naine blanche, étape finale de la vie d'une étoile de ce type.

Le Soleil se compose d'une structure interne divisée en plusieurs couches (noyau, zone radiative et zone convective), d'une couche superficielle visible appelée photosphère et d'une structure externe composée de la chromosphère et de la couronne. Les deux dernières couches citées constituent l'atmosphère solaire.

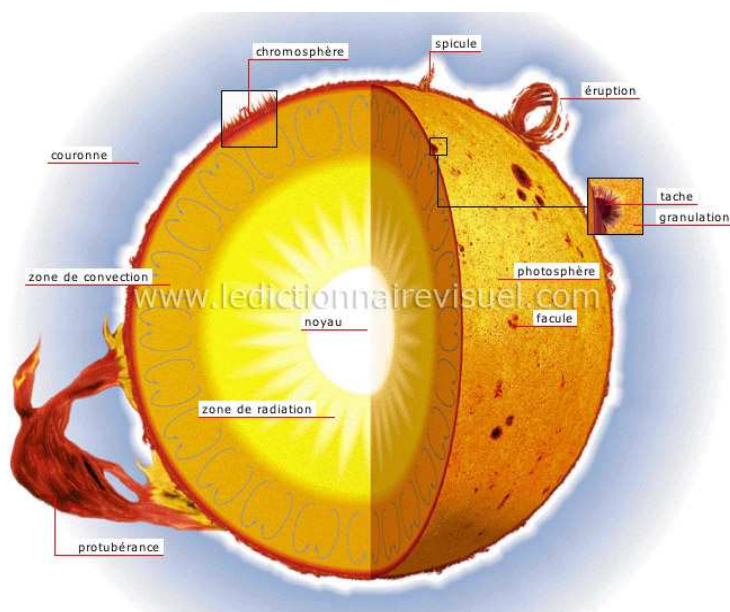


Fig. 1: Schéma représentant la vue en coupe de la structure interne du Soleil, (source : [http ://www.ikonet.com/fr/ledictionnairevisuel/](http://www.ikonet.com/fr/ledictionnairevisuel/))

La structure interne du Soleil n'étant pas observable directement, il a fallu développer des méthodes permettant la détermination de cette structure par la seule observation superficielle du Soleil. Ce n'est qu'à partir de la deuxième moitié du XX^{ème} siècle que cette structure interne a pu être déterminée avec l'avènement de l'héliosismologie. L'héliosismologie est la discipline qui étudie la propagation des différentes ondes sonores à travers le Soleil. Les propriétés de ces ondes dépendant des variations des conditions physiques et des mouvements à l'intérieur du Soleil, la sismologie stellaire offre la possibilité de sonder une étoile de la même manière que les séismes renseignent les géophysiciens sur la structure interne du globe terrestre. L'héliosismologie a ainsi permis de déterminer la présence de trois couches internes aux propriétés physiques différentes : le noyau, la zone de radiation et la zone de convection (Figure 1). Dans la région centrale, règnent des températures et des pressions élevées (15 millions de degrés kelvin et 150 g.cm^{-3}). Dans ces conditions, la matière se comporte comme un plasma. Cette région fournit de l'énergie par le processus de fusion thermonucléaire de l'hydrogène en hélium. En effet, quatre atomes d'hydrogène vont fusionner pour former un atome d'hélium ; le défaut de masse

engendré par cette fusion ($4 m(\text{H}) > m(\text{He})$) va engendrer une libération considérable d'énergie (relation d'Einstein $E = m.c^2$).

L'énorme quantité d'énergie libérée par les réactions de fusion thermonucléaire est transférée vers l'extérieur selon différents mécanismes. Le premier mécanisme est un mécanisme de transfert radiatif. La zone dite "*radiative*", dans laquelle intervient ce mode de transport, est constituée de gaz hautement ionisé. Les photons, émis au cours des réactions de fusion dans le cœur, sont absorbés par des électrons libres, des ions ou des atomes, puis réémis, puis réabsorbés et ainsi de suite. Ce phénomène étant statistique, aucune direction d'émission n'est privilégiée, c'est pourquoi un photon met très longtemps à s'échapper (plusieurs dizaines voire centaines de millions d'années). Ce mode de transfert perdure tant que la densité est suffisamment grande. Cependant, en s'éloignant du centre, la matière est de plus en plus diluée dans un grand volume entraînant une diminution de la densité et de la température. La zone radiative s'arrête lorsque la température est devenue assez basse pour assurer la recombinaison de l'hydrogène et pour que les atomes conservent leurs électrons.

Lorsque les photons atteignent cette zone, le transport par convection se substitue au transport par radiation, c'est la zone dite "*convective*". Dans certaines conditions de température et de pression, il se crée des zones où tout changement de température d'une zone à l'autre rend la matière instable et provoque des brassages dans les couches de l'étoile, brassages similaires au phénomène de convection observé dans une casserole d'eau chauffée par exemple. La matière chauffée ne pouvant se refroidir par rayonnement, elle devient moins dense que la matière située au-dessus et s'élève jusqu'à des zones où les conditions permettent la libération de l'énergie sous forme de rayonnement, *i.e.* à la surface. Cette matière se refroidit et redescend ensuite vers l'intérieur de l'étoile.

La photosphère est la couche superficielle du Soleil mais également la source de plus de 99% du rayonnement solaire total. Son épaisseur est d'environ 500 km et sa température moyenne est de 5780 K. C'est la région dans laquelle se forme la lumière visible émise par le Soleil. Le spectre électromagnétique de la photosphère est constitué de raies d'absorption (raies de Fraunhofer) qui sont les signatures du processus d'absorption de la lumière par les différents composants atomiques de l'atmosphère solaire. Les raies d'absorption sont caractéristiques des éléments chimiques présents dans l'atmosphère solaire ; c'est pourquoi l'analyse de ces raies permet une détermination de la composition chimique de notre étoile. Le Soleil est essentiellement composé d'hydrogène (79%), d'hélium (20%) plus 1% d'éléments lourds (carbone, azote, néon, magnésium, silicium, argon, calcium, fer, nickel). Ces raies se superposent à un continuum que l'on peut en partie approximer à celui d'un corps noir. La photosphère présente un aspect irrégulier du fait de la présence d'un réseau de granules liés à l'activité de la zone convective. C'est également au niveau de la photosphère qu'apparaissent les taches solaires et les facules.

La chromosphère est la couche d'atmosphère solaire située juste au-dessus de la photosphère.

Elle présente le long de ses 2500 kilomètres d'épaisseur, une température croissante et une densité décroissante lorsqu'on s'éloigne du Soleil. La chromosphère émet peu dans le domaine visible. Mais son rayonnement continu est dominant dans l'infrarouge, le domaine millimétrique et l'ultraviolet. C'est dans ce dernier domaine que l'on va observer de nombreuses raies d'émission. La chromosphère a été découverte lors d'éclipses solaires sous la forme d'un petit liseré de couleur rose attribuable au rayonnement intense de la raie $H\alpha$ de l'hydrogène à 656 nm.

Aux altitudes supérieures est située la couronne solaire qui est seulement observable aux moments des éclipses ou à l'aide d'un instrument particulier, le coronographe. Elle s'étend sur un à deux millions de kilomètres et sa température peut atteindre un million de degrés ; il en résulte que son spectre est fortement constitué de raies d'émission. La couronne est le siège d'émissions radioélectriques dont la longueur d'onde en moyenne augmente avec l'altitude. Ces émissions, en partie directement mesurables à partir du sol, servent à construire les différents indices d'activité solaire utilisés en physique solaire et en géophysique.

1.1.2 La variabilité solaire

Le Soleil est une étoile variable dont les propriétés intrinsèques entraînent une variabilité de son activité. Cette activité va varier à la fois quasi-cycliquement, à travers des cycles solaires, mais également de manière très irrégulière à travers des événements ponctuels telles que les éruptions solaires et les éjections de masse coronale entre autres. Les différents cycles solaires se caractérisent par des échelles de temps allant de quelques jours à plusieurs centaines voire milliers d'années. Bien avant le début de l'ère spatiale, l'activité solaire a pu être observée via la présence à la surface du Soleil de structures plus sombres : les taches solaires. Les taches solaires ont été historiquement observées en Occident depuis le début du XVII^{ème} siècle et le développement de la lunette astronomique par différents astronomes (*e.g.* Thomas Harriot, Galilée, Johan Fabricius, Christopher Scheiner).

L'observation de ces taches solaires (Figure 2) a mis en évidence l'existence d'un cycle solaire de 10-12 ans, appelé également cycle de Schwabe. La variabilité de l'éclairement solaire total associée au cycle de 11 ans résulte de la distribution et de la taille des différentes formes présentes à la surface du Soleil : les taches solaires et les facules. Ces formes témoignent d'une activité magnétique solaire très intense. L'apparition de ces deux types de structures, à la surface du Soleil, est imputable à l'intense activité magnétique qui règne au sein du Soleil. Cette activité magnétique va se manifester par l'émergence de tubes magnétiques à la surface du Soleil. Ces tubes magnétiques, sièges d'un intense champ magnétique, vont inhiber l'apport d'énergie en surface (au niveau de la photosphère) depuis la zone convective. Ce déficit d'énergie va se traduire visuellement par l'apparition d'une zone sombre à la surface du Soleil : c'est la tache solaire (*sunspot* en anglais). Elle correspond à l'intersection du tube magnétique avec la surface du Soleil. Celle-ci apparaît sombre car plus froide ($T = 4200$ K au centre de celles-ci mais en moyenne de 5200 K) par rapport à la photosphère ($T = 5780$ K) environnante.

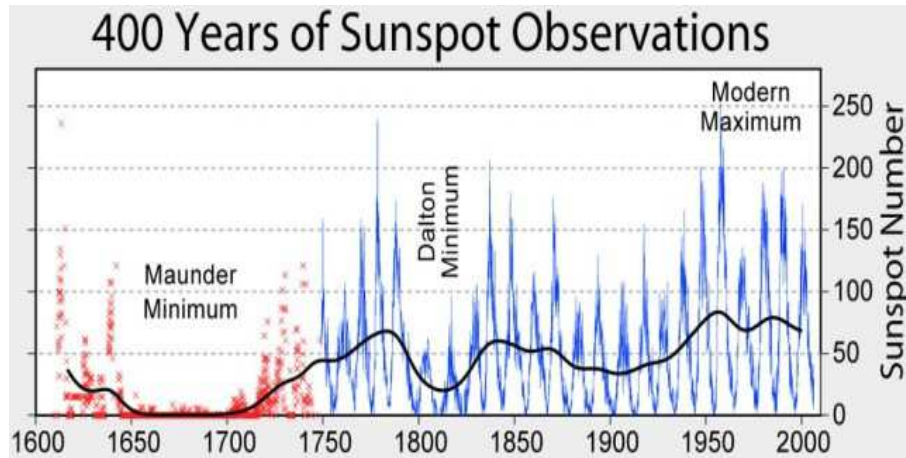


Fig. 2: Série temporelle des taches solaires observées au cours des 400 dernières années (source : Royal Observatory of Belgium, Bruxelles)

L'énergie bloquée par l'intense champ magnétique retourne principalement dans la zone convective qui possède une énorme capacité thermique et ne sera donc pas perturbée par cet excès d'énergie. En revanche, une petite partie de cette énergie bloquée peut venir suralimenter les zones voisines de la tache. Ce sont les facules, plages plus brillantes et plus chaudes avoisinant presque systématiquement les taches solaires. Ces facules ont une particularité : elles apparaissent postérieurement à la tache mais lui survivent quelques temps après sa disparition. Il existe bien quelques fois des taches sans qu'il y ait de facules dans leur voisinage, et inversement des facules sans taches, mais la cause de ces inhomogénéités fait encore l'objet de débats. Les facules représentent environ 3 à 4% de la surface totale du Soleil lors d'un maximum solaire.

Une théorie sur l'origine de ce cycle undécennal a été proposée par *Babcock and Babcock* [1955]. La Figure 3 représente les différentes étapes de cette théorie qui peuvent se caractériser comme suit :

- 1- Au début d'un cycle de 11 ans, les lignes du champ magnétique sont orientées du sud vers le nord. Sous l'action de la rotation différentielle, ces lignes se rapprochent les unes des autres puis s'étirent progressivement le long de l'équateur solaire.
- 2- L'intensité du champ magnétique augmente alors provoquant une augmentation de la pression magnétique qui prend le dessus sur la pression gazeuse. Ceci a pour conséquence l'émergence à la surface du Soleil de tubes magnétiques à l'origine de l'apparition des premières taches solaires (en général sous la forme de paires de taches).
- 3- Les mouvements de convection associés à la granulation érodent le champ des taches de queue qui diffusent vers le pôle de polarité opposée.

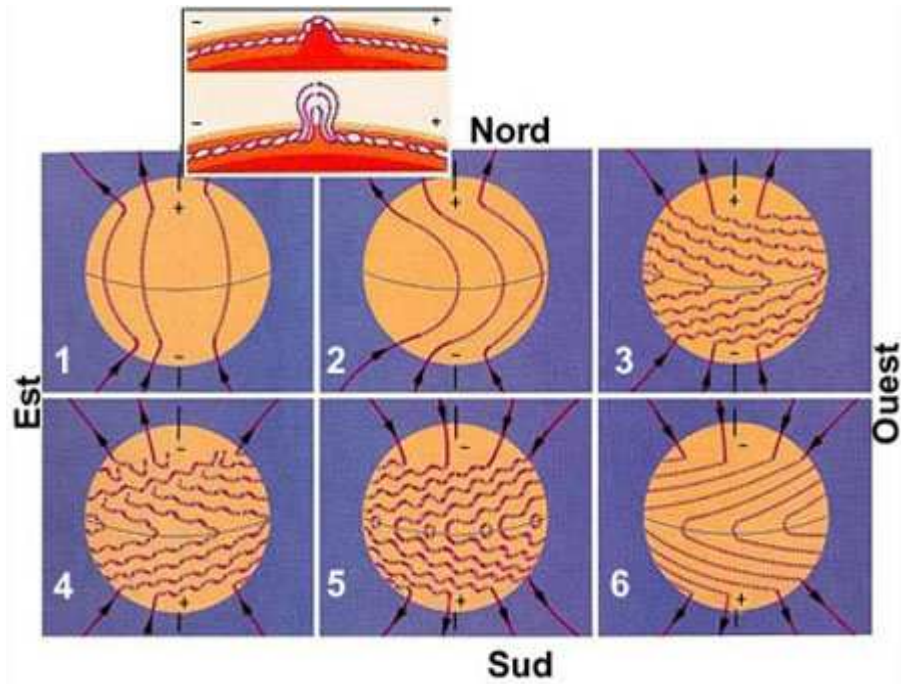


Fig. 3: Schéma explicitant les différentes étapes du cycle de 11 ans des taches et des inversions magnétiques (W.Adams, Big Bear, USA)

4- Les taches de tête se recombinent alors aux taches de queue de paires situées plus à l'ouest ; les lignes de champ s'inversent ainsi peu à peu.

5- Les lignes de champ se déroulent de plus en plus sous l'action de la rotation différentielle.

6- Au bout de 11 ans, le champ magnétique s'est inversé partout. Il faudra environ 11 ans de plus au Soleil pour retourner à sa configuration magnétique initiale. C'est pourquoi le cycle magnétique solaire a une durée moyenne de 22 ans.

Le cycle solaire qui a été exclusivement étudié dans cette thèse n'est pas le cycle de 11 ans mais le cycle solaire à 27 jours (période synodique ; la période sidérale est plus proche des 25 jours). Ce cycle est d'origine purement géométrique : il est issu de la combinaison entre la rotation différentielle du Soleil sur lui-même (Figure 4) et la présence à la surface du Soleil de taches solaires et de facules, indicateurs de l'activité magnétique. Le passage d'une tache solaire selon l'axe Soleil-Terre entraîne une diminution de la constante solaire tandis que le passage d'une facule entraîne une augmentation dans le domaine visible et UV.

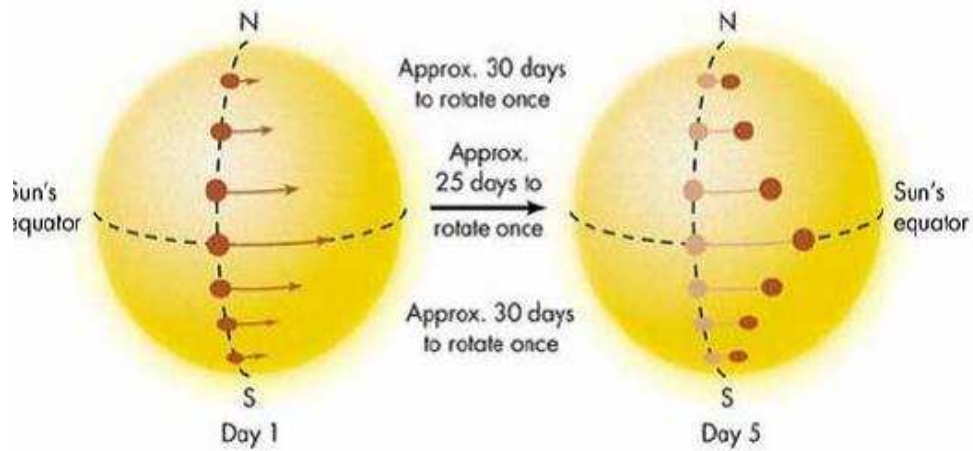


Fig. 4: Schéma représentant la rotation différentielle du Soleil

L'intérêt d'étudier le cycle à 27 jours est multiple. En effet, la réponse de l'atmosphère au cycle solaire undécennal ne peut être étudiée qu'à partir d'une base de données couvrant au maximum quatre cycles solaires (depuis 1978 et le début de l'ère spatiale). De plus sur cette période, les séries de données atmosphériques ont été perturbées soit par des éruptions volcaniques (El Chichón, 1982 ; Pinatubo, 1991) soit par des changements d'origine anthropique (augmentation des concentrations de gaz à effet de serre). C'est pourquoi, l'addition de ces facteurs rend l'extraction d'un signal solaire à partir des données atmosphériques difficile et incertaine. Afin d'obtenir un résultat robuste de la réponse de l'atmosphère aux variations solaires, l'étude de l'impact du cycle solaire à 27 jours sur l'atmosphère est plus intéressant que celui du cycle de 11 ans. Cependant, l'amplitude de ce cycle est plus faible que celle du cycle à 11 ans. Elle peut toutefois atteindre des valeurs comparables à celles du cycle à 11 ans lors de période de maximum solaire.

A des échelles de temps plus grandes, d'autres cycles ont été observés à travers des indicateurs terrestres de l'activité solaire, les séries d'isotopes cosmogéniques (^{10}Be et ^{14}C) : le cycle de Gleissberg d'une durée de 90 ans ou encore le cycle de Suess d'une périodicité de 180-200 ans mais aucun de ces cycles n'est pertinent dans le cadre de cette thèse [Nesme-Ribes *et al.*, 2000].

1.1.3 Le rayonnement solaire

Le Soleil possède un spectre électromagnétique qui s'étend des très courtes longueurs d'onde (rayons γ) aux très grandes longueurs d'onde (ondes radioélectriques). Le spectre du Soleil est en général assimilé au spectre d'un corps noir dont la température de surface est d'environ 5780 K. En termes d'énergie, il rayonne de manière comparable dans le domaine visible (46% du rayonnement total entre 0.39 μm et 0.77 μm) et le domaine infrarouge (46% au-delà de 0.77 μm).

La grandeur la plus communément utilisée pour caractériser le rayonnement solaire est la TSI

(Total Solar Irradiance). La TSI représente la quantité d'énergie, intégrée sur tout le spectre électromagnétique, qui atteint perpendiculairement une surface d'un mètre carré au sommet de l'atmosphère. Pendant très longtemps, la TSI a été supposée constante ce qui est à l'origine de l'ancien terme de «constante solaire» utilisé pour caractériser cette grandeur. Ce n'est qu'à partir de 1978 que la TSI a été mesurée continuellement par satellite. Ces mesures ont révélé une variation faible (0.1%) mais significative de la TSI sur une échelle de temps d'un an, échelle de temps comparable à celle observée à partir de la série temporelle des taches solaires. La valeur moyenne de cette TSI était estimée à $1365.4 \pm 1.3 \text{ W.m}^{-2}$. Ce n'est que dernièrement avec le lancement des missions PICARD [Schmutz et al., 2009] et SORCE [Lawrence et al., 2000] que cette valeur a été réévaluée. Actuellement, la nouvelle valeur acceptée de la TSI est de $1360.8 \pm 0.5 \text{ W.m}^{-2}$ [Kopp and Lean, 2011; Schmutz et al., 2012]. Il faut combiner les mesures réalisées par plusieurs satellites pour obtenir des séries temporelles longues de la TSI. Cette combinaison de données implique une très bonne connaissance de la dégradation de chaque instrument dans le but d'appliquer à ces données les corrections adéquates. Ces corrections permettent de définir la bonne inter-calibration à appliquer entre les données de chaque satellite. Trois séries composites de la TSI ont ainsi été construites : les composites de l'IRMB [Dewitte et al., 2004], de l'ACRIM [Willson and Mordvinov, 2003] et du PMOD [Fröhlich, 2006] afin de caractériser l'évolution temporelle de la TSI (Figure 5).

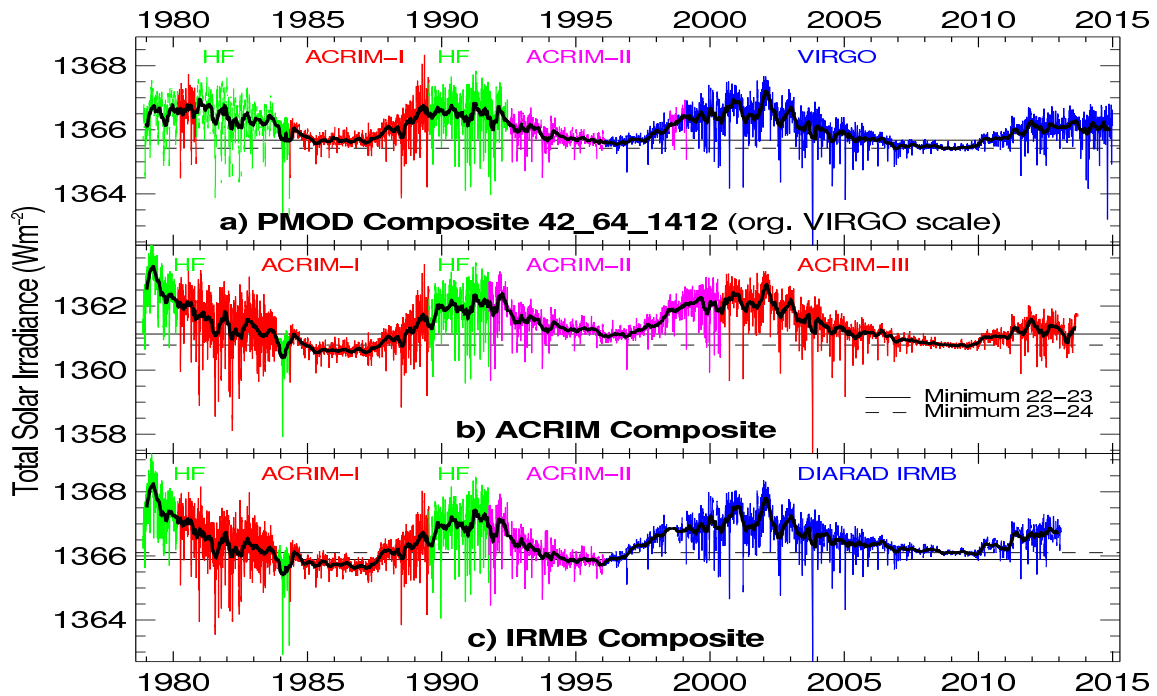


Fig. 5: Composites de la TSI entre 1978 et 2007 : (a) composite du PMOD, (b) composite de l'ACRIM et (c) composite de l'IRMB. Les lignes de couleur représentent les données journalières de la TSI mesurées par différents instruments associés chacun à une couleur. Les lignes noires épaisses indiquent les moyennes glissantes réalisées sur 81 jours. Les lignes noires horizontales représentent la valeur du minimum de 1985 (entre les cycles solaires 21 et 22) (source : <http://www.pmodwrc.ch/>)

L'analyse de ces séries composites a montré la présence, à l'instar de la série de taches solaires, d'un cycle à 11 ans. Cependant, bien que la variabilité à court terme s'accorde bien entre ces trois séries composites, aucune tendance à long terme significative ne se dégage de ces séries composites, ces séries exposant des tendances à long terme différentes (tendance négative dans la série issue du PMOD, positive pour ACRIM).

Bien qu'il n'ait pas été mesuré de manière continue depuis 1978, le rayonnement ultraviolet ($\lambda < 400$ nm) a été une source d'intérêt très importante de par sa plus grande variabilité temporelle par rapport à celle de la TSI mais également de par son impact sur la moyenne et haute atmosphère. Le rayonnement UV est émis depuis la photosphère et la chromosphère. Dans le domaine du proche UV et aux longueurs d'onde plus courtes, la variabilité a comme caractéristique d'augmenter lorsque la longueur d'onde diminue. Ainsi pour le cycle de 11 ans, vers 200-205 nm, cette variabilité atteint quelques pourcents ; tandis qu'en dessous de 200 nm, elle peut atteindre quelques dizaines de pourcents. Comme pour la TSI, les variabilités associées au cycle de 27 jours, au cycle de 11 ans se retrouvent dans les séries temporelles du flux UV.

1.2 L'atmosphère terrestre

1.2.1 Structure verticale de l'atmosphère

L'atmosphère est une fine couche gazeuse qui entoure notre planète. Elle se compose de 78,09% de diazote (N_2), 20,95% de dioxygène (O_2), 0,93% d'argon (Ar) et d'une multitude de gaz traces parmi lesquels certains jouent un rôle au niveau radiatif ou photochimique malgré leurs faibles concentrations. Dans les 100 premiers kilomètres, l'atmosphère peut être découpée en quatre couches différentes suivant le gradient de température. La Figure 6 présente le profil vertical de la température moyenne aux moyennes latitudes et jusqu'à 100 km d'altitude. Chaque couche atmosphérique possède son propre gradient vertical de température et la limite entre deux couches se caractérise par une inversion du gradient de température.

La troposphère est la première couche de l'atmosphère terrestre. Elle se trouve entre la surface et la tropopause qui la sépare de la stratosphère. C'est la couche d'atmosphère dans laquelle nous vivons. L'altitude de la tropopause varie selon la latitude. Au niveau des pôles, la tropopause s'élève à 8 km tandis qu'à l'équateur, elle atteint une altitude de 18 km. La troposphère est caractérisée par un gradient de température négatif (typiquement de l'ordre de $-6,5^\circ \text{ K/km}$). La troposphère contient environ 90% de la masse totale de l'atmosphère et la majeure partie de la vapeur d'eau (99%).

La deuxième couche de l'atmosphère est la stratosphère. Elle est comprise entre la tropopause et la stratopause située à 50 km d'altitude et qui sépare la stratosphère de la mésosphère. La stratosphère est stratifiée et stable verticalement du fait d'un gradient vertical positif de température

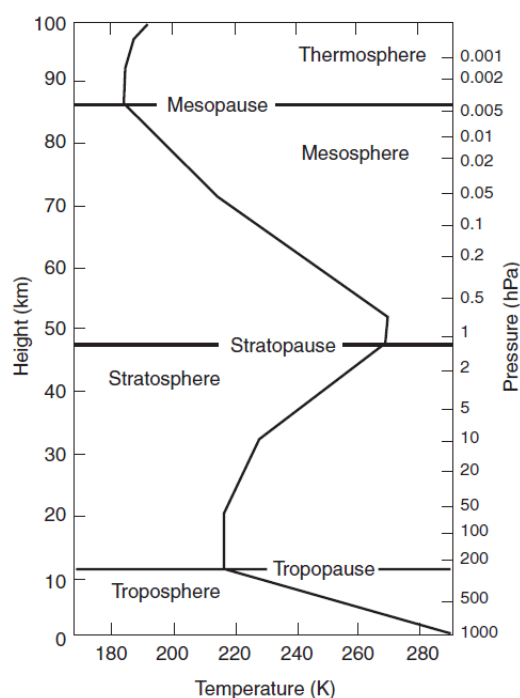


Fig. 6: Structure verticale de l'atmosphère et profil vertical de la température moyenne aux moyennes latitudes (source : Holton [2004])

avec l'altitude. La présence d'un gradient positif de température dans cette couche d'atmosphère est induite par un dégagement de chaleur initié par l'absorption du rayonnement UV par l'ozone. En effet, la stratosphère rassemble environ 90% de la quantité totale d'ozone contenue dans l'atmosphère. L'ozone stratosphérique est plus communément connu sous le nom de "*couche d'ozone*". Cependant, l'ozone reste un constituant minoritaire de l'atmosphère avec des concentrations de l'ordre de quelques molécules d'ozone par millions de molécules d'air et sa distribution verticale est très particulière en comparaison des autres composants minoritaires de l'atmosphère car sa source principale se situe dans la stratosphère. Les concentrations d'ozone sont faibles dans la troposphère puis augmentent à partir de la tropopause pour atteindre un maximum dans la basse stratosphère. L'altitude de ce maximum va dépendre, au même titre que l'altitude de la tropopause, de la latitude. On observe ainsi un maximum aux alentours de 15-20 km au niveau du pôle d'hiver et vers 25-30 km au niveau des tropiques. Le profil moyen de température est principalement déterminé par le chauffage dû à l'absorption du rayonnement UV par l'ozone et par le refroidissement lié à l'émission infrarouge du dioxyde de carbone (CO_2) et dans une moindre mesure les émissions infrarouges de l'ozone et de la vapeur d'eau.

La mésosphère est la couche située entre la stratopause (50 km) et la mésopause (85 km) qui la sépare de la thermosphère. Dans cette couche, le gradient vertical de température redevient négatif. Cela s'explique par la prédominance de l'émission infrarouge du CO_2 qui refroidit cette couche atmo-

sphérique. Le minimum de température est atteint à la mésopause.

Enfin, au-dessus de la mésosphère se trouve la thermosphère. Le rayonnement à très courtes longueurs d'onde ($\lambda < 175$ nm) est absorbé dans cette couche ce qui explique l'augmentation de la température. La limite supérieure, la thermopause, qui sépare la thermosphère de l'exosphère va varier selon l'activité solaire (aux alentours de 600 km).

1.2.2 Dynamique, activité ondulatoire et transport dans la moyenne atmosphère

Cette thèse est focalisée sur l'impact de la variabilité solaire sur l'ozone dans la stratosphère et dans une moindre mesure dans la mésosphère. La circulation dans la stratosphère est très différente de celle de la troposphère. En effet, la stratosphère est stratifiée et donc très stable c'est pourquoi les mouvements verticaux sont très lents alors que les mouvements horizontaux peuvent être très rapides le long des surfaces isentropes (*i.e.* surface où la température potentielle est constante). Les vents orientés dans la direction zonale (direction Ouest-Est) sont les vents les plus puissants en comparaison des vents méridionaux et verticaux. Les « *courants jets* » sont des vents zonaux violents situés dans la basse stratosphère vers 30°N et 30°S (jets subtropicaux) et au pôle d'hiver dans la moyenne et haute stratosphère (jet polaire). Ces courants jets forment de réelles barrières au transport méridien et ils divisent la stratosphère en trois zones dans l'hémisphère d'hiver : la zone intertropicale, la zone de mélange et la zone polaire.

L'activité ondulatoire joue un rôle majeur dans le transport des gaz traces dans la stratosphère. On distingue principalement deux types d'ondes : les ondes de gravité et les ondes de Rossby (ou ondes planétaires). Ces ondes sont générées dans la troposphère par différents mécanismes. Le déferlement de ces ondes dans la stratosphère et la mésosphère est à l'origine de la circulation générale dans la stratosphère. Les ondes de gravité ont une longueur d'onde de l'ordre de 10 à 100 km et une période de quelques dizaines de minutes à quelques heures. Elles sont créées par tous les phénomènes susceptibles d'induire localement de fortes vitesses verticales dans l'atmosphère (orographie, convection profonde, ...). Les ondes de gravité se propagent essentiellement à travers les jets d'ouest, présents dans l'hémisphère d'hiver. Elles freinent l'écoulement moyen lorsqu'elles déferlent dans la mésosphère et contribuent à la fermeture du jet (*i.e.* la vitesse du vent devient nulle) au niveau de la mésopause. La turbulence engendrée par le déferlement des ondes de gravité entraîne un mélange tridimensionnel des constituants atmosphériques.

Les ondes de Rossby sont des systèmes de très grande échelle (plusieurs milliers de kilomètres sur l'horizontale et plusieurs dizaines de kilomètres sur la verticale) et sont engendrées par les grands systèmes orographiques. Les ondes de Rossby déferlent dans la stratosphère aux moyennes latitudes et freinent le jet d'ouest de l'hémisphère d'hiver. Le déferlement des ondes de Rossby entraîne un

mélange bidimensionnel des constituants atmosphériques le long des surfaces isentropes. Ces ondes sont de plus forte amplitude dans l'hémisphère nord car le forçage orographique y est plus important que dans l'hémisphère sud. Ces perturbations sont également plus intenses en hiver lorsque la propagation des ondes planétaires est favorisée par les mouvements d'air vers l'est dans la stratosphère.

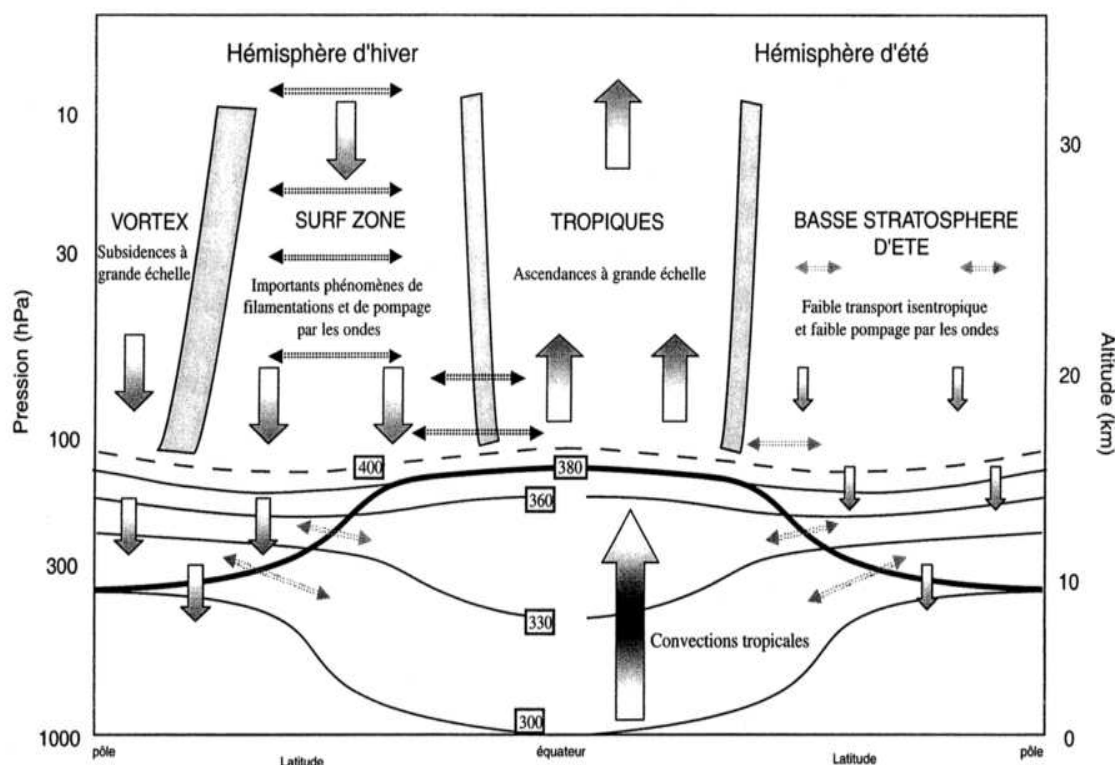


Fig. 7: Schéma du transport zonal et méridien de la haute troposphère et de la basse stratosphère. Les lignes épaisses verticales représentent les barrières dynamiques. Les lignes fines horizontales représentent les surfaces isentropes. Le trait gras horizontal correspond à la tropopause. Les grosses flèches représentent le transport dû à la circulation de Brewer-Dobson avec un mouvement ascendant aux tropiques et descendant aux moyennes et hautes latitudes. Les doubles flèches horizontales représentent le transport le long des surfaces isentropes. Au-dessus de l'isentrope à 400 K, l'atmosphère est divisée en trois domaines dans l'hémisphère d'hiver : la zone intertropicale, la zone de mélange et la zone polaire. En dessous de l'isentrope à 400 K, l'atmosphère est divisée entre la troposphère et la très basse stratosphère (source : Holton [2004])

Les modifications de l'écoulement zonal moyen par les ondes s'accompagnent d'une circulation méridienne à grande échelle qui est présentée sur la Figure 7. Cette circulation est caractérisée par une advection ascendante aux tropiques, un transport isentropique dispersif et lent vers le pôle d'hiver et une subsidence de l'aire aux moyennes latitudes et dans le vortex polaire. Cette circulation moyenne méridienne est souvent connue sous le terme de circulation de Brewer-Dobson. Cette circulation de

Brewer-Dobson transporte les constituants chimiques des tropiques vers les pôles. Elle explique la répartition méridionale des composés atmosphériques qui au cours de leur transport peuvent subir des transformations chimiques ou photochimiques. La circulation de Brewer-Dobson est également responsable de la variation saisonnière de certains constituants.

1.3 Photochimie de l'atmosphère

L'absorption du rayonnement solaire par l'atmosphère est véritablement le moteur de la chimie atmosphérique. Elle va dépendre en premier lieu des concentrations et des propriétés spectroscopiques des différents constituants atmosphériques. Cette absorption va également dépendre de l'intensité du rayonnement solaire et donc de l'angle zénithal qui est fonction du temps, du jour de l'année et de la latitude. La photodissociation ou l'ionisation des gaz atmosphériques nécessite de relativement hautes énergies. Les photons impliqués dans ces processus sont situés dans les domaines des rayons X, UV et pour certaines molécules dans le domaine visible. C'est pourquoi, la photochimie est principalement initiée par moins de 1% des photons solaires. La répartition spectrale du rayonnement solaire va être primordiale afin de déterminer à quelles altitudes une certaine fraction du rayonnement est absorbée et aussi à quelles altitudes l'atmosphère est chauffée. L'absorption dans la moyenne atmosphère (stratosphère, mésosphère) dépend majoritairement de deux espèces : l'oxygène moléculaire et l'ozone.

1.3.1 Photochimie de l'oxygène moléculaire

La Figure 8 représente la distribution spectrale de la section efficace d'absorption de l'oxygène moléculaire ainsi que les contributions dans la photodissociation de l'O₂ de chaque région spectrale en fonction de l'altitude.

Sur la Figure 8, on observe quatre domaines spectraux distincts :

- Aux très courtes longueurs d'onde ($\lambda < 137$ nm), le continuum d'ionisation est constitué de bandes d'absorption diffuses entrecoupées par des fenêtres atmosphériques qui permettent au rayonnement de pénétrer relativement profondément dans l'atmosphère à certaines longueurs d'onde. Une de ces fenêtres coïncide exactement avec la raie de HI Lyman- α qui joue un rôle important dans la photochimie de la haute atmosphère (*e.g.* photolyse de la vapeur d'eau dans la thermosphère et mésosphère).
- Le continuum de Schumann Runge pour les longueurs d'onde inférieures à 175 nm. C'est dans ce domaine spectral que l'on observe les valeurs maximales de la section efficace d'absorption de l'oxygène moléculaire ($\sigma = 1.5 \cdot 10^{-7}$ cm² à 144 nm). Ceci se traduit par une forte absorption du rayonnement ultraviolet dans cette gamme de longueur d'onde. Le continuum de Schumann

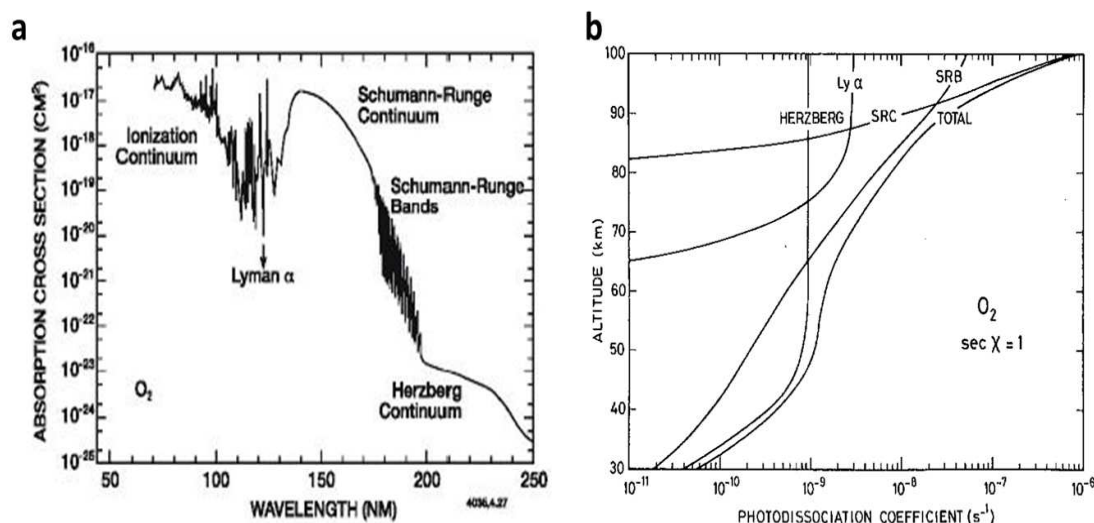


Fig. 8: (a) Distribution spectrale de la section efficace d'absorption de l' O_2 (source : Delmas et al. [2005]) (b) Contribution de chaque région spectrale dans la photodissociation d' O_2 en fonction de l'altitude (source : Brasseur and Solomon [2005])

Runge est important seulement dans la thermosphère et d'un point de vue de la photochimie il joue un rôle dominant au-dessus de 90 km. Dans la stratosphère, la photolyse dans ce domaine spectral est négligeable car le rayonnement a déjà été totalement absorbé dans la thermosphère et la mésosphère.

- Les bandes d'absorption de Schumann Runge correspondent au domaine spectral s'étendant d'environ 175 à 200 nm. La section efficace d'absorption varie de cinq ordres de grandeur sur ce domaine permettant ainsi au rayonnement de pénétrer plus profondément dans l'atmosphère à mesure que la longueur d'onde augmente. La contribution des bandes de Schumann Runge est dominante dans la mésosphère mais elle joue un rôle secondaire dans la haute et moyenne stratosphère. Elle redevient significative dans la basse stratosphère.
- Le continuum de Herzberg est quant à lui compris entre 200 et 242 nm. La section efficace d'absorption est relativement faible par rapport aux deux précédents domaines (10^{-24} à 10^{-23} cm²) ; c'est pourquoi, le rayonnement ultraviolet dans ce domaine est très peu absorbé dans les hautes couches de l'atmosphère (thermosphère et mésosphère). Sa contribution est majeure au niveau de la stratosphère lorsque la concentration d'oxygène moléculaire devient importante (30-50 km). Ce continuum est fondamental dans la production d'atomes d'oxygène et donc d'ozone stratosphérique.

1.3.2 Photochimie de l'ozone

La Figure 9 représente la distribution spectrale de la section efficace d'absorption de l'O₃ ainsi que les contributions dans la photodissociation de l'O₃ de chaque région spectrale en fonction de l'altitude. A la différence de l'oxygène moléculaire, l'ozone possède une énergie de photodissociation plus faible, ce qui permet (théoriquement) à l'ozone d'être photodissocié jusqu'à des longueurs d'onde de 1.14 μm (proche infrarouge) formant O et O₂. L'état énergétique des produits formés sera dépendant de la longueur d'onde du photon incident. Ainsi, pour des longueurs d'onde inférieures à 310 nm, la photodissociation de l'ozone entraîne la formation d'un atome d'oxygène dans l'état excité O(¹D). Pour des longueurs d'onde supérieures à 310 nm, l'atome d'oxygène se retrouve dans son état fondamental O(³P).

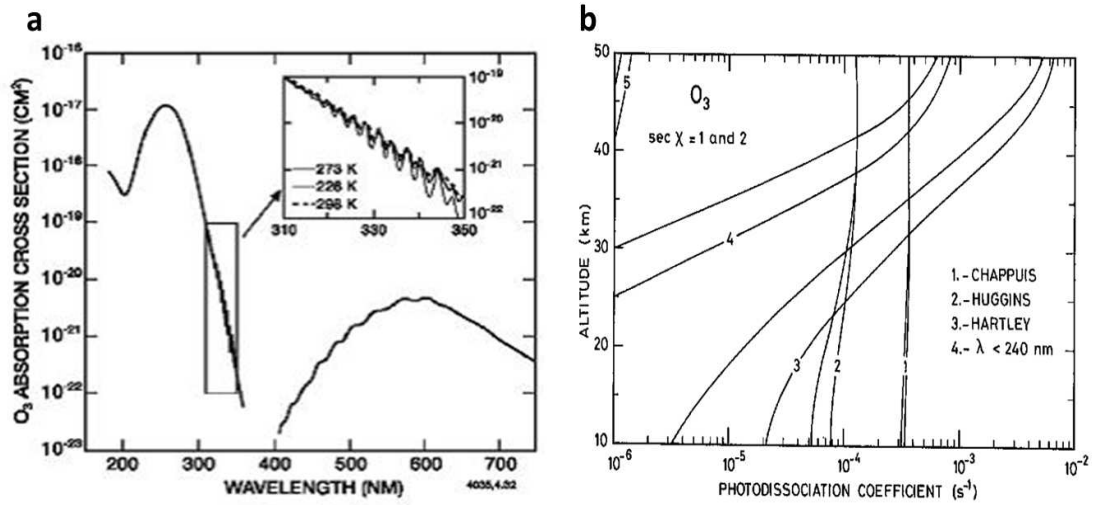


Fig. 9: (a) Distribution spectrale de la section efficace d'absorption de l'O₃ (source : Delmas et al. [2005]) (b) Contribution de chaque région spectrale dans la photodissociation d'O₃ en fonction de l'altitude (source : Brasseur and Solomon [2005])

Dans le cas de la distribution spectrale des sections efficaces d'absorption de l'ozone (Figure 9), on observe trois domaines spectraux distincts :

- La première bande d'absorption de l'ozone appelée bande de Hartley se trouve entre 200 et 310 nm. La section efficace d'absorption est maximale à 250-260 nm avec une valeur de l'ordre de 10^{-17} cm^2 . Le rayonnement solaire est fortement absorbé par l'ozone dans ce domaine et la contribution de cette bande est majoritaire dans la haute et moyenne atmosphère. La bande de Hartley, autour de 300 nm devient faible, et entre 310 et 350 nm sa contribution diminue en

faveur des bandes de Huggins.

- Les bandes de Huggins contenues dans le domaine spectral 310-350 nm dépendent fortement de la température. La détermination de l'absorption du flux ultraviolet par l'ozone dans ce domaine spectral est délicate. En effet, les valeurs des sections efficaces d'absorption doivent être rapportées aux températures de la stratosphère.
- L'ozone absorbe également dans le domaine visible via les bandes de Chappuis, entre 410 et 850 nm. Les sections efficaces sont plus faibles que dans le domaine des bandes de Huggins avec tout de même un maximum de 5.10^{-21} cm^2 vers 600 nm. Les bandes de Chappuis n'ont donc pas un rôle majeur dans la haute et moyenne stratosphère en comparaison des autres domaines spectraux. Néanmoins, ce domaine spectral contribue significativement à la photodissociation de l'ozone et joue un rôle dominant dans la basse stratosphère et dans la troposphère ($z < 25 \text{ km}$).

1.3.3 Photochimie de la vapeur d'eau

Le spectre d'absorption de la vapeur d'eau H_2O consiste en un continuum situé entre 145 à 168 nm, des bandes diffuses entre 69 et 145 nm, et d'un continuum en dessous de 69 nm. La photodissociation dans la moyenne atmosphère a lieu aux longueurs d'onde supérieures à 100 nm car en dessous de 100 nm, c'est le mécanisme de photoionisation qui a lieu (pour $\lambda < 98 \text{ nm}$). Dans la mésosphère et la thermosphère, la vapeur d'eau est photodissociée essentiellement par la raie HI Lyman- α ce qui est à l'origine entre autres de la formation de radicaux hydrogénés (H et OH). Dans la basse mésosphère, le continuum d'absorption de la vapeur d'eau a lieu dans le domaine des bandes de Schumann-Runge de l'oxygène moléculaire.

La Figure 10 représente la distribution spectrale de la section efficace d'absorption de H_2O ainsi que les contributions dans la photodissociation de la H_2O de chaque région spectrale en fonction de l'altitude.

Le Tableau 1 résume succinctement les différentes contributions de ces trois espèces au niveau de l'absorption du rayonnement solaire. Cette contribution est fonction de la longueur d'onde.

Globalement, l'abondance d'ozone de la moyenne atmosphère est le résultat d'un équilibre entre la production et la destruction de cette espèce. Le cycle de Chapman correspond à la succession de réactions menant à la formation d'ozone dans une atmosphère exclusivement constituée d'oxygène.

Longueur d'onde	Molécules absorbantes
121.6 nm	- raie de HI Lyman- α absorbée par O ₂ et par H ₂ O dans la mésosphère - O ₃ n'absorbe pas
100-175 nm	- Absorption par O ₂ dans la thermosphère (continuum de Schumann-Runge). Cette absorption peut être négligée dans la mésosphère et la stratosphère - O ₃ n'absorbe pas
175-200 nm	- Absorption par O ₂ et H ₂ O dans la mésosphère et la haute stratosphère (bandes de Schumann-Runge) - Absorption par O ₃ peut être négligée dans la mésosphère mais devient importante dans la stratosphère
200-242 nm	- Absorption par O ₂ dans la stratosphère et plus faible absorption dans la mésosphère (continuum d'Herzberg) - Absorption d'O ₃ également importante (bande de Hartley) - Les deux contributions doivent être considérées
242-310 nm	- Absorption par O ₃ dans la stratosphère menant à la formation de O(¹ D) (bande de Hartley) - Absorption par O ₂ négligeable au delà de 242 nm
310-400 nm	- Absorption par O ₃ dans la stratosphère menant à la formation de O(³ P) (bande de Huggins)
400-850 nm	- Absorption par O ₃ dans la troposphère induisant sa photodissociation jusqu'à la surface (bandes de Chappuis)

Tab. 1: Tableau récapitulatif des différentes contributions des deux espèces photochimiques clés de l'atmosphère (oxygène moléculaire et ozone) en fonction de différents domaines spectraux [Brasseur and Solomon, 2005]

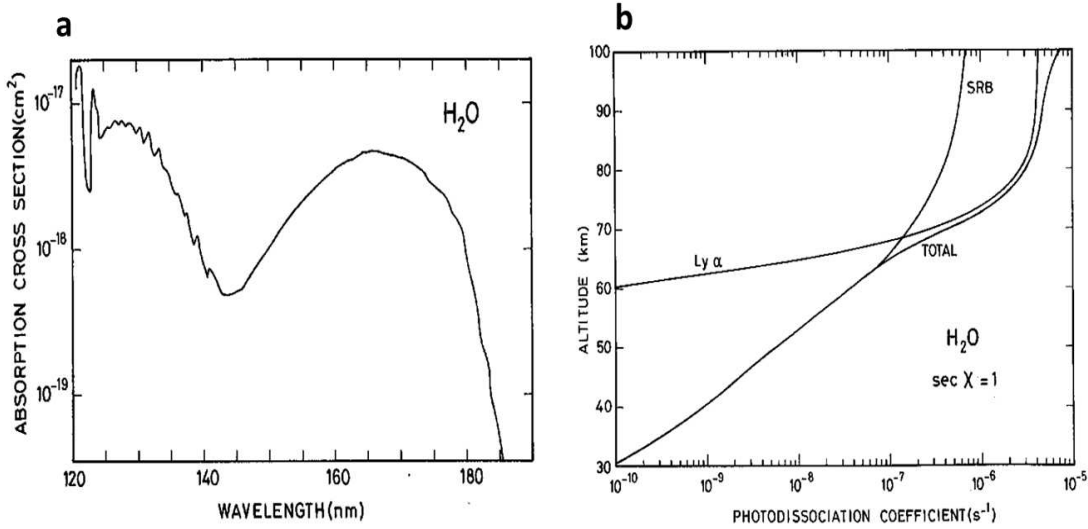
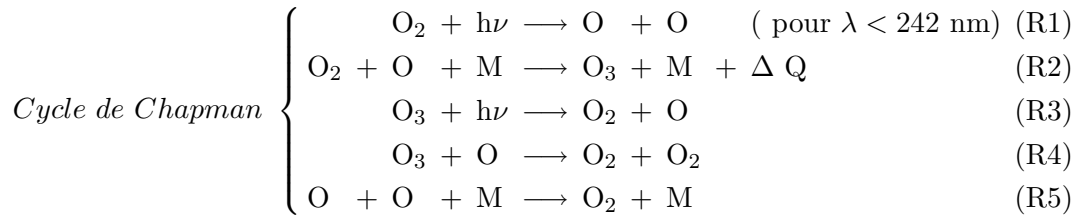


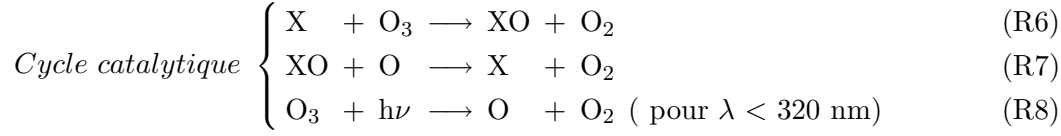
Fig. 10: (a) Distribution spectrale de la section efficace d'absorption de H₂O (b) Contribution de chaque région spectrale dans la photodissociation d'H₂O en fonction de l'altitude (source : Brasseur and Solomon [2005])



La production d'ozone est initiée par la photodissociation de l'oxygène moléculaire par le rayonnement ultraviolet dont la longueur d'onde est inférieure à 242 nm (R1). Cette photodissociation est suivie par la recombinaison entre un atome d'oxygène et une molécule de dioxygène (R2). Cette réaction étant exothermique, un dégagement de chaleur ΔQ ($\Delta Q = 24 \text{ kcal}$) a lieu pour chaque mole d'ozone formé. Cette énergie correspond à l'énergie de la liaison O-O₂ dans la molécule d'O₃ et est à l'origine du gradient positif de température dans la stratosphère. L'ozone est ensuite photodissocié (R3) ou recombiné avec un atome d'oxygène (R4) pour reformer de l'oxygène moléculaire.

La réaction de destruction d'ozone du cycle de Chapman (R4) ne rend compte que de 20% de la perte naturelle de l'ozone car cette réaction est lente. Les concentrations d'ozone sont largement surestimées si on ne considère que le cycle de Chapman. Il faut donc introduire des mécanismes chimiques de destruction d'ozone. Ces mécanismes correspondent à des cycles catalytiques de destruction au cours desquels d'autres composés minoritaires (NO_x, HO_x, ClO_x, BrO_x) jouent le rôle de catalyseurs. Cette chimie a progressivement été étudiée au cours du XX^{ème} siècle [Bates and Nicolet, 1950; Crutzen, 1970; Stolarski and Cicerone, 1974; Molina and Rowland, 1974]. Les concentrations de ces espèces radicales destructrices d'ozone sont bien inférieures à celle de l'ozone. Cependant, en tant que

catalyseurs ils ne sont pas consommés au cours d'un cycle catalytique. C'est pourquoi, ils peuvent participer à un grand nombre de cycles de destruction d'ozone. Dans le cas de l'ozone, les cycles catalytiques des différentes familles suivent le même schéma réactionnel suivant :



où X représente le radical catalyseur. Le bilan net de ce cycle catalytique est une destruction simultanée des oxygènes impairs O et O₃. Les réactions impliquées dans ce cycle sont beaucoup plus rapides que la réaction (R4) par exemple.

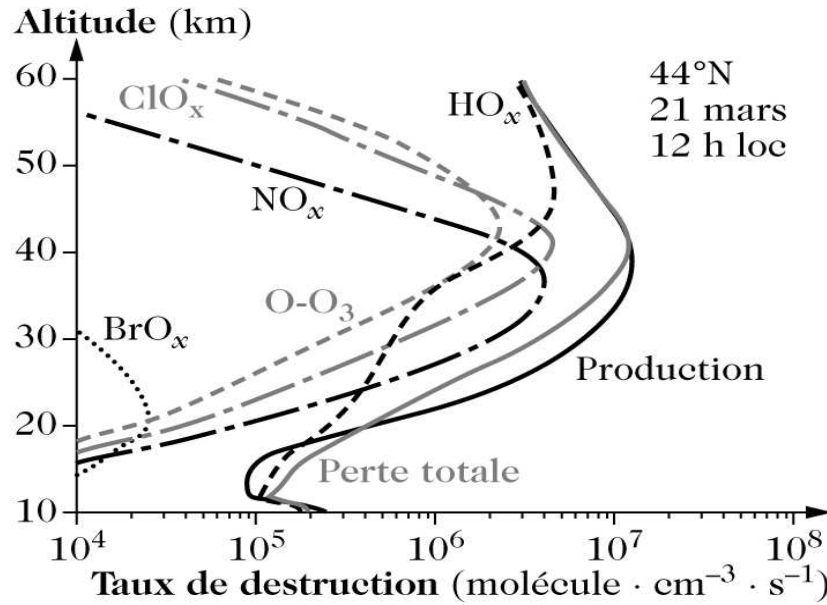


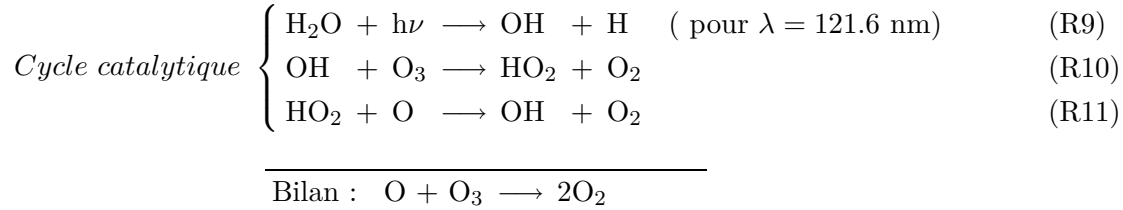
Fig. 11: Taux de production et de destruction de l'ozone par les différentes familles chimiques (composés oxygénés, hydrogénés, azotés, chlorés et bromés) en fonction de l'altitude à 44° N au mois de mars (source : Delmas et al. [2005])

La Figure 11 présente les taux de production et de destruction de l'ozone stratosphérique par les différentes familles chimiques aux moyennes latitudes. La destruction de l'ozone par les composés NO_x est dominante dans la moyenne stratosphère (entre 25 et 35 km), tandis que les réactions impliquant les HO_x sont dominantes dans la basse (en dessous de 25 km) et la haute stratosphère (au-dessus de 40 km). Les composés chlorés contribuent entre 20 et 30% à la destruction de l'ozone dans la haute stratosphère (entre 40 et 45 km d'altitude) et dans la basse stratosphère (entre 20 et 30 km). Les

composés bromés jouent un rôle important dans la destruction de l’ozone dans la basse stratosphère, spécialement aux hautes latitudes dans l’hémisphère d’hiver. Au cours des dernières décennies suite à l’augmentation de composés halogénés, le taux de destruction par les composés chlorés et bromés de l’ozone a dramatiquement augmenté, principalement dans les régions polaires.

Dans la mésosphère, c’est la photodissociation de la vapeur d’eau qui va avoir un rôle prépondérant dans l’équilibre de l’ozone. En effet, la photodissociation de la vapeur d’eau par la raie HI Lyman- α (R9) va former des radicaux hydrogénés qui vont ensuite jouer le rôle de catalyseur dans le cycle de destruction de l’ozone mésosphérique (R10 et R11). C’est ce cycle catalytique de destruction qui va expliquer en grande partie le minimum d’ozone à 80 km.

La destruction de l’ozone mésosphérique peut être expliquée par les trois réactions suivantes analogues aux mécanismes du cycle catalytique présentés ci-dessus (R6 à R8) :



1.4 Influence solaire sur le système Terre

Les mécanismes proposés afin de caractériser l’influence du rayonnement solaire sur le système Terre peuvent se regrouper en deux catégories qui diffèrent de par leur origine. Bien que ces forçages soient supposés être faibles, l’existence de non-linéarités dans le système Terre-atmosphère peut amener une amplification de l’impact de ces forçages via des boucles de rétroaction sur ce système.

1.4.1 Influence particulière

La première catégorie de mécanismes englobe toutes les interactions liées à l’impact sur l’atmosphère des particules énergétiques dont l’origine varie (solaire, cosmique ou encore particules issues des ceintures de radiation, les plus nombreuses). Les particules énergétiques solaires, principalement constituées de protons solaires, sont émises lors d’éruptions solaires et leurs fluctuations très intermittentes sont directement modulées par l’activité solaire ; leur variabilité étant positivement corrélée à l’activité solaire. Ces particules solaires vont jouer un rôle dans l’ionisation, la dissociation et la production de différentes espèces chimiques (HOx et NOx) ; espèces chimiques liées à la destruction catalytique de l’ozone (*e.g.* Solomon *et al.* [1982] ; Jackman *et al.* [2008]) majoritairement aux hautes latitudes. Les rayons cosmiques constituent le deuxième type de particules interagissant avec l’atmosphère. Ils sont

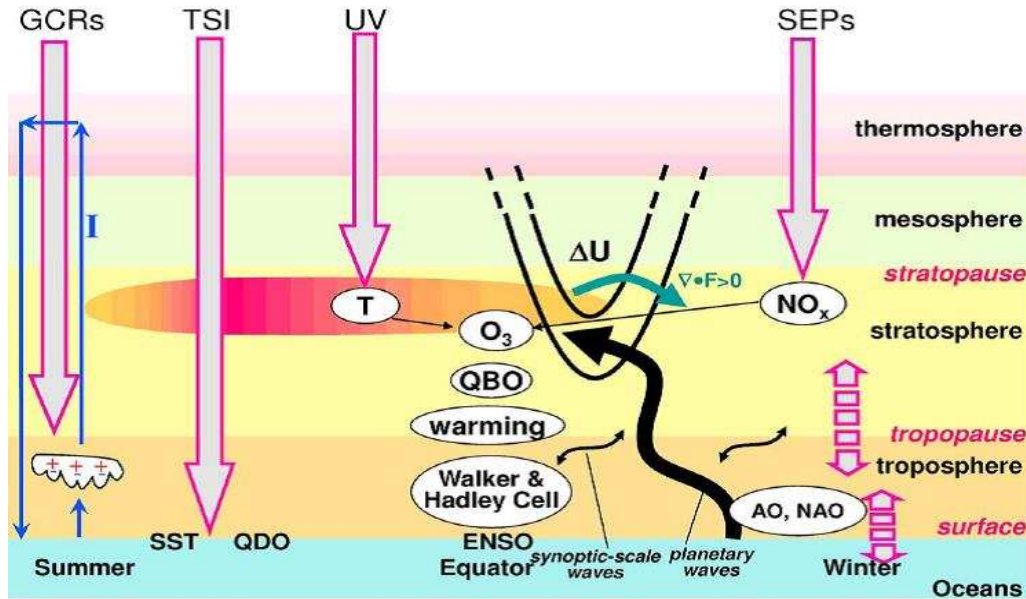


Fig. 12: Schéma représentant les différents mécanismes connus de l'influence solaire sur le climat. Les effets directs et indirects sont représentés à travers les changements des flux solaires (TSI et UV). Les effets liés aux radiations corpusculaires sont également représentés (particules énergétiques et rayons cosmiques). Les flèches en pointillés dénotent les couplages entre les différentes couches du système Terre (océan ↔ troposphère et troposphère ↔ stratosphère) (source : Gruzdev et al. [2009])

principalement constitués de protons, de noyaux d'hélium et d'électrons provenant de l'Univers. La pénétration dans l'atmosphère de ces particules va être directement influencée par l'activité solaire. En effet, en période de forte activité solaire, le vent solaire va jouer le rôle efficace de bouclier protecteur pour la Terre vis-à-vis de ces particules cosmiques. A l'inverse, en période de faible activité solaire, ce bouclier va s'affaiblir permettant une plus grande pénétration de ces particules dans l'atmosphère, augmentant ainsi la production d'ions et de radionucléides d'origine cosmique. Un mécanisme a été proposé par Dickinson [1975] pour caractériser l'impact de ces particules sur l'atmosphère. L'augmentation de l'ionisation de l'atmosphère entraîne une augmentation de la concentration de noyaux de condensation et de ce fait une augmentation de la formation des nuages. Ce mécanisme suggère un lien entre les rayons cosmiques et l'étendue de la couverture nuageuse qui joue un rôle très important dans le bilan radiatif global de la Terre. Toutefois, cette interaction est plus sujette à controverse par rapport à l'interaction particules solaires-atmosphère car les mécanismes reliant rayons cosmiques et nuages ne sont pas encore très bien compris et quantifiés. De plus, les résultats de simulations réalisées sur l'interaction atmosphère-rayonnement cosmique [Pierce and Adams, 2009] diffèrent de manière importante avec les résultats obtenus à partir d'observations.

1.4.2 Influence radiative

L'influence radiative sur le système Terre va fortement dépendre du domaine de longueur d'ondes étudié. Ainsi, l'altitude d'absorption et donc de déposition de l'énergie solaire va varier selon le domaine spectral considéré. Sur la Figure 11, est représentée l'altitude de déposition des deux grandeurs radiatives que sont la TSI et le flux UV. Comme expliquées précédemment, les variations au cours d'un cycle de 11 ans de la TSI (0.1%) sont beaucoup plus faibles que celles observées dans le domaine UV (de l'ordre de quelques %) (pour rappel, on observe les mêmes ordres de grandeur pour le cycle à 27 jours lors des périodes de maximum solaire du cycle à 11 ans). Toutefois, la quantité d'énergie transportée par la TSI est beaucoup plus importante que celle transportée par le flux UV. L'intérêt d'étudier les variations de la TSI et son influence sur le système Terre réside dans le fait que l'impact de la TSI se traduit par un échauffement direct. En effet, les changements de la TSI impactent directement la surface et chauffent les basses couches de l'atmosphère ainsi que la surface. Le mécanisme de type « *bottom-up* » a été proposé pour caractériser cette influence. En général, ce mécanisme est plus important dans les tropiques qu'aux hautes latitudes. Le principal mécanisme proposé détaille l'influence de la variabilité de la TSI sur la circulation atmosphérique tropicale [Meehl *et al.*, 2003, 2008, 2009]. Cependant, des études [White *et al.*, 2003; White, 2006] ont montré que le mécanisme « *bottom-up* » ne peut pas entièrement expliquer à lui tout seul la réponse observée à la surface. C'est pourquoi, l'existence du mécanisme « *top-down* » a été suggérée. Ce mécanisme caractérise l'influence du rayonnement UV sur le système Terre via l'absorption de ce rayonnement par la stratosphère et plus particulièrement par l'ozone stratosphérique. Le mécanisme « *top-down* » le mieux documenté [Haigh, 1996; Shindell *et al.*, 1999; Balachandran *et al.*, 1999; Kozma and Kuroda, 2002] est celui qui lie les variations UV aux précipitations dans la ceinture tropicale. Ce mécanisme se décompose en plusieurs étapes. L'augmentation du flux UV, lors d'un maximum solaire, entraîne une augmentation du taux de chauffage de l'ozone ainsi qu'une augmentation des concentrations d'ozone stratosphérique. Ces augmentations vont modifier la température et la circulation zonale de la stratosphère entraînant une altération au niveau de la propagation des ondes atmosphériques. Cette altération va modifier la circulation et le transport d'énergie de l'équateur vers les pôles, ayant comme conséquence une augmentation des précipitations au niveau des tropiques.

Ce premier chapitre introductif a mis en évidence les différents mécanismes d'action de la variabilité solaire sur le système Terre. Il est apparu que les mécanismes photochimiques jouent un rôle prépondérant dans l'équilibre de la moyenne atmosphère en partie via l'O₃ qui est le gaz clé de la moyenne atmosphère capable d'influencer l'équilibre radiatif de la moyenne atmosphère. La réponse de la moyenne atmosphère tropicale à la variabilité solaire UV va être dominée par les processus photochimiques et notamment ceux liés à l'O₃ (première étape du mécanisme « *top-down* »). Ces processus photochimiques qui entrent en jeu lors du cycle solaire à 11 ans sont les mêmes que ceux du cycle solaire à 27 jours. Bien que d'amplitude plus faible que celle du cycle à 11 ans, la variabilité solaire spectrale à 27 jours va présenter des caractéristiques similaires avec une dépendance spectrale équivalente (la variabilité spectrale augmente lorsque la longueur d'onde diminue). De plus, les mécanismes photochimiques étudiés sont les mêmes quelque soit le cycle considéré. Enfin, l'étude de la réponse de l'atmosphère au cycle à 27 jours à l'avantage d'assurer une meilleure robustesse statistique de cette réponse car sur une même période 130 fois plus de cycles à 27 jours sont couverts que de cycles à 11 ans.

C'est pourquoi dans la suite de ma thèse, je me suis donc plus particulièrement intéressé à étudier la réponse de l'ozone tropical de la moyenne atmosphère (stratosphère et mésosphère) aux variations solaires UV aux échelles de temps du cycle solaire rotationnel (27 jours).

Chapitre 2

Outils

Sommaire

2.1	Données solaires	36
2.1.1	Modèle NRL-SSI	36
2.1.2	Modèle MGNM-SSI	37
2.2	Données ozone	38
2.2.1	MLS/UARS	38
2.2.2	MLS/Aura	38
2.2.3	GOMOS/ENVISAT	39
2.3	LMDz-Reprobus : un modèle de chimie climat (CCM)	40
2.3.1	Définition d'un CCM	40
2.3.2	LMDz-Reprobus	41

2.1 Données solaires

Aujourd'hui, de nombreux modèles de reconstruction sont utilisés en plus des mesures satellitaires afin de caractériser la variabilité de l'irradiance solaire (spectrale et totale). Les reconstructions de l'irradiance totale et de l'irradiance spectrale sont généralement obtenues à partir des observations détaillées de la surface du Soleil. Ces données permettent de déterminer avec précision la position, l'aire et les caractéristiques des structures magnétiques présentes à la surface, comme les taches et les facules. Certains modèles de reconstruction se basent également sur l'observation de proxies de la variabilité solaire, tels que le flux décimétrique à 10.7 cm, l'index Magnésium II (Mg II) ou encore l'index Calcium II (Ca II). Ces proxies sont utilisés comme indicateurs pour caractériser la variabilité de l'irradiance spectrale dans le domaine UV.

Au cours de cette thèse, j'ai été amené à utiliser deux modèles de reconstruction de spectre solaire : le modèle NRL-SSI [Lean, 1997, 2000; Lean et al., 2005] et le modèle MGNM-SSI [Thuillier et al., 2012].

2.1.1 Modèle NRL-SSI

Le modèle NRL-SSI : *The Naval Research Laboratory Solar Spectral Irradiance* [Lean, 1997, 2000; Lean et al., 2005] prend en compte les contributions respectives des taches solaires et des facules. Ces structures magnétiques présentes à la surface du Soleil vont moduler l'irradiance solaire. Le modèle tient compte des indices photométriques de chaque structure magnétique afin d'estimer leur influence nette sur l'irradiance au cours d'un cycle solaire. Les indices photométriques des taches et des facules permettent de calculer la contribution lumineuse de chacune de ces structures. Les taches solaires sont associées à un assombrissement tandis que les facules sont associées à un surplus de luminosité. En outre, la contribution à long terme des facules est calculée afin de représenter les variations de l'irradiance aux plus grandes échelles de temps. La méthode de reconstruction de l'irradiance spectrale diffère selon le domaine spectral.

Pour $\lambda < 400$ nm, l'irradiance spectrale $F(\lambda, t)$ (λ : longueur d'onde et t : le temps) est déterminée en associant les variations de l'irradiance observée par l'instrument SOLSTICE à bord du satellite UARS [Rottman, 2000] à un spectre de référence (spectre moyen de SOLSTICE pendant la période d'activité d'UARS). Les variations des contributions des taches solaires ($P_S(t)$) et des facules ($P_F(t)$) sont également associées à leur valeur de référence. L'irradiance spectrale $F(\lambda, t)$ s'exprime alors comme suit :

$$\frac{F(\lambda, t)}{F(\lambda)_{REF}} - 1 = a(\lambda) + b(\lambda)\left(\frac{P_F(t)}{P_F^{REF}} - 1\right) + c(\lambda)\left(\frac{P_S(t)}{P_S^{REF}} - 1\right) \quad (E1)$$

où $a(\lambda)$, $b(\lambda)$ et $c(\lambda)$ sont des paramètres calculés à partir de la régression linéaire multiple.

Pour $\lambda > 400$ nm, l'irradiance spectrale est déterminée par les contributions spectrales des taches solaires et des facules et s'exprime selon la formule suivante :

$$F(\lambda, t) = F(\lambda)_{QUIET} + \Delta F_F(\lambda, t) + \Delta F_S(\lambda, t) \quad (E2)$$

Le terme $F(\lambda)_{QUIET}$ fait référence à un spectre solaire composite qui caractérise le Soleil inactif, *i.e.* la surface du Soleil présente une absence totale de taches et de facules. Ce spectre composite se base sur les observations issues de l'instrument SOLSTICE à bord du satellite UARS (entre 0.120 et 0.401 μm), de l'instrument SOLSPEC à bord de la mission ATLAS (entre 0.401 et 0.874 μm) [Thuillier *et al.*, 1998] et à partir d'un spectre théorique [Kurucz, 1992] aux plus grandes longueurs d'onde. Ce composite a été normalisé afin que son flux intégré sur toutes les longueurs d'onde (*i.e.* TSI) soit égal à la valeur de 1365.5 W.m⁻². Les composantes $\Delta F_F(\lambda, t)$ et $\Delta F_S(\lambda, t)$ correspondent respectivement aux contributions des taches solaires et des facules.

2.1.2 Modèle MGNM-SSI

J'ai également été amené à utiliser le modèle MGNM-SSI [Thuillier *et al.*, 2012] qui permet de reconstruire l'irradiance spectrale entre la bande de Lyman- α et 400 nm. Ce modèle se base sur les mesures de l'index du Magnésium II (Mg II) et du moniteur à neutrons qui permet une mesure de l'isotope cosmogénique : le béryllium 10 (^{10}Be). L'index du Mg II est utilisé pour reconstruire l'irradiance spectrale pour la période actuelle (date postérieure à 1978), tandis que les données cosmogéniques du ^{10}Be sont utilisées pour reconstruire l'irradiance spectrale aux périodes durant lesquelles l'index du Mg II n'était pas disponible. L'index Mg II [Viereck *et al.*, 2004] est issu de la mesure du spectre solaire UV réalisée par plusieurs missions satellitaires entre 1978 et aujourd'hui (*e.g.* les spectromètres *Nimbus-7/SBUV*, *NOAA-9/SBUV/2*, *NOAA-16/SBUV/2* et les instruments *SUSIM/UARS* et *SOLSTICE/SORCE*).

Le principe de cette reconstruction repose sur le calcul de la variabilité relative de l'irradiance spectrale en un jour donné par rapport à un spectre de référence (ATLAS 3, Thuillier *et al.* [2003]). Cette variabilité est obtenue en utilisant l'index Mg II comme une fonction du temps et de la longueur d'onde (pour plus de détails voir Thuillier *et al.* [2012]). Pour une valeur de Mg II donnée, cette variabilité est appliquée au spectre de référence (ATLAS 3) dans le but de générer le spectre du jour en question. Ce principe n'étant plus applicable pour la reconstruction des spectres antérieurs à 1978, [Thuillier *et al.*, 2012] utilisent une corrélation entre les données du moniteur à neutrons (^{10}Be) et l'index Mg II. Cette corrélation est établie sur la période 1978-2010 et elle est considérée toujours valide pour des périodes passées (antérieures à 1978). Ainsi, pour un jour donné (antérieur à 1978), puisque la concentration de ^{10}Be est connue, la relation $^{10}Be/Mg II$ permet de déterminer la valeur de l'index Mg II. Cette valeur de Mg II est ensuite appliquée au spectre de référence (ATLAS 3, Thuillier *et al.* [2003]) afin d'établir l'irradiance spectrale du jour donné. Cette reconstruction a l'avantage de ne pas dépendre de la calibration absolue de l'instrument. En effet, l'index Mg II étant calculé à l'aide

du rapport entre la raie du Magnésium II à 280 nm (définie comme le cœur de la raie) et la valeur du continuum solaire (défini comme les ailes de raie), il est ainsi quasi-indépendant de la dégradation de l'instrument.

2.2 Données ozone

L'ensemble des données ozone utilisées proviennent d'instrument à bord de satellite. Ils offrent une résolution spatiale et temporelle nécessaire aux objectifs de cette thèse. Les données satellites ont été moyennées zonalement sur la bande tropicale de latitude s'étendant de 20°N à 20°S. Le choix de cette bande de latitude est justifié par le fait que la réponse de l'ozone est dominée par la photochimie, via le terme de production d'O₃ (photodissociation de l'oxygène moléculaire). Aux moyennes et hautes latitudes, la réponse est plus difficile à interpréter en raison de l'influence des rétroactions dynamiques qui s'ajoute à ces processus photochimiques.

2.2.1 MLS/UARS

Le satellite UARS a été lancé le 12 Septembre 1991 selon une orbite située à 585 km d'altitude et une inclinaison de 57°. Il transportait à son bord 10 instruments dont l'instrument MLS (Microwave Limb Sounding). L'instrument MLS est le premier instrument utilisant la technique de sondage au limbe de l'atmosphère dans le domaine des micro-ondes. Il a permis de mesurer la composition chimique et certains paramètres physiques de la stratosphère. La technique a été décrite en détails par *Waters* [1989, 1993]. Les mesures d'ozone sont effectuées avec une résolution d'environ 6 km et une précision de 0.5 ppmv à 0.46 hPa, 0.3 ppmv entre 1 et 0.46 hPa et de 0.2 ppmv entre 10 et 46 hPa.

En raison de l'inclinaison du satellite, une manœuvre d'orientation est nécessaire afin que celui-ci couvre équitablement les deux hémisphères. Ainsi son orientation bascule de 180° dix fois par an, soit un cycle d'environ 36 jours. En conséquence, les mesures d'ozone au-delà de 34° de latitude ne sont pas continues et présentent une alternance temporelle de 36 jours entre des périodes de mesures et des périodes sans mesure. Dans la bande de latitude 34°N-34°S, les mesures sont, quant à elles, continues dans le temps mais présentent néanmoins une périodicité de 36-jours liée à ce changement d'orientation. En effet, cette manœuvre conduit à un échantillonnage de l'ozone à des heures locales différentes et donc à des concentrations différentes d'ozone compte tenu du cycle diurne de l'ozone.

2.2.2 MLS/Aura

Le satellite Aura a été lancé le 15 Juillet 2004 amenant à son bord quatre instruments dont l'instrument MLS. Le satellite suit une orbite polaire héliosynchrone à 705 km d'altitude. L'instrument MLS observe les émissions millimétriques et submillimétriques de l'émission thermique depuis le limbe atmosphérique à l'aide de sept radiomètres qui couvrent cinq larges régions spectrales centrées près des

bandes 118, 190, 240 et 640 GHz et 2.5 THz. Il constitue une version améliorée de l'instrument MLS à bord du satellite UARS. Les détails techniques liés à l'instrument (fonctionnement, calibration...) et à la méthode de mesure sont décrits en détails dans *Waters [1993]* ; *Waters et al. [2006]*.

Le point de visée de l'instrument MLS est orienté dans la direction du déplacement du satellite Aura, il scanne au limbe dans le plan orbital. Ainsi pour chaque orbite, les données couvrent la quasi-totalité du globe (82°N-82°S). Par conséquent, l'instrument MLS fournit un échantillonnage journalier continu des deux régions polaires. Contrairement au satellite UARS, la manœuvre d'orientation n'est pas nécessaire et la périodicité de 36 jours n'est pas présente dans les données ozone mesurées par MLS/Aura. Les scans au limbe de l'instrument MLS sont synchronisés à l'orbite du satellite Aura, avec 240 scans par orbite essentiellement à des latitudes fixes. MLS permet la mesure d'environ 3500 profils par jour sur la bande de latitude 82°N-82°S avec un écart de 1.5° (165 km) entre deux profils consécutifs.

Dans cette thèse, la version 2.2 des données MLS/Aura est utilisée. La résolution verticale est d'environ 3 km dans la haute troposphère et dans la stratosphère, et se dégrade dans la haute mésosphère avec des valeurs de l'ordre de 4 à 6 km. La précision à 1- σ des profils d'ozone est de 0.1 à 0.3 ppmv (ou 2 à 15%) de 46 hPa à 0.5 hPa. Elle atteint une valeur de 0.4 ppmv à 0.1 hPa.

2.2.3 GOMOS/ENVISAT

GOMOS (Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars) est l'un des trois instruments à bord de la plateforme ENVISAT. ENVISAT a été lancé le 1^{er} Mars 2002 via Ariane 5 sur une orbite polaire avec une inclinaison de 98,6° et une altitude d'environ 790 km. GOMOS est un spectromètre couvrant le domaine spectral allant de 250 nm à 950 nm. Il est également composé d'un télescope de type Cassegrain de dimension 20 cm x 30 cm. GOMOS est un instrument qui fournit des mesures par occultation stellaire des différents composés de l'atmosphère (O₃, NO₂, ...). Le principe d'occultation stellaire (Figure 13) est détaillé dans différentes études (*e.g. Hays and Roble [1968]*) et est schématisé sur la Figure 13.

Il consiste à mesurer un spectre lumineux de référence d'une étoile lorsque la ligne de visée est située hors de l'atmosphère, ce premier spectre est noté ($S_0(\lambda)$). Le spectre lumineux de cette même étoile est mesuré tout au long de sa descente vers l'horizon, permettant ainsi de sonder l'atmosphère. A chaque mesure, le spectre $S(\lambda, z)$ est modifié par rapport au spectre de référence par l'absorption des différents constituants atmosphériques intégrés le long de la ligne de visée entre GOMOS et l'étoile selon la loi de Beer-Lambert :

$$S(\lambda, z) = S_0(\lambda) \exp(-\sigma_\lambda N(z)) \quad (\text{E3})$$

Où λ est la longueur d'onde, z est l'altitude de la ligne de visée au-dessus de l'horizon, $N(z)$ est la quantité d'ozone intégrée (ou densité) le long de cette même ligne de visée (mol/cm²) et σ_λ est la

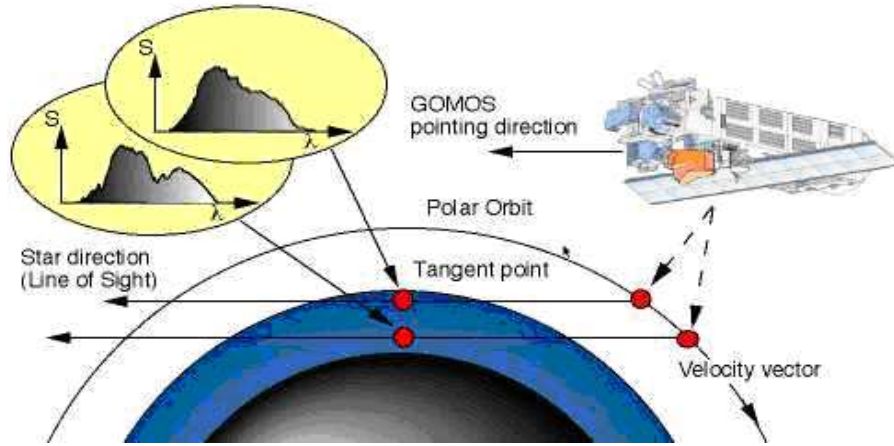


Fig. 13: Principe de l'occultation stellaire utilisée par l'instrument GOMOS à bord de la plateforme ENVISAT. source : <https://earth.esa.int/web/guest/missions/esa-operational-eo-missions/envisat/instruments/gomos/design>

section efficace d'absorption de l'ozone. Ces données sont inversées (inversion verticale) afin d'obtenir la distribution verticale de la densité locale d'ozone (mol/cm^3) en faisant l'hypothèse que l'atmosphère est localement sphérique. Pour l'ozone, les étoiles de magnitude supérieure à 1.9 et dont la température est inférieure à 1700 K ne fournissent pas de résultats suffisamment fiables au-dessus de 40 km [Kyrölä *et al.*, 2006] et ont donc été écartées dans les travaux de cette thèse. La résolution verticale des distributions d'ozone atteint 1.2 km. Dans cette thèse, les données d'ozone utilisées sont issues de la version 2 du produit GOMOS.

2.3 LMDz-Reprobus : un modèle de chimie climat (CCM)

2.3.1 Définition d'un CCM

Jusqu'à récemment, la plupart des études de modélisation de l'atmosphère étaient réalisées à partir de deux types de modèles : les modèles de circulation générale (GCM), et les modèles de chimie-transport (CTM) qui ne prennent que partiellement en compte les interactions entre les processus chimiques, dynamiques et radiatifs. Dans un GCM, la dynamique n'a pas d'influence sur la composition chimique qui est spécifiée *a priori*. Dans un CTM, la composition chimique n'a pas d'influence sur les taux de chauffage et la dynamique puisque les vents et les températures ne sont pas calculés mais spécifiés *a priori*. L'évolution grandissante des moyens de calcul ces 10 dernières années a permis le développement de CCM. Le CCM est un modèle de circulation générale (GCM) qui contient un schéma de transport de traceur et un module de chimie [Austin and Butchart, 2003; Eyring *et al.*, 2006]. Au lieu d'utiliser les climatologies des gaz radiatifs dans les calculs de transfert radiatif, le CCM utilise les champs des espèces radiatives calculés par le modèle lui-même, ce qui permet une véritable interaction entre la chimie, le rayonnement et la dynamique. Il est ainsi possible de calculer la réponse finale de

l'atmosphère à une perturbation de composition chimique ou à un forçage quelconque en prenant en compte le plus possible de rétroactions au sein de l'atmosphère.

2.3.2 LMDz-Reprobus

Le modèle de chimie climat LMDz-Reprobus est le résultat du couplage entre le modèle de circulation [Le Treut *et al.*, 1994, 1998; Lott *et al.*, 2005; Hourdin *et al.*, 2006, 2013] générale (GCM) LMDZ5 et le module de chimie stratosphérique qui est issu du modèle de chimie transport Reprobus [Lefevre *et al.*, 1994; Lefèvre *et al.*, 1998]. LMDz est basé, comme tous les modèles de circulation générale atmosphérique (GCM), sur la résolution numérique des équations primitives de la météorologie décrites dans de nombreux ouvrages (*e.g.* Holton [2004]). La coordonnée verticale utilisée est une coordonnée hybride (σ -P) et le nombre de niveaux verticaux est de 39 niveaux dont 15 niveaux sont situés au-dessus de 20 km et l'altitude maximum est située à 70 km. La résolution horizontale est de 3.75° en longitude et de 1.9° en latitude.

Le modèle calcule l'évolution temporelle de diverses variables contrôlant la structure thermique et dynamique de l'atmosphère. Les paramétrisations les plus importantes de la physique sont décrites ci-dessous. Le code radiatif provient de l'ancien schéma radiatif du modèle ECMWF. Il contient une partie solaire à deux bandes spectrales [Fouquart and Bonnel, 1980] et une partie infrarouge thermique [Morcrette *et al.*, 1986] qui prend en compte l'absorption et la réémission du CO₂, H₂O, O₃, N₂O, CH₄, CFC-11, CFC-12. Le schéma convectif s'appuie sur le schéma d'Emanuel [1991, 1993]. La paramétrisation des ondes orographiques de gravité est fondée sur Lott and Miller [1997] ; Lott [1999] et la paramétrisation des ondes de gravité non-orographiques est basée sur les travaux de Hines [1997] adaptés par Manzini *et al.* [1997]. LMDz contient également une couche d'amortissement des ondes de Rayleigh (couche éponge), entre 55 km et 65 km, qui permet d'amortir les ondes au sommet du modèle [Shepherd *et al.*, 1996]. Le transport des traceurs est calculé à partir du schéma de Van Leer I [Van Leer, 1977; Hourdin and Armengaud, 1999]. Les tendances dynamiques sont évaluées toutes les 3 minutes. Les processus physiques et le transfert radiatif sont calculés respectivement toutes les 30 minutes et toutes les 2 heures.

Le module de chimie Reprobus calcule l'évolution temporelle de 55 espèces atmosphériques et il inclut une description de la chimie stratosphérique (Ox, NOx, HOx, ClOx, BrOx et CH₃Ox). Il tient compte également de 160 réactions en phase gazeuse et de 6 réactions hétérogènes relatives à la chimie des aérosols sulfuriques et des nuages stratosphériques polaires (PSC). Les sections efficaces d'absorption et les constantes de vitesse des différentes réactions chimiques sont extraites des dernières recommandations de Sander *et al.* [2011]. Dans la troposphère, où la chimie n'est pas explicitement traitée par Reprobus, le modèle est forcé par des climatologies d'O₃, de CO et de NOx calculées à partir du modèle de chimie-transport TOMCAT [Law *et al.*, 1998; Savage *et al.*, 2004]. Le modèle de chimie climat LMDz-Reprobus a été évalué dans le cadre de l'activité SPARC (CCMVal et CCMI)

et a déjà été utilisé dans de nombreuses études [Eyring *et al.*, 2006; Jourdain *et al.*, 2008; CCMVal, 2010; Marchand *et al.*, 2012].

Le forçage solaire intervient à la fois dans les modules radiatif et photochimique du modèle LMDz-Reprobus. La faible résolution spectrale du code radiatif (seulement deux bandes dans la partie solaire) tend à sous-estimer la réponse de la température lorsque LMDZ est comparé aux autres modèles radiatifs se basant sur les mêmes forçages solaires [CCMVal, 2010; Forster *et al.*, 2011]. Pour la partie photochimique, les taux de photolyse utilisés dans Reprobus sont préalablement calculés à partir du modèle TUV (Tropospheric and Ultraviolet Visible, Madronich and Flocke [1999]) et stockés dans un tableau. Ces taux de photolyse sont exprimés en fonction de l'altitude (101 niveaux), de la colonne d'ozone (7 colonnes) et de l'angle zénithal (27 angles différents). Le calcul des coefficients est réalisé dans un domaine spectral qui s'étend de 116 à 850 nm. La résolution spectrale est de 1 nm sauf dans les régions spectrales d'intérêt pour l'étude des cycles solaires où la résolution spectrale atteint des valeurs de 0.01 nm dans les bandes de Schumann-Runge (175-205 nm), domaine spectral sensible à la photodissociation de l'oxygène moléculaire. Dans ce domaine, l'absorption de l'atmosphère peut être traitée bande-par-bande.

Chapitre 3

Méthodes

Sommaire

3.1	Analyse spectrale	44
3.1.1	Analyse FFT	44
3.1.2	Périodogramme de Lomb-Scargle	45
3.1.3	Analyse en ondelettes	47
3.2	Analyse croisée	47
3.2.1	Corrélation et Régression	47
3.2.2	Cohérence	49
3.3	Analyse statistique	49
3.3.1	Test de Student	49
3.3.2	Bootstrap	50

3.1 Analyse spectrale

3.1.1 Analyse FFT

La transformée de Fourier est l'un des outils fondamentaux utilisé pour l'analyse spectrale et temporelle des signaux. La première utilisation de cette méthode d'analyse a été réalisée par le mathématicien Joseph Jean Fourier en 1822 dans le cadre de ses études sur la conduction thermique. Cette analyse permet d'associer à la "*forme d'onde*" habituelle une autre représentation complémentaire dans le domaine fréquentiel. Le principe de cette analyse consiste en la décomposition d'un signal selon une superposition d'ondes sinusoïdales. Ainsi une fonction x de la variable t (dans cette thèse t représente le temps), notée $x(t)$, non périodique, peut se décomposer sous la forme d'une intégrale de Fourier selon l'équation E1 :

$$x(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} X(f) \exp^{j2\pi ft} df \quad (\text{E1})$$

où :

$$X(f) = \int_{-\infty}^{+\infty} x(t) \exp^{-j2\pi ft} dt \quad (\text{E2})$$

$X(f)$ représentant l'analogue de la fonction $x(t)$ mais dans le domaine des fréquences f .

Les fonctions $x(t)$ et $X(f)$ forment une paire de transformées de Fourier que l'on note :

$$x(t) \rightleftharpoons X(f) \quad (\text{E3})$$

Les fonctions mathématiques utilisées dans l'analyse de Fourier sont des sinusoïdes qui oscillent indéfiniment sans s'amortir. Cette analyse permet de déterminer les différentes fréquences excitées dans un signal que l'on caractérise en traçant le spectre de ce signal. Néanmoins, le principal inconvénient de l'analyse de Fourier réside dans l'absence totale d'information sur la variation temporelle des différentes composantes fréquentielles du signal. Un autre inconvénient inhérent au calcul de la transformée de Fourier réside dans la nécessité que le signal soit échantillonné avec un pas régulier. Dans les travaux de cette thèse, certains jeux de données ont nécessité une interpolation temporelle afin d'être analysées à l'aide de la transformée de Fourier.

En pratique, comme la transformée de Fourier comporte un nombre infini de termes, le calcul de la transformée de Fourier se base sur la TFD (Transformée de Fourier Discrète) qui est la version discrète de la transformation de Fourier. Elle s'écrit dans le cas d'un signal de dimension N :

$$X(k) = \sum_{n=0}^{N-1} x(n) \exp^{-j2\pi k \frac{n}{N}} \quad \text{pour } 0 \leq k < N \quad (\text{E4})$$

Néanmoins, le calcul de la TFD d'un signal nécessite un grand nombre d'opérations. Un échantillon

de taille N nécessite N^2 opérations. L'algorithme de la FFT (Fast Fourier Transform) a été créé [Cooley and Tukey, 1965] afin d'écourter le temps de calcul, en réduisant le nombre d'opérations, en particulier, le nombre de multiplications à effectuer. Dans le cas de la FFT, la TFD du signal s'écrit sous la forme de deux TFD de plus petite longueur ($N/2$). Le nombre d'opérations nécessaires est alors considérablement réduit et est égal à $N \log_2(N)$.

3.1.2 Périodogramme de Lomb-Scargle

Généralement les séries d'observations (solaire et ozone) présentent des discontinuités temporelles. C'est pourquoi l'analyse spectrale de ces séries par transformée de Fourier devient délicate et n'est possible qu'après les avoir interpolé temporellement. Afin de limiter l'impact de cette interpolation sur les résultats de l'analyse, nous avons choisi une autre méthode d'analyse spectrale : le périodogramme normalisé de Lomb-Scargle [Lomb, 1976; Scargle, 1982]. Le principe de son algorithme est basé sur l'interpolation des données avec une série d'harmoniques, utilisant la méthode des moindres carrés.

La densité de puissance du périodogramme augmente proportionnellement avec le nombre d'observations N . Ainsi, lorsque l'échantillon augmente, la détection d'un signal devient plus fine. La Figure 14 présente plusieurs périodogrammes calculés à partir de séries synthétiques (somme de sinus dont les périodes propres sont 27, 13.5, 9 et 6.7 jours) et dont on a artificiellement enlevé un certain pourcentage de données (10, 20 et 50%). La courbe noire représente le périodogramme de la série synthétique complète (sans trou), la courbe rouge la même série synthétique dont 10% des données ont été retirées aléatoirement, la courbe bleue caractérise la série avec 25% de données manquantes et enfin la courbe verte représente la série avec 50% de données manquantes. On constate que la détection des différentes périodes est toujours visible, et que seule l'amplitude de chaque pic varie suivant le nombre d'observations. L'avantage de cette méthode est que le périodogramme du cas irrégulier conserve les caractéristiques statistiques simples du périodogramme classique du cas régulier.

A titre de comparaison, les périodogrammes des séries solaires reconstruites (modèles NRL et MGNM) du flux solaire à 205 nm sont représentés sur la Figure 15 ainsi que le périodogramme de la série synthétique sans trou.

Le calcul des périodogrammes permet également de fixer un seuil de significativité des résultats que nous avons choisi de fixer à 95% et qui est représenté en pointillé sur les Figures 14 et 15. Les pics dépassant ce seuil montrent des périodicités significatives dans la série analysée, avec une probabilité d'avoir raison à 95%. La Figure 15 montre la présence de signaux à 27 jours et 13.5 jours dans les données solaires, mais seul le signal à 27 jours apparaît statistiquement significatif.

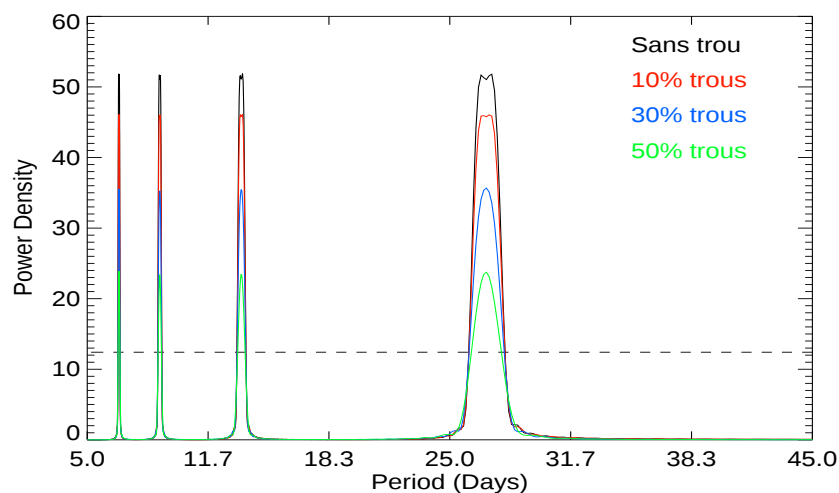


Fig. 14: Périodogrammes pour un signal synthétique (somme de sinus) en noir, pour le même signal avec 10% de données manquantes en rouge, 25% de données manquantes en bleu et 50% de données manquantes en vert. La ligne horizontale représente le seuil à 95% de significativité de ces séries temporelles

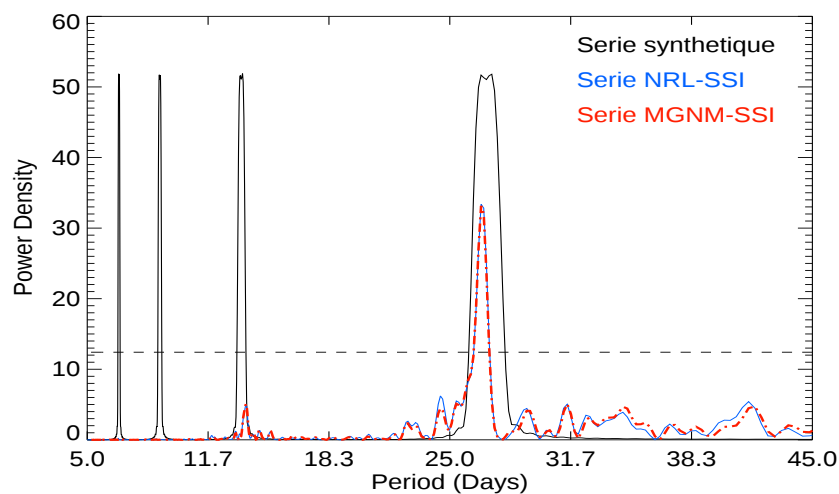


Fig. 15: Périodogrammes calculés à partir des séries solaires du flux solaire à 205 nm reconstruites à partir des modèles NRL-SSI (bleu) et MGNM-SSI (rouge). Le périodogramme de la série synthétique complète est représentée par la courbe noire. La ligne horizontale représente le seuil à 95% de significativité de chaque série temporelle

3.1.3 Analyse en ondelettes

Pour analyser les séries temporelles à la fois temporellement et fréquentiellement, le signal est décomposé à l'aide de fonctions localisées à la fois dans le domaine temporel et le domaine fréquentiel. Pour définir ces fonctions, on se base sur une fonction $\Psi(t)$ appelée "*ondelette mère*". Le terme "*ondelette*" se définit comme une petite oscillation localisée temporellement ; c'est une fonction de carré sommable dont l'intégrale temporelle doit être nulle ainsi que ces m premiers moments. L'ondelette mère engendre les autres ondelettes de la famille appelées "*ondelettes filles*" $\Psi_{a,b}(t)$ par dilatation (paramètre a) et par translation (paramètre b).

L'ondelette fille est définie par l'équation suivante :

$$\Psi_{a,b}(t) = \frac{1}{\sqrt{a}} \Psi\left(\frac{t-b}{a}\right) \quad (\text{E5})$$

où $\Psi_{a,b}(t)$ représente la famille des ondelettes filles, Ψ représente l'ondelette mère, les paramètres a et b sont respectivement les paramètres de dilatation et de translation et t représente le temps.

L'algorithme de transformation en ondelettes discrètes le plus simple consiste en la convolution du signal analysé avec l'ondelette, en dilatant ou en contractant cette dernière selon l'échelle à laquelle on souhaite faire l'analyse. Dans toute la suite du manuscrit, l'analyse en ondelettes des différents signaux a été réalisée à partir de l'ondelette mère Morlet avec 6 coefficients (voir *Farge* [1992] ; *Torrence and Compo* [1998]).

3.2 Analyse croisée

3.2.1 Corrélation et Régression

Le coefficient de corrélation de Pearson est un indice statistique qui exprime l'intensité et le sens (positif ou négatif) de la relation linéaire entre deux variables quantitatives. C'est une mesure de la liaison linéaire, c'est à dire de la capacité de prédire une variable X par une autre Y à l'aide d'un modèle linéaire. C'est donc un paramètre important dans l'analyse des régressions linéaires (simples et multiples). En revanche, ce coefficient est nul ($r=0$) lorsqu'il n'y a pas de relation linéaire entre les variables (ce qui n'exclut pas l'existence d'une relation autre que linéaire). Par ailleurs, le coefficient est de signe positif si la relation est positive (directe, croissante) et de signe négatif si la relation est négative (inverse, décroissante). Ce coefficient varie entre -1 et +1. L'intensité de la relation sera donc d'autant plus forte que la valeur du coefficient est proche de -1 ou de +1, et d'autant plus faible qu'elle est proche de 0.

- une valeur proche de +1 montre une forte liaison entre les deux variables. La relation linéaire est ici

croissante (*i.e.* que les deux variables varient dans le même sens)

- une valeur proche de -1 montre également une forte liaison entre les deux variables. La relation linéaire est ici décroissante (*i.e.* que les deux variables varient dans le sens contraire)

- une valeur proche de 0 montre une absence de relation linéaire entre les deux variables

L'existence d'une corrélation élevée entre deux variables X et Y ne conduit pas à l'existence d'une relation de cause à effet. On utilise la connaissance de X pour prédire des valeurs de Y ; cela n'implique pas qu'un changement de X cause un changement de Y.

Le coefficient de corrélation de Pearson entre les deux variables X et Y est égal au rapport de la covariance de X et Y (notée $cov(X,Y)$), et du produit non nul des écart-types de X et Y (notés respectivement σ_X et σ_Y). Le coefficient de corrélation noté r s'exprime donc comme :

$$r = \frac{cov(X,Y)}{\sigma_X \cdot \sigma_Y} \quad -1 \leq r \leq 1 \quad (E6)$$

où :

$$cov(X,Y) = \frac{\sum_{i=1}^n (X_i - m_X)(Y_i - m_Y)}{n} \quad (E7)$$

$$\sigma_X^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (X_i - m_X)^2}{n} \quad (E8)$$

$$\sigma_Y^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (Y_i - m_Y)^2}{n} \quad (E9)$$

n étant l'effectif de l'échantillon, (x_i, y_i) représentent les couples de coordonnées de X et Y pour $i=1, \dots, n$, m_X et m_Y représentent les moyennes de X et Y.

La régression linéaire simple permet d'expliquer la variation d'une variable dépendante par l'action d'une variable explicative. En supposant une relation linéaire entre la variable expliquée et la variable explicative, la méthode de régression linéaire décrit la variable expliquée selon l'équation suivante :

$$Y(t) = \beta + \alpha X(t) + \epsilon(t) \quad (E10)$$

où $Y(t)$ est la variable expliquée, t est le temps (en jours) allant de 1 à N , $X(t)$ est la variable explicative et $\epsilon(t)$ est le terme résiduel du modèle de régression. Les paramètres α et β sont les coefficients de régression. Ils sont calculés par la méthode des moindres carrés qui est l'estimateur sans biais le plus utilisé pour le calcul de ces coefficients dans un modèle de régression. Le principe des moindres carrés consiste à rechercher les valeurs des paramètres qui minimisent la somme des carrés

des résidus.

3.2.2 Cohérence

La cohérence est une mesure statistique qui permet d'estimer, pour chaque fréquence, le degré de corrélation entre deux signaux. Son expression est donnée par :

$$C_{xy}(f) = \frac{E[X(f)Y^*(f)]}{\sqrt{(E[|X(f)|^2] \cdot E[|Y(f)|^2])}} \quad (\text{E11})$$

où $X(f)$ et $Y(f)$ désignent respectivement les transformées de Fourier de $x(t)$ et $y(t)$ ($x(t)$ et $y(t)$ étant les deux signaux dont on souhaite mesurer le degré de corrélation). $E[...]$ représente l'espérance mathématique, $E[|X(f)|^2]$ (respectivement $E[|Y(f)|^2]$) représente la densité spectrale de puissance du signal $x(t)$ (respectivement $y(t)$), et $E[X(f).Y^*(f)]$ représente la densité spectrale d'interaction des signaux $x(t)$ et $y(t)$. La valeur de la cohérence spectrale est toujours comprise entre 0 et 1. Une cohérence égale à 0 pour une fréquence donnée indique que les composantes des deux signaux à cette fréquence sont complètement décorrélées. Au contraire, une cohérence égale à 1 indique que les composantes à cette fréquence sont totalement corrélées, ou encore que l'une des composantes peut être obtenue par filtrage linéaire et stationnaire de l'autre composante.

3.3 Analyse statistique

3.3.1 Test de Student

Après avoir calculé le coefficient de corrélation de Pearson, il faut déterminer si celui-ci est significativement non nul. Pour cette détermination, le test de Student est utilisé. Préalablement, deux hypothèses sont définies :

- H_0 (hypothèse nulle) : $\rho = 0$ (le coefficient de corrélation de Pearson est égal à 0)
- H_1 bilatérale : $\rho \neq 0$ (le coefficient de corrélation de Pearson est différent de 0)

La statistique du test s'appuie sur le calcul de t_0 qui suit la loi de Students.

$$t_0 = \frac{r}{S_r} = \frac{r\sqrt{n-2}}{\sqrt{1-r^2}} \quad -1 \leq r \leq 1 \quad (\text{E12})$$

avec

$$S_r = \sqrt{\frac{1-r^2}{n-2}} \quad (\text{E13})$$

ρ est le coefficient de corrélation de Pearson, n est la longueur de la série temporelle. H_0 est rejetée si $t_0 > t_{\alpha, n-2}$. $t_{\alpha, n-2}$ est donné dans la table de Students avec α le risque de première espèce et $n-2$ le

nombre de degrés de liberté.

3.3.2 Bootstrap

Afin d'améliorer la robustesse de l'estimation des erreurs, la méthode du *bootstrap* [Efron and Tibshirani, 1994] est utilisée. Cette méthode ne nécessite pas d'hypothèses ou conditions particulières. Une première régression linéaire est réalisée afin d'obtenir une première estimation de $\widehat{Y}_{fit}$ et $\widehat{\epsilon}(t)$. Un nouvel échantillon ($\widehat{Y}(t)$) est construit selon la procédure suivante : A chaque pas de temps, une valeur prise au hasard $\widehat{\epsilon}(t)$ est ajoutée à $\widehat{Y}(t)$. Une valeur de $\widehat{\epsilon}(t)$ peut être utilisée plusieurs fois car elle est remise après chaque tirage. Une nouvelle régression linéaire est alors appliquée à partir de ce nouvel échantillon. Cette procédure est répétée 10000 fois afin d'obtenir un nombre important d'estimation du coefficient de régression $\widehat{\alpha}$. La moyenne de ces 10000 estimations d'un coefficient de régression est définie comme sa valeur ($E(\widehat{\alpha}_n) = \alpha_n$) et l'écart-type de ces estimations comme l'erreur associée ($\sigma(\widehat{\alpha}_n) = \alpha_n$).

La méthode du *bootstrap* est une méthode dite de ré-échantillonnage simple à appliquer. L'inconvénient de cette méthode est qu'elle nécessite un nombre de calcul conséquent mais néanmoins cette méthode améliore considérablement la statistique de l'estimation des erreurs et donc la robustesse.

Chapitre 4

Sensitivity of tropical stratospheric ozone to rotational UV variations estimated from UARS and Aura MLS observations during the declining phases of solar cycles 22 and 23

Sommaire

4.1	Introduction	54
4.2	Data description	57
4.2.1	205 nm solar flux	57
4.2.2	Tropical stratospheric ozone	58
4.3	Results and discussion	59
4.3.1	Analysis of raw data	59
4.3.2	Analysis of filtered data	68
4.3.3	Analysis of interannual variations	72
4.4	Summary and concluding remarks	78

Résumé

Ce chapitre est l’objet d’un article qui a été soumis dans *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, dont le résumé est ci-dessous.

La corrélation entre l’ozone stratosphérique tropical et le rayonnement solaire UV aux échelles de temps du cycle rotationnel solaire (environ 27 jours) est examinée à l’aide de données journalières d’ozone mesuré par satellite (MLS/UARS et MLS/Aura) et de spectres solaires journaliers reconstruits (modèle NRL-SSI). Dans cette étude, deux périodes de trois ans durant les phases descendantes des cycles solaires à 11 ans, cycle 22 (1991-1994) et cycle 23 (2004-2007) sont considérées. Le proxy solaire choisi est le flux UV à 205 nm (F205) tiré du modèle de reconstruction NRL-SSI. F205 correspond à un domaine de longueur d’onde crucial pour la photolyse de l’oxygène moléculaire qui est la seule source d’ozone dans la stratosphère. Il apparaît que le cycle solaire à 27 jours est très irrégulier, semblant disparaître pendant des périodes assez longues, comme en témoigne l’absence de ce cycle pendant 6 mois lors de la période 2004-2007. Lors de la première période d’étude (1991-1994), l’analyse conjointe des séries temporelles ozone et F205 montrent une corrélation sur un domaine d’altitude compris entre 10 et 1 hPa (entre 32 et 48 km) avec une valeur maximum de 0.29 vers 5 hPa (35 km). La sensibilité, définie comme le % de variations d’ozone pour une variation d’1% d’un indice solaire, se caractérise par une valeur maximale de 0.4%/%. Lors de la deuxième période d’étude (2004-2007), les résultats montrent une corrélation plus petite et un pic de sensibilité de 0.2%/%. Il s’avère que la corrélation varie grandement, non seulement avec l’altitude, mais également d’une année sur l’autre (forte variabilité interannuelle). De manière inattendue, l’occurrence du maximum de sensibilité n’est pas en phase avec l’occurrence du maximum du forçage solaire. En effet, le forçage solaire rotationnel est maximum lors de la première année (1991-1992), mais la corrélation entre ozone et flux solaire UV n’est pas maximale durant cette période. Le maximum de sensibilité apparaît plutôt vers la fin de 1993, période se caractérisant par une faible amplitude du cycle solaire à 27 jours. Le même résultat est également observé lors de la deuxième période (2004-2007) avec un maximum de forçage solaire la première année mais un maximum de corrélation les années suivantes. N’ayant considéré que trois années de données pour chaque période, il n’est pas possible de conclure à un quelconque effet systématique. Ces résultats laissent plutôt supposer que d’autres sources de variabilité influencent l’ozone aux mêmes échelles de temps et peuvent ainsi masquer le signal solaire, du moins sur un intervalle d’un an, même pendant les périodes de forte activité solaire.

Lorsque la sensibilité est calculée sur une fenêtre glissante d’1 an, les valeurs max de la sensibilité, situées entre 5 et 2 hPa, se caractérisent par une dispersion très importante pouvant aller d’une valeur de 0%/ % jusqu’à des valeurs proches de 1%/ %. Pour expliquer ces résultats, d’autres sources de variabilité (*e.g.* dynamique) doivent être prises en compte. Ces sources opèrent à des échelles de temps rotationnels (27 jours) et tendent à masquer le signal solaire dans les séries temporelles d’ozone.

Même en considérant trois années d’observations (équivalent à environ 40 cycles solaires rotationnels), une estimation précise du signal solaire apparaît difficile lors de ces périodes (phases descendantes). Les données satellitaires d’ozone disponibles ne couvrant au mieux que trois cycles solaires de 11 ans, une estimation fiable de la réponse de l’ozone stratosphérique aux échelles de temps du cycle de 11 ans apparaît encore plus difficile, surtout en présence de variabilité climatique décennale.

Dans ce chapitre, nous étudions la réponse de l’ozone stratosphérique tropical aux variations du flux solaire UV ainsi que sa variabilité interannuelle à partir d’observations réalisées au cours des phases descendantes des cycles solaires 22 (10/1991-09/1994) et 23 (09/2004-08/2007). Dans une première partie, nous présentons les données ozone (MLS/UARS et MLS/Aura) et solaire (modèle NRL-SSI) utilisées dans cette étude. Dans un second temps, nous analysons les données brutes à partir d’outils d’analyse spectrale communément utilisés (spectres de puissance, périodogrammes de Lomb-Scargle, transformée en ondelettes). Puis, nous caractérisons et quantifions la réponse de l’ozone aux variations solaires à partir des données filtrées. Enfin, nous analysons les variations inter-annuelles de cette réponse. Dans une dernière partie, nous présentons les principales conclusions et perspectives de cette étude.

4.1 Introduction

Solar radiation is the main source of input energy to the terrestrial atmosphere and, as such, it partly determines the Earth’s radiative balance and climate. The total input energy is quantified with the Total Solar Irradiance (TSI). TSI varies on different time scales; the two most important cycles are the 11-year solar magnetic activity cycle (also called the Schwabe cycle) and the 27-day solar rotationnel cycle (also called the Carrington cycle). Changes in TSI over an 11-year solar cycle are typically 0.1% only (about 0.24 W.m^{-2}) at the top of Earth’s atmosphere which is expected to have a relatively limited influence on climate. However, irradiance changes strongly depend on the considered wavelength region. The amplitude of irradiance changes during an 11-year solar cycle is greater at shorter wavelengths, with variations of 6-8% around 200-205 nm over a solar cycle, and even much greater near the Extreme UV (EUV) domain and Lyman- α line (121.57 nm). The magnitude of variations in UV during the 27-day cycle can reach values close to that during the 11-year cycle, but only during 11-year solar maxima. The 11-year solar cycle is caused by the variability of solar magnetic activity whereas the rotational cycle is caused by the longitudinally inhomogeneous distribution of magnetic field features (sunspots and faculae) at the surface of the rotating Sun.

Several datasets for the past Spectral Solar Irradiance (SSI, spectrally resolved solar irradiance) and Total Solar Irradiance (TSI) have been produced using different proxy-based reconstruction approaches [Lean *et al.*, 2005; Krivova *et al.*, 2009] and satellite measurements period. There is a consensus on an average TSI value of $1360.8 \pm 0.5 \text{ W.m}^{-2}$ [Kopp and Lean, 2011; Ermolli *et al.*, 2013]. However, there are still very substantial disagreements, on the variability and trend in TSI and SSI. For instance, the TSI during the Maunder minimum was estimated to be about 3–4 W.m^{-2} lower than the present TSI [Lean *et al.*, 2005] whereas more recent reconstructions [Steinhilber *et al.*, 2009; Fröhlich, 2009] derived a TSI change a factor 3 to 4 times smaller. Regarding SSI, the situation appears to be more confused, notably for solar cycle 23. SSI measurements on the SORCE (Solar Radiation and Climate Experiment) satellite during the declining phase of solar cycle 23 (*i.e.* 2004 to 2008) show an unexpected behavior with a trend in UV [Harder *et al.*, 2009] being found to be several times higher than all recent

estimates for the 11-year cycles [Lean *et al.*, 2005]. More surprisingly, the trends in UV radiation and TSI were found to be opposite to the trend in visible radiation [Harder *et al.*, 2009], which is not at all consistent with proxy-based linear extrapolations commonly used in reconstructing past irradiances [Pagaran *et al.*, 2011]. The substantial differences between the SSI datasets available for the declining phase of solar cycle 23 lead to different atmospheric and climate responses when they are used to force climate models [Shapiro *et al.*, 2011]. If the SORCE SSI measurements are to be confirmed [Garcia, 2010], it will be dramatically affect our understanding of the ozone and climate sensitivity to solar variations [Haigh *et al.*, 2010; Merkel *et al.*, 2011]. It is worth pointing out that there is a strong possibility that the SORCE instrument has suffered from degradation with time resulting in an overestimation of the UV decline during cycle 23 [Lean and DeLand, 2012; DeLand and Cebula, 2012; Ermolli *et al.*, 2013]. The exceptional character of the 23rd solar cycle was also seen in the current decline in the peak and mean of the group sunspot number that appears to be the largest since the onset of the Maunder Minimum [Lockwood, 2011]. Thermospheric densities in 2007–2009 were also the lowest observed in a 43-year database with anomalies starting well before 2006 [Emmert *et al.*, 2010] with the primary cause for the record low thermospheric density being the exceptionally low level of solar extreme ultraviolet irradiance [Solomon *et al.*, 2010]. Clearly, the substantial differences between the different SSI datasets available lead to different atmospheric and climate responses when they are used to force climate models [Shapiro *et al.*, 2011].

It is now acknowledged that the coupling between ozone and UV radiation, and the subsequent propagation of middle atmospheric solar-driven perturbations toward the lower atmosphere may play a very significant role in the overall atmospheric and climate responses to solar variability [Haigh, 2007; Haigh *et al.*, 2010; Gray *et al.*, 2010; Ermolli *et al.*, 2013]. Therefore, it is important to characterize the response of the stratosphere, notably ozone, to changes in solar spectral irradiance. Indeed, accurate observational characterizations are needed for evaluating chemistry-climate models that attempt to simulate the influence of solar variability on the middle atmosphere. Most of observational and modeling studies have focused on the impact of solar ultraviolet irradiance on the tropical middle atmosphere, more particularly on ozone and temperature [Hood, 2004; Soukharev and Hood, 2006; Austin *et al.*, 2007; Randel and Wu, 2007; Remsberg *et al.*, 2008; Fioletov, 2009]. These studies found a change in the range of 2 to 4% in ozone mixing ratio from solar maximum to solar minimum of an 11-year solar cycle with a maximum change occurring near 40 km.

The purpose of the present study is to analyze the short-term (*i.e.* rotational timescales) solar forcing of tropical stratospheric ozone during the descending phases of different 11-year solar cycles. The sensitivity of stratospheric ozone to solar variability is a key constraint on models that attempt to simulate the response of the stratosphere to solar variations [Brasseur, 1993; Fleming *et al.*, 1995; Chandra and McPeters, 1994b]. Studies of ozone variability on rotational timescales may not only improve our understanding of short-term solar-driven ozone variability but can also provide a valuable insight into the mechanisms driving the stratospheric response on longer time scales. The focus is

on the rotational cycle because satellite time series cover many more rotational cycles than 11-year cycles. Solar UV irradiance and ozone have been monitored from satellite since 1978, which covers only about three 11-year solar cycles. Because of the natural variability on inter-annual time scales, it is desirable to consider at least several 11-year cycles in order to extract a robust 11-year solar signal. During the last 3-4 decades, the ozone variability was also driven by other natural and anthropogenic influences, notably volcanic eruptions in alignment with periods of high solar activity, making it even more complicated the estimation of an 11-year solar cycle signal from observations [Chiodo *et al.*, 2014]. Finally, the estimation of a solar signal in ozone variations on longer timescales is more sensitive to long-term instrumental drifts than on shorter time scales. For these reasons, studies of the rotational cycle are expected to provide more statistically significant and robust results than studies of the 11-year solar cycle. Several studies have been carried out to determine the relationship between UV solar flux and stratospheric ozone on rotation timescales. Most analyzed satellite observations over selected parts of a single solar cycle : cycle 21 maximum for Hood [1986], cycle 22 descending phase for Zhou *et al.* [1997] and Hood and Zhou [1998], and cycle 23 descending phase for Ruzmaikin *et al.* [2007] and Dikty *et al.* [2010]. Others considered parts of two cycles : from cycle 21 maximum phase to cycle 22 descending phase for Chandra and McPeters [1994a], maxima and descending phase of cycles 21 and 22 for Zhou *et al.* [2000], and from cycle 21 maximum to cycle 23 descending phase for Fioletov [2009]. Chemistry-transport models have also been used to determine relationship between UV solar flux and tropical stratospheric ozone on solar rotational time scales [Brasseur, 1993; Williams *et al.*, 2001; Rozanov *et al.*, 2006; Austin *et al.*, 2007; Gruzdev *et al.*, 2009; Merkel *et al.*, 2011]. Comparing quantitative results from different studies can be challenging because data filtering, statistical methods, solar and ozone datasets and time periods can differ quite substantially. It is often not possible to identify unambiguously the origins of differences between similar studies.

The objective of the present study is to explore inter-annual variations in the ozone-UV relationship on rotational timescales and assess to what extent it varies not only within the declining phase of 11-year cycle but also from one 11-year cycle to another. Indeed, the amplitude and coherence of short-term solar UV variations may vary between solar cycles. In addition, the ozone response to UV changes during the descending phase of two different solar cycles may not be identical because the average solar spectrum may have changed, thus preconditioning the atmosphere in different ways. Comparing two solar cycles is partly inspired by studies that analyzed how the response of stratospheric ozone to solar UV variations varied between two relatively similar cycles, cycles 21 and 22 [Chandra and McPeters, 1994a; Hood and Zhou, 1998]. As in the present study, Fioletov [2009] analyzed the rotational solar signal in cycles 22 and 23 but did not investigate the year-to-year variability. We consider ozone datasets obtained from different satellite plate-forms (UARS and Aura) but with a similar instrument (MLS, Microwave Limb Sounder). The MLS/UARS observations started on 19 September 1991 but their coverage became more intermittent in 1994 because the antenna scanning mechanism began to exhibit signs of wear and it was exacerbated by problems with the UARS power system. The MLS/Aura observations started on 13 August 2004. In order to consider the same solar

cycle phase in the two MLS datasets, two 3-year periods are selected (from 10/1991 to 09/1994, and from 09/2004 to 09/2007). Both periods correspond to the descending phase of 11-year solar cycles, cycle 22 (1985-1996) and cycle 23 (1996-2009). There is a great deal of observational evidence that the solar cycle 23 was rather exceptional with respect to cycles 21 and 22. Cycle 23 decline in the peak and mean group sunspot number appears to be the largest since the onset of the Maunder Minimum [Lockwood, 2011] and thermospheric densities in 2007-2009 were also the lowest observed in a 43-year database with anomalies starting well before 2006 [Emmert *et al.*, 2010], the primary cause being anomalously low levels of solar extreme ultraviolet irradiance [Solomon *et al.*, 2010]. Note that the current debate on the UV decline during the descending phase of cycle 23 [Ermolli *et al.*, 2013] has no relevance here because there is a general agreement on the short-term rotational variations between SORCE data, reconstructed data [Lean *et al.*, 2005] and concurrent observations [DeLand and Cebula, 2012].

The solar rotational characteristics (major periodicities, correlation with short-term solar variability,...) in the ozone time series are estimated from commonly used filtering and spectral techniques. All datasets are processed and analyzed exactly with the same algorithms; that way, differences in solar rotational signals between the two cycles cannot be attributed to differences in statistical treatments. The solar variability is characterized with the 205 nm solar flux [Lean *et al.*, 2005; Thuillier *et al.*, 2012] : this wavelength region is critical for stratospheric ozone photochemistry [Brasseur and Solomon, 2005].

The plan of the article is the following. Section 2 provides a brief description of data series and methods used in this study. Results are discussed in Section 3. A summary and conclusions can be found in Section 4.

4.2 Data description

4.2.1 205 nm solar flux

As explained in the introduction, the solar input used in this study is the spectral irradiance at 205 nm (from both measurements and reconstructions). This wavelength is chosen because it is important for the ozone chemical budget throughout the stratosphere. It corresponds to a so-called window region that is positioned between two strong absorption bands : the Schumann-Runge band of molecular oxygen and the Hartley band of ozone [Brasseur and Solomon, 2005]. In this region, atmospheric absorption is very low and hence solar UV radiation penetrates deeply in the atmosphere, down to the lower stratosphere, where it photolyzes molecular oxygen (O_2) to produce O_3 . The 205 nm flux, called thereafter F205, has been commonly used in previous studies because it's a very good proxy for characterizing solar variability in the UV domain. F205 is taken from semi-empirical reconstructions

carried out with a well-established and widely used solar spectral irradiance model, the Naval Research Laboratory Solar Spectral Irradiance (NRL-SSI) reconstruction model. This model uses inputs such as photospheric sunspot index and the Mg II index to calculate the contribution of sunspots and faculae to irradiance changes. Below 400 nm, spectral irradiances are derived from a multiple linear regression analysis of UARS/SOLSTICE (SOLar Stellar Irradiance Comparison Experiment on board Upper Atmospheric Research Satellite [Rottman *et al.*, 1993]) observations (for more information, see [Lean, 1997] and [Lean, 2000]). We use the NRL-SSI model to generate the time series of daily F205.

4.2.2 Tropical stratospheric ozone

The interest of this study is based on the use of two data sets of ozone over two different solar cycles which are measured by instruments using the same technique : the MLS instrument for both data series (MLS/UARS and MLS/Aura ozone data sets). The focus is on the tropics because the ozone response to solar variability is mostly driven by photochemistry in this region and thus easier to be interpreted. Time series of daily tropical ozone mixing ratios are generated by averaging zonally all the MLS ozone profiles between 20°N and 20°S for a given day (24 hr).

The Microwave Limb Sounder (MLS) is one of the ten UARS instruments. The UARS satellite was launched on 12 September 1991, into a 57° inclination and a 585 km altitude orbit. Waters [1989], Waters [1993] describe in detail the microwave limb-sounding technique. The ozone retrieval is based on 205 GHz radiances. The typical 1- σ precision for ozone mixing ratio measurements is 0.5 ppmv at 0.46 hPa, 0.3 ppmv at 1-4.6 hPa and 0.2 ppmv at 10-46 hPa. As shown in Hood and Zhou [1998], an artificial 36-day periodicity, caused by the UARS yaw maneuver cycle [Froidevaux *et al.*, 1994], is present in zonally averaged MLS data. This periodicity is present at all latitudes and increases with increasing altitude. Hood and Zhou [1998] suggested to remove this artificial periodicity by considering only daytime measurement near a local time for zonal mean calculations. However, the fraction of daytime measurements over a small range of local time is so low that this approach leads to much larger sampling errors and time gaps in the zonal averages. That is why Hood and Zhou (1998) used both night and day measurements, as in this study. It has to be mentioned that there are a very substantial ozone diurnal variations above 2 hPa [Parrish *et al.*, 2014] increasing with altitude. Solar signals estimated from regression on ozone measurements at fixed local times (*e.g.* solar occultation measurements) are not affected by diurnal variations. However, in the case of measurements taken at local times varying from day to day (*e.g.* MLS), the diurnal cycle can introduce spurious variations in the temporal evolution of the daily zonal mean, increasing the solar signal-to-noise ratio and thus making much less accurate the estimation of the solar signal. This effect depends on the relative amplitudes of the ozone diurnal and solar variations and on the spatio-temporal sampling of the measurements.

The Microwave Limb Sounder (MLS) is one of the four instruments on board the Aura satel-

lite, which was launched on 15 July 2004 into a sun-synchronous near-polar orbit around 705 km in order to study atmospheric chemistry and dynamics. Aura MLS is an advanced successor to the MLS instrument on UARS. Detailed information on the microwave technique in general and the Aura MLS instrument in particular is given in *Waters* [1993] and *Waters et al.* [2006]. MLS observes a large suite of atmospheric parameters by measuring millimeter- and submillimeter-wavelength thermal emission from Earth’s limb with seven radiometers covering five broad spectral regions (118, 190, 240, 640 GHz and 2.5 THz). The “standard product” of ozone is retrieved from radiance measurement near the 240 GHz. The version 2.2 of the MLS ozone product is used in this study. The Aura MLS fields of view point forward in the direction of orbital motion and vertically scan the limb in the orbit plane. That is leading to data coverage from 82°N to 82°S latitude on every orbit. Thus, Aura MLS provides continuous daily sampling of both polar regions, with none of the temporal gaps from yaw maneuvers that occurred with UARS MLS. The MLS limb scans are synchronized to the Aura orbit, with 240 scans per orbit at essentially fixed latitudes. This results in about 3500 scans per day, with an along-track separation between adjacent retrieved profiles of 1.5° great circle angle. The longitudinal separation of MLS measurements, set by Aura orbit, 10-20° over low and middle latitudes, with much finer sampling in the polar regions. The vertical resolution is about 3 km in upper troposphere and stratosphere and about 4-6 km in mesosphere. The 1- σ precision for ozone mixing ratio measurements is about 0.1 to 0.3 from 46 hPa to 0.5 hPa.

4.3 Results and discussion

4.3.1 Analysis of raw data

Figure 16 shows the temporal evolution of the daily F205 solar flux the from NRL-SSI model [*Lean et al.*, 2005] over the two last full 11-year solar cycles (cycles 22 and 23). The two 3-year periods considered in this study (from 10/1991 to 09/1994 and from 09/2004 to 08/2007) are highlighted in red in the figure; they both falls within a descending phase of an 11-year solar cycle. The high-frequency variability in the F205 time series largely originates from the solar rotational cycle. For the sake of simplicity, the 3-year periods of cycles 22 and 23 will be referred thereafter as the 1991-94 period and the 2004-07 period respectively and the so-called 27-day solar cycle as the rotational cycle.

Figures 17.a and 17.b show the power spectral density of F205 time series for the 1991-94 period (*i.e.* from 10/1991 to 09/1994) and the 2004-07 period (*i.e.* from 09/2004 to 08/2007) respectively. In both power density spectra, there is a broad peak between 20 and 35 days with a maximum around 27 days (indicated by a vertical dotted line). The broadness of the peak indicates that the solar rotational modulation varies in period and intensity. The solar rotational modulation is stronger during the 1991-94 than the 2004-07 period. A secondary peak around the first harmonic (13.5 days) of the main solar rotational period (27 days) is also visible for both periods; its power density is about an order of magnitude smaller than the 27-day peak. This periodicity is mostly caused by the presence

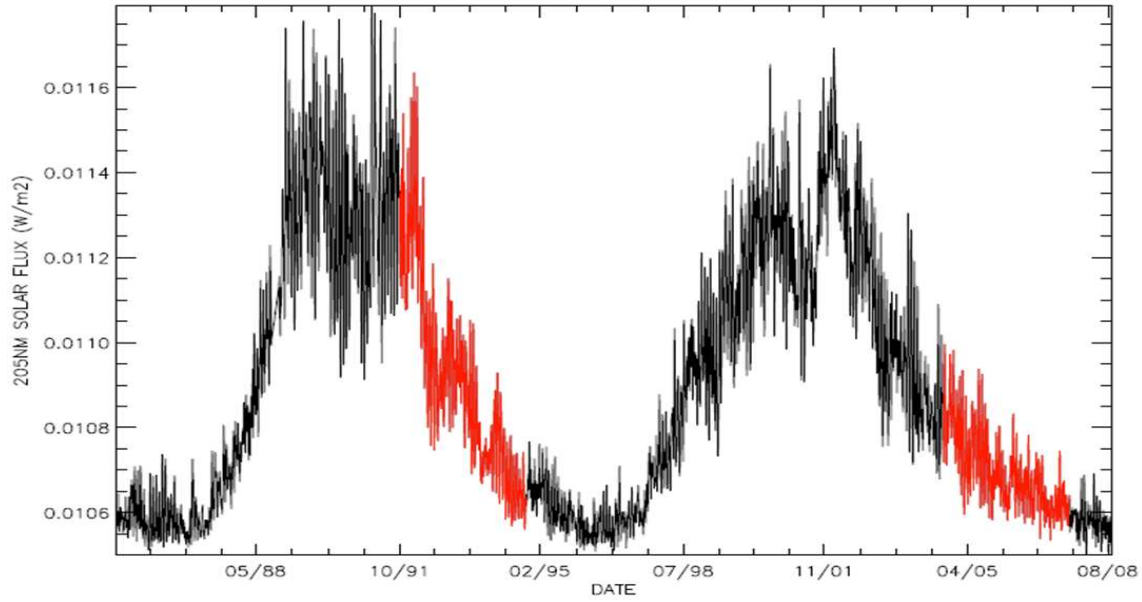


Fig. 16: Temporal evolution of daily 205 nm solar flux from NRL-SSI model over solar cycles 22 (1985-1996) and 23 (1996-2008). The two 3-year periods considered here (10/1991-09/1994 and 09/2004-08/2007) are highlighted in red.

on the Sun surface of two sunspots which rotate with the same period but are separated by about 180° in longitude [Bai, 2003; Zhang *et al.*, 2007]. These findings are in agreement with previous results [Fioletov, 2009]. Using a range of solar proxies (Mg II, F10.7 cm, Lyman- α , F205 nm), Fioletov [2009] found that the 27-day solar rotational modulation dominated the solar variability during the solar maxima and that it tended to be much stronger during the maxima of cycles 21 and 22 than during cycle 23.

To follow the temporal variations in the intensities of the spectral components, continuous wavelet transform (CWT) are computed. The CWT is based on the Morlet wavelet [Torrence and Compo, 1998] that has the advantage of being reasonably localized in both time and frequency. Figures 17.c and 17.d show CWT time-resolved power spectral density (also called scalogram) of F205 for the 1991-94 and 2004-07 period respectively. The “cone-of-influence” is represented with the dotted lines and the 95% confidence level is denoted with solid contour lines. In agreement with the FFT results, the broad rotational component centered at 27 days always dominates the power spectral density for both periods. The solar rotational component is stronger during the first year of the 3-year periods than the second and third year, which is consistent with the descending phase of an 11-year solar cycle. Out of the two 3-year periods, the solar rotational fluctuations are the largest and well marked during the first year of the 1991-1994 period because it includes about half a year of cycle 22 maximum (see

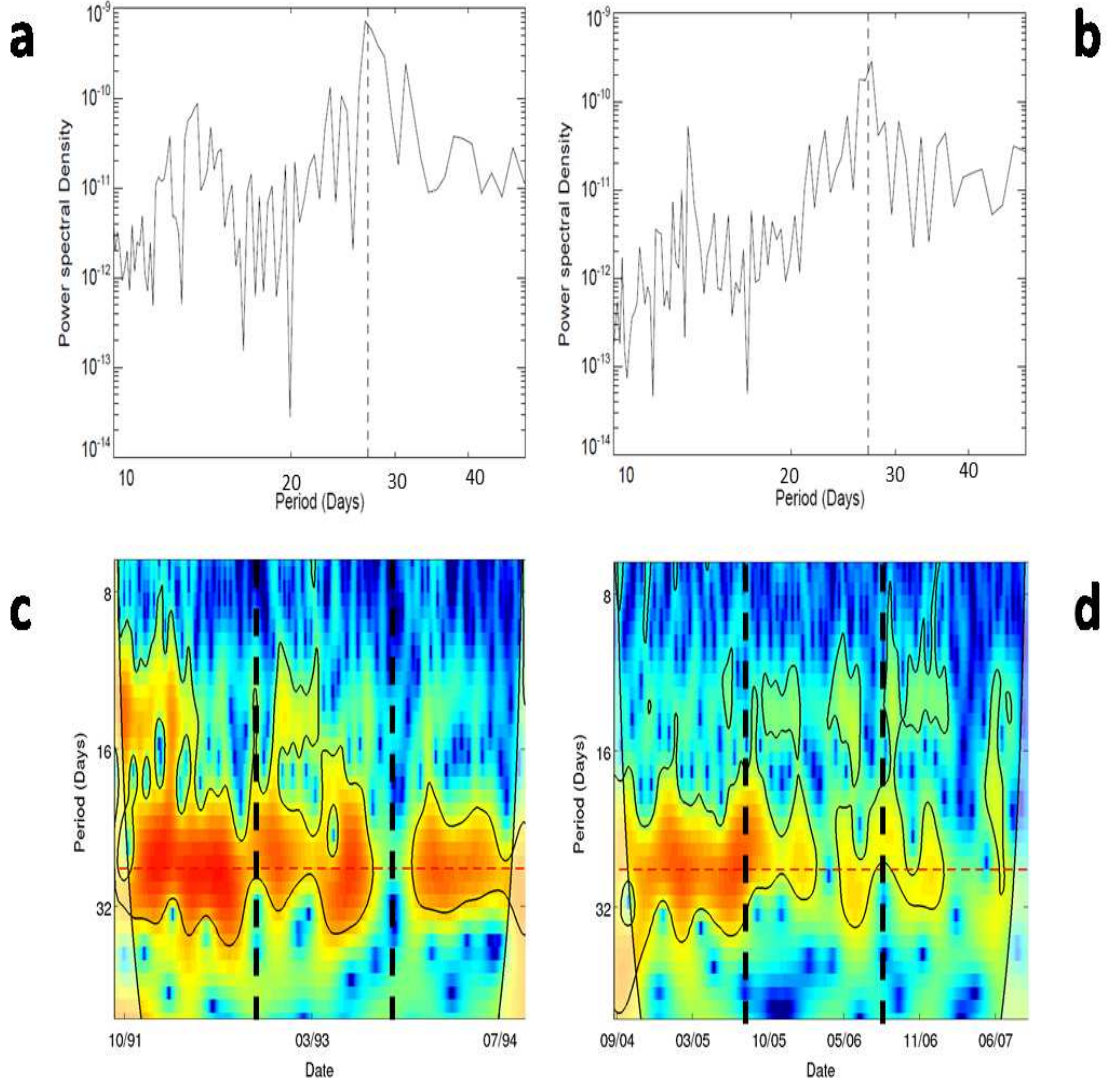


Fig. 17: (Top) 205 nm flux FFT power spectra (from NRLSSI model) for the (a) 1991-1994 period [10/1991-09/1994] and (b) 2004-2007 period [09/2004-08/2007]. (Bottom) Time-resolved power spectra densities (or scalogram) estimated from continuous wavelet transform (CWT) for (c) the 1991-1994 period and (d) 2004-2007 period. The vertical dotted line on (a) and (b) represents the 27-day period. The horizontal dotted line on (c) and (d) indicate the 27-day period; the solid contour lines represent the 95% confidence level.

Figure 16). The solar rotational signal varies quite strongly in time within the 3-year period. The solar rotational periodicities disappear for several months at the end of 1993 during cycle 22. The gaps are even more pronounced during cycle 23 with rotational periodicities disappearing completely at the beginning of 2006 and during half a year in 2007. This is expected because the existence of a clean and constant harmonic oscillation requires the presence on the Sun of long-lived and intense active regions, which was not always the case during cycle 23, especially during periods of low activity. In agreement with our FFT analysis and [Fioletov, 2009] results, there is a strong signal centered around 27 days in the F205 CWTs for both periods and again the signal is found to be stronger during the 1991-94 period than the 2004-07 period.

Let now analyze the spectral components of the ozone time series and search for the presence of a solar rotational signal. A spectral analysis is carried out on the daily stratospheric ozone data averaged over the tropical band [20°S-20°N]. However, there are gaps in the MLS/UARS data, notably towards the end of the period. As a result, a Fourier transform analysis would require prior linear temporal interpolation of the data which could be problematic when the data gaps are too large. The method of normalized Lomb-Scargle periodogram [Lomb, 1976; Scargle, 1982] is better suited to the case of unequally sampled time series with gaps and provides the same spectral information as a Fourier transform. This normalized periodogram is based on fitting the data with harmonics series using least squares method.

Figure 18 shows the Lomb-Scargle periodograms of MLS/UARS (1991-94 period) and MLS/Aura (2004-07 period) tropical ozone data at four different pressure levels (4.6 hPa, 3.2 hPa, 2.1 hPa and 1.5 hPa) in the upper stratosphere. Note that the raw ozone time series contained very few spurious values that have been filtered out by removing measurements that are outside the 2σ range of the zonal average at each pressure level. The 4 left hand-side panels corresponding to the 1991-94 period indicate a prominent peak at about 35 days that is induced by the yaw-maneuver period of the MLS/UARS instrument as described previously [Froidevaux *et al.*, 1994; Hood and Zhou, 1998]. There are small peaks in the 20-30 days range that correspond to the frequency domain of the solar rotational cycle. The solar rotational cycle is irregular; it peaks around 27 days but can cover a rather wide period range, typically between 20 and 35 days. The four right hand-side panels corresponding to the 2004-07 period also show small peaks between 20 and 35 days but they are much weaker than for the 1991-94 period. There is a broad peak centered around 41 days which is certainly not due to the solar rotation. It has to be pointed out that none of the peaks within the 20-35 days range (Figure 18) are statistically significant at the 95% confidence level. The analysis of ozone Lomb-Scargle periodograms is inadequate to retrieve significant solar rotational signatures in ozone time series. The same results (not shown) are also observed in FFT power spectra (after filling gaps using temporal interpolation) with again a broad peak around 35 days and 40 days for the 1991-94 and 2004-07 period respectively and small peaks in the 20-30 days range. The lack of significant peaks at solar rotational periodicities in the ozone power spectra indicates there are other stronger sources of high-frequency variability in

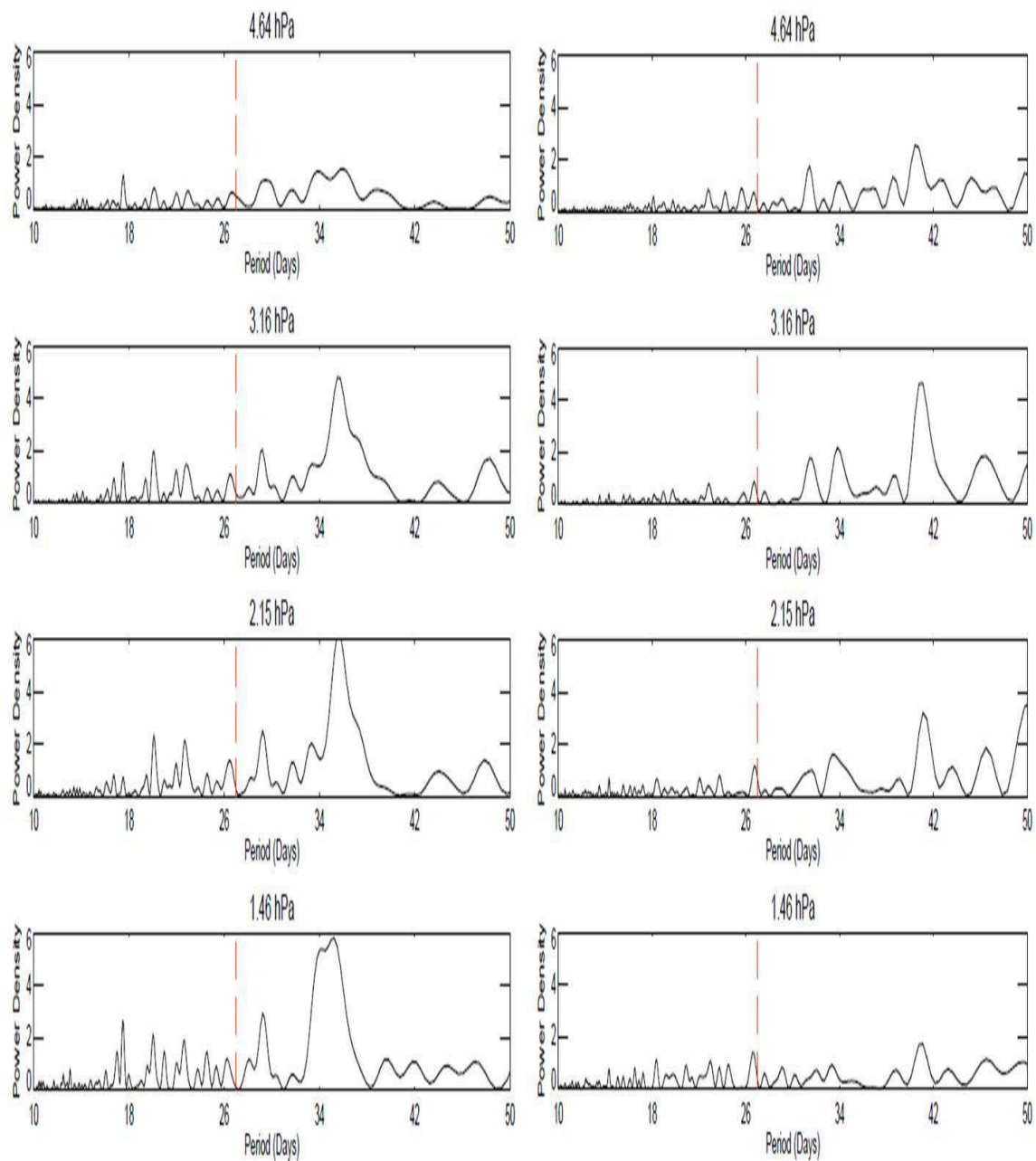


Fig. 18: Ozone Lomb-Scargle periodograms for the (left) 1991-1994 period and for the (right) 2004-2007 period at four different pressure levels in the stratosphere (top to bottom : 4.6 hPa, 3.2 hPa, 2.1 hPa and 1.5 hPa).

stratospheric ozone, possibly of dynamical origin. It is likely that there are time intervals during the 3-year periods when the solar rotational periodicities are stronger or that the other sources of variability are weaker. For this reason, it might be interesting to have a look at time-resolved power spectra.

Figure 19 presents CWTs results for MLS/UARS (left panels) and MLS/Aura (right panels) ozone time series on the same pressure levels (4.6 hPa, 3.2 hPa, 2.1 hPa and 1.5 hPa) as in Figure 18. For MLS/UARS (1991-94 period), there is no very noticeable signal apart from a patchy and broad signal covering a wide period domain, from 20 to almost 40 days, period during the second-half of 1992. In agreement with Lomb-Scargle periodograms (see Figure 18), the signal appears to peak at about 35 days and is present at all the pressure levels. For MLS/Aura (2004-07 period), there is a strong and broad signal centered around 40-45 days periods, already seen in the Lomb-Scargle periodograms, present at all pressure levels at the beginning of 2007. There is also a weaker signal at similar periodicities at the 3.2 hPa pressure level during the second half of 2005. For both ozone time series, the strongest signals are found at 3.2 hPa and 2.1 hPa. In summary, in contrast to F205, ozone CWTs, like Lomb-Scargle periodograms, do not show a prominent rotational signal in the raw ozone time series, especially during the 2004-07 period.

We then calculate the mean squared coherence between F205 irradiance (from NRL-SSI) and stratospheric ozone in order to identify the frequency domains over which solar irradiance and ozone are most correlated. Coherence represents the degree of correlation between two time series as a function of frequency or period.

Figure 20 shows the mean squared coherence between F205 and ozone from MLS/UARS (left hand-side panel) and from MLS/Aura (right-hand side panel) as a function of the period, between the 10 and 40 days, and pressure, between 46 and 0.1 hPa. Solid contour lines denote the 90% confidence level and vertical dotted lines indicate the 27-day period. For MLS/UARS (1991-94 period), the coherence is strong and significant only between the periods of 20 and 28 days and between about 10 and 1 hPa with a local maximum of about 0.7 at the 22-day period around 6 hPa. For MLS/Aura (2004-07 period), the coherence is much weaker and barely significant at the 90% confidence level. These differences between the two periods are consistent with results from *Fioletov* [2009] who found a weaker (not statistically significant) coherence, during the solar maximum of cycle 23 than during the maxima of cycles 21 and 22.

As the periodicities in F205 and ozone series strongly vary with time (see Figures 17 and 19), we use the wavelet transform coherence (WTC) to follow the temporal evolution of the coherence. WTC allows us to estimate the mean squared coherence and phase lag between the time series as a function of time and period/frequency. WTC is computed with the Matlab toolbox provided by *Grinsted et al.* [2004]. Figure 21 shows the WTCs results between the F205 and ozone on the same pressure levels as in Figures 18 and 19 for MLS/UARS ozone data (left panels) and MLS/Aura ozone data (right panels). The phase is shown as arrows with in-phase pointing right, anti-phase pointing

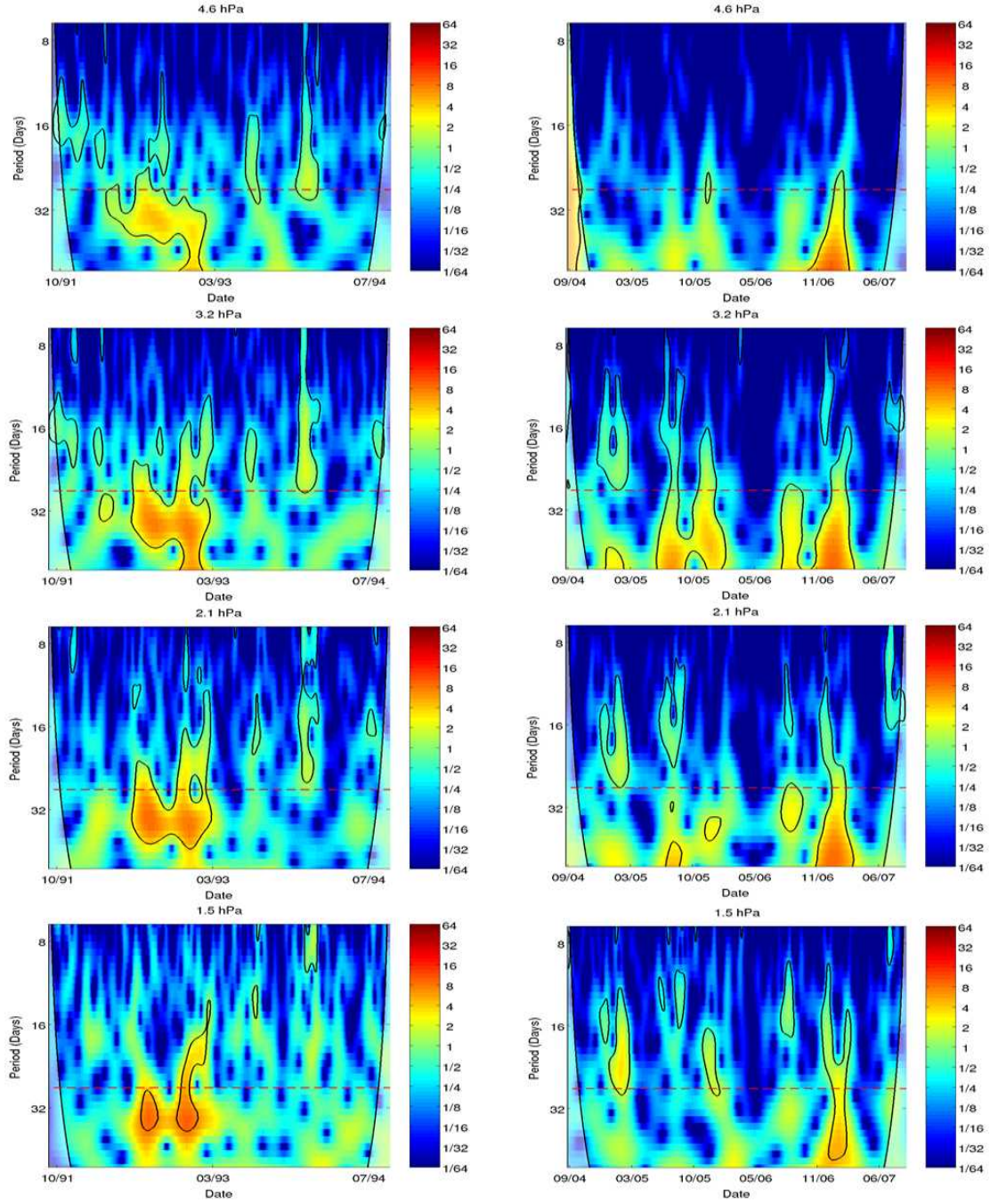


Fig. 19: Time-resolved power spectra densities (or scalogram) estimated from continuous wavelet transform (CWT) of ozone for the (left) 1991-1994 period and (right) 2004-2007 period at four different pressure levels in the stratosphere (top to bottom : 4.6 hPa, 3.2 hPa, 2.1 hPa and 1.5 hPa). The solid contour lines represent the 95% confidence level.

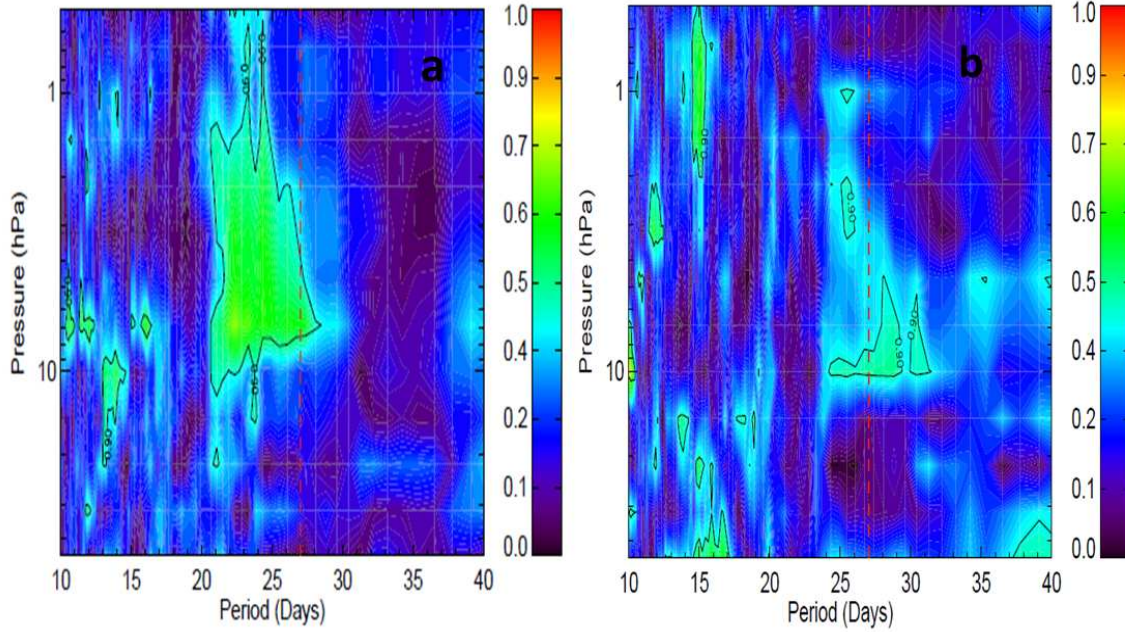


Fig. 20: Mean squared coherence between ozone and 205 nm solar flux as a function of period and pressure for the (left) 1991-1994 period and for the (right) 2004-2007 period. Contour lines represent the 90% confidence level. The red vertical dotted line indicates the 27-day period.

left, and the solar leading ozone by 90° pointing straight down. Coherence fields look very patchy. It is not entirely unexpected. A spectral analysis over very small temporal intervals (corresponding to the temporal resolution of the WTC) is subject to large uncertainties because of the very small data samples.

For MLS/UARS (1991-94 period), the most outstanding feature is an area of strong in-phase coherence, between the periods of about 16 and 35 days, lasting about 7-8 months (from the middle of 1993 to the beginning of 1994); it is present at the four pressure levels but it peaks at the 4.6 hPa level. There is a secondary coherence maximum in the middle of 1993 at similar periodicities between 3.2 and 1.5 hPa with phase arrows pointing unexpectedly straight up (*i.e.* a phase lag of about three quarter of a cycle). It is much more localized (lasting only a couple of months) and is possibly just caused by some random correlation over a couple of months. For MLS/Aura (2004-07 period), a patchy area of strong and significant in-phase coherence is found at the relevant period range (16-35 days) at the 4.6 hPa pressure level, it last about 6 months in 2005. Another small area of strong coherence is found at the beginning of 2006 but it only last a couple of months and is present at all pressure levels. On both WTC panels, small areas of strong coherence can be found outside the 16-35 days period range, especially at shorter periods. Some is certainly related to the sub-harmonic period (about 13.5 days) of the main solar rotational periodicity. However, they typically do not last more than a couple

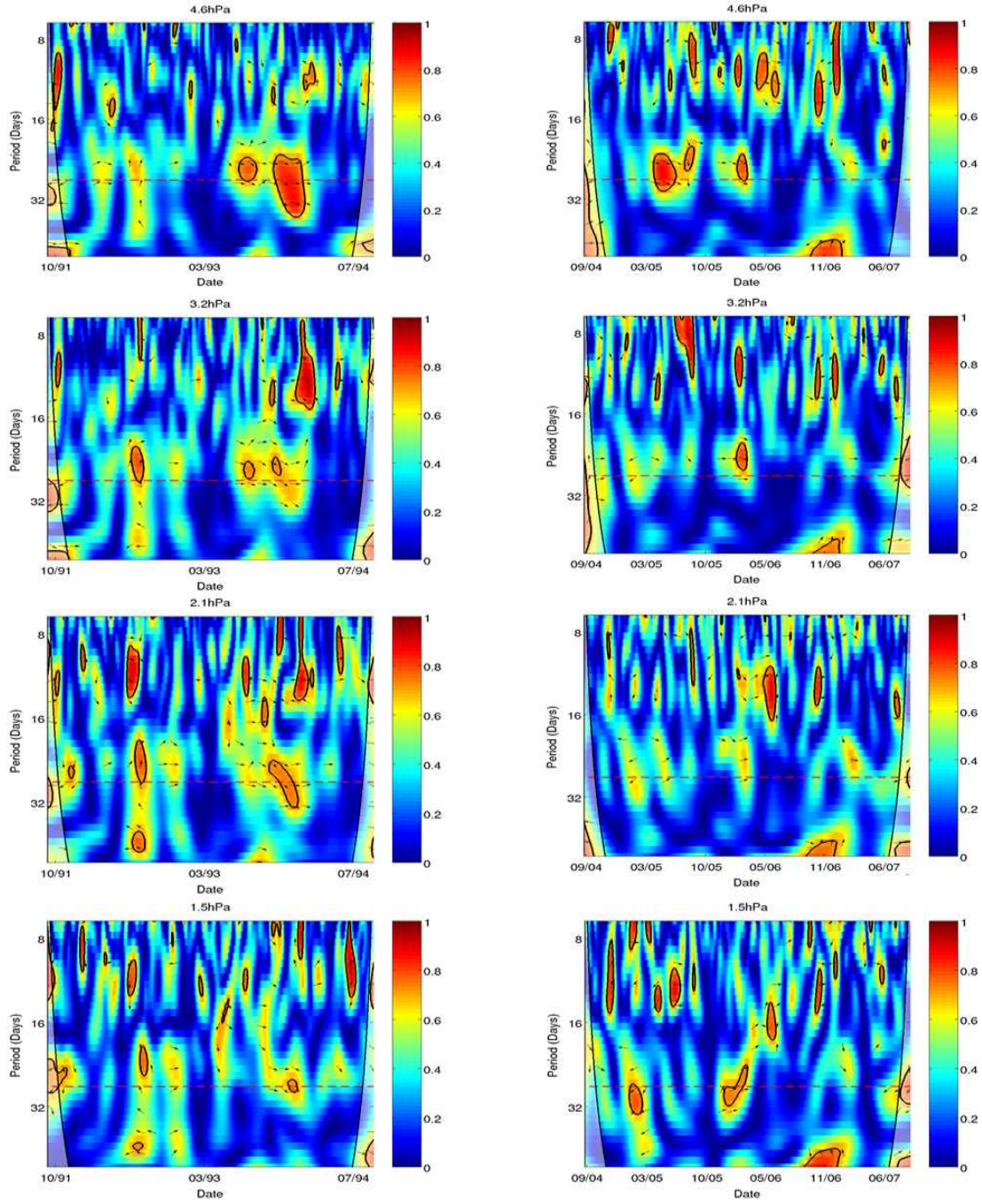


Fig. 21: Wavelet Transform Coherence (WTC) between ozone and 205 nm flux for the (left) 1991-1994 period and for (right) 2004-2007 period at four different pressure levels in the stratosphere (4.6 hPa, 3.2 hPa, 2.1 hPa and 1.5 hPa). The horizontal dotted line indicates the 27-day period. Solid contour lines represent the 95% confidence level. Arrows represent the relative phase between solar and ozone time series (right arrow : in-phase, left arrow : out-of-phase, down arrow : solar leading ozone).

of months and hence could partly originate from random fluctuations. Coherence appears to be much weaker during the 2004-07 period. The most surprising is that the coherence waxes and wanes, without coinciding with time intervals during which the solar rotational forcing itself is strong. For instance, the F205 rotational periodicities are the most intense during 1992 (see Figure 17.c) whereas the coherence appears to peak around these periodicities but at the end of 1993.

4.3.2 Analysis of filtered data

In order to focus on the spectral domain where the correlation between solar activity and ozone (centered around 27 days) is the highest, most previous studies considered data filtered in the frequency domain. Therefore, we apply a digital filter previously used [Hood, 1986; Chandra, 1986; Keating *et al.*, 1987; Hood and Zhou, 1998; Zhou *et al.*, 2000]. The filtering procedure consists of smoothing data with a 7-day running mean which removes short-term fluctuations. Linear trend and mean value are also removed from these smoothed time series. Finally, a 35-day running mean is subtracted from the data, removing long-term fluctuations (*e.g.* seasonal, semi-annual, annual and QBO variations). The overall procedure is equivalent to a band-pass filter in the frequency domain. Others band-pass filters (Butterworth or Bessel) could have been used but, in order to make our results as comparable as possible, we use the same digital filter as in previous studies. Tables 2 and 3 show the linear (Pearson) correlation coefficient between filtered solar and ozone time series for the two periods at 7 pressure levels, from 10 to 1.5 hPa. Standard errors, provided in the Tables, average about 0.1.

Pressure levels (hPa)	10/1991 - 09/1994	10/1991 - 09/1992	10/1992 - 09/1993	10/1993 - 09/1994
10	0.104 ± 0.060	0.197 ± 0.103	0.058 ± 0.105	-0.240 ± 0.102
6.8	0.279 ± 0.058	0.296 ± 0.100	0.280 ± 0.100	0.163 ± 0.103
4.6	0.287 ± 0.058	0.213 ± 0.102	0.312 ± 0.100	0.420 ± 0.095
3.2	0.226 ± 0.059	0.099 ± 0.104	0.320 ± 0.100	0.252 ± 0.101
2.1	0.186 ± 0.059	-0.055 ± 0.105	0.312 ± 0.100	0.287 ± 0.100
1.5	0.120 ± 0.060	-0.109 ± 0.104	0.265 ± 0.101	0.050 ± 0.105

Tab. 2: Correlation coefficients and associated $2\text{-}\sigma$ errors between ozone (at six different pressure levels) and 205 nm flux for the cycle 22 period. The second column refers to the whole 3-year period, the third column to the first year of the period, the fourth to the second year and the fifth to the third year. The ozone and 205 nm flux time series had been digitally filtered (see section 3).

As the previous results on raw data highlighted the large temporal variations in the periodicities of the time series and the almost intermittent nature of the coherence between F205 and ozone, correlation coefficients are also calculated for individual years to investigate inter-annual variability. The second column of the tables corresponds to the 3-year intervals whereas the third, fourth and fifth columns correspond to individual years. $2\text{-}\sigma$ errors on correlation coefficients are of the order of 0.1. Correlation coefficients calculated over 3 years are positive at all the levels for the 1991-94 period (Table 2) with a maximum of 0.29 at 4.6 hPa whereas they are about two times smaller for 2004-07

Pressure levels (hPa)	09/2004 - 08/2007	09/2004 - 08/2005	09/2005 - 08/2006	09/2006 - 08/2007
10	0.109 ± 0.060	0.129 ± 0.104	0.003 ± 0.105	0.187 ± 0.103
6.8	0.162 ± 0.060	0.239 ± 0.102	0.238 ± 0.102	0.217 ± 0.102
4.6	0.130 ± 0.060	0.147 ± 0.104	0.234 ± 0.102	0.142 ± 0.104
3.2	0.059 ± 0.060	0.080 ± 0.105	0.219 ± 0.102	-0.090 ± 0.105
2.1	0.027 ± 0.060	0.111 ± 0.104	0.064 ± 0.105	-0.157 ± 0.104
1.5	-0.014 ± 0.060	-0.030 ± 0.105	0.068 ± 0.105	-0.178 ± 0.103

Tab. 3: Same as Table 2 but for the cycle 23 period.

period and even negative at 1.5 hPa. The correlation varies strongly, not only with altitude, but also from one year to another. When calculated over 1-year intervals, it is positive during the 3 years at only 2 pressure levels (6.8 and 4.6 hPa) for both periods and, even on these levels, inter-annual variations are quite substantial. For example, for the 1991-94 period, it varies from 0.3 (first year) to 0.16 (third year) at 6.8 hPa and it varies from 0.21 (first year) to 0.42 (third year) at 4.6 hPa. On the other pressure levels (outside the 6.8-4.6 hPa range), there is at least a year out of three when the correlation is not statistically significant or even negative.

Additional tests are carried out in order to better estimate the errors in the correlation calculations and the possible effect of random fluctuations and the time interval on correlation results. We create two random synthetic time series with the same length and resolution (daily) as the solar and ozone time series. These random time series are filtered exactly in the same way (digital filter) as the real time series. Then, correlation coefficients between these two random time series are computed for different window sizes (*i.e.* time intervals) according to the following procedure. The total length of the time series is 1095 days (3 years); correlation coefficients are calculated over small windows covering the length of the time series. Successive windows overlap because each window is shifted by half of the window size. For instance, the first window size considered here (10 days) gives about 219 windows and the last considered window size (600 days) gives 2 windows. For a given window size, correlation coefficients are calculated over all the windows and then mean and quantiles are calculated from all the correlation coefficients. This procedure of correlation calculations is applied to the random and real time series and results are compared in order to test if the correlation between solar and ozone is statistically significant whatever the window size. Figure 22.a shows the mean linear correlation coefficient (solid line) between the two random time series as well as the 0.75 (in blue) and 0.25 (in red) quantiles as a function of the window size (in days). Figures 22.b and 22.c present results for the solar and ozone time series for both periods at the pressure level of 4.6 hPa. The absolute value of the mean correlation stays below 0.1 for the random time series whatever the window size (see Figure 22.a).

As expected, the dispersion, represented by the 0.25 and 0.75 quantiles, decreases with increasing window size for random and real time series. In the case of the largest window size (600 days, hence

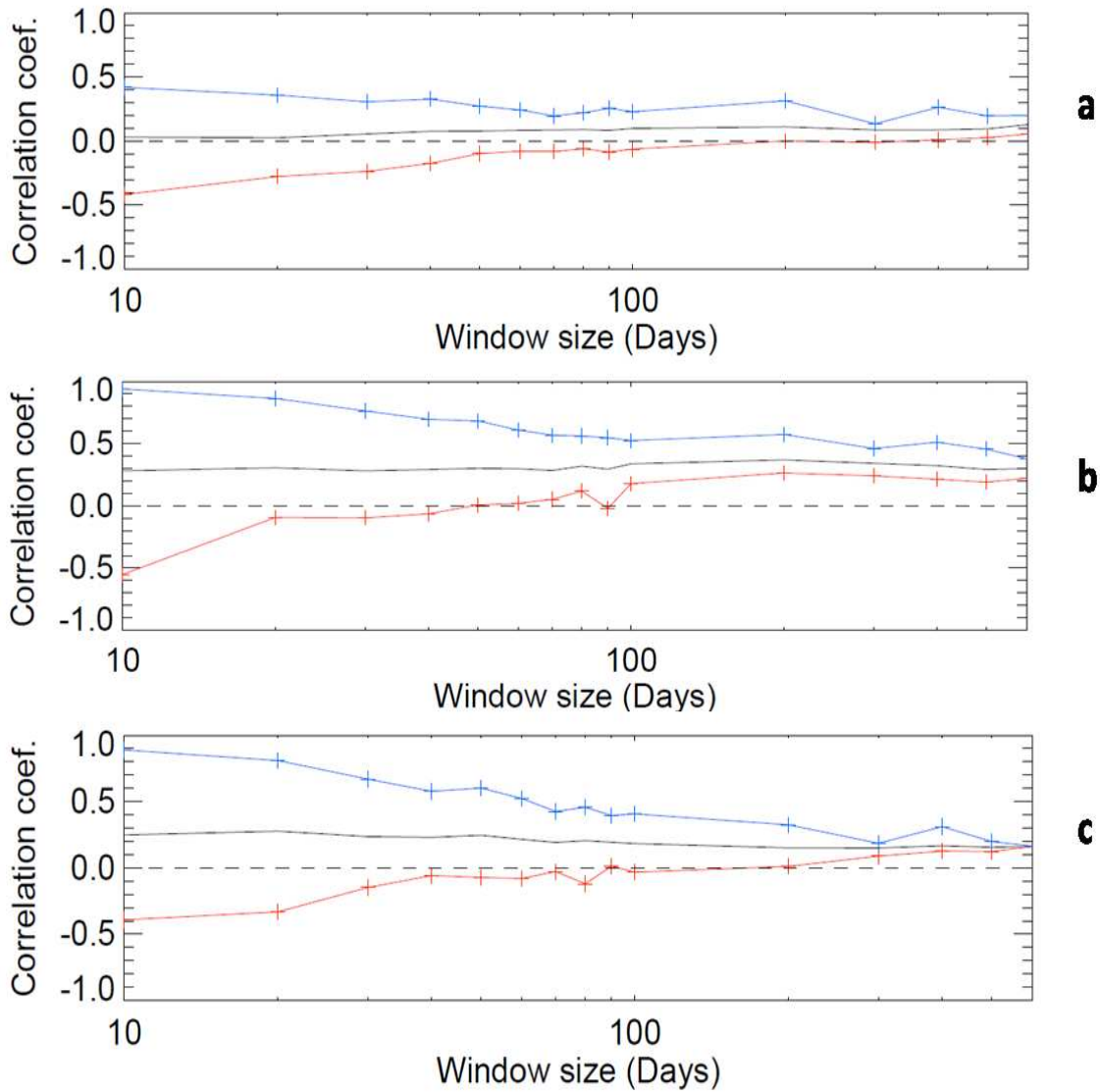


Fig. 22: Mean linear correlation coefficient (a) between two random time series, and between the 205 nm flux and ozone (at 4.6 hPa) for the (b) 1991-1994 period and for the (c) 2004-2007 period as a function of the window size. The black solid lines represent the mean correlation, the colored solid lines represent the 0.75 (blue) and 0.25 (red) quantiles and the dashed line represents the zero correlation. The total sample size is 1095 days and each window is shifted by half of the window size. Therefore the first window size value on the abscissa (i.e. 10 days) correspond to about 219 windows and the last window size value (600 days) on the abscissa corresponds to 2 windows. For a given window size, correlations are calculated over all the windows and then mean and quantiles are calculated from the correlation distribution. The ozone and 205 nm flux timeseries had been digitally filtered (see section 3).

2 windows), differences between the mean and quantiles do not exceed 0.1. This is of the order of the mean $2\text{-}\sigma$ error calculated previously from the entire time series (*i.e.* equivalent to 1 window, see Tables 1 and 2). In contrast to the dispersion, the mean value of the correlation coefficient varies little with the window size for random and real time series. This suggests that, whatever the window size (time interval) chosen to analyze the 3-year time series, the mean value of the correlation coefficient is robust. For the 1991-94 period (see Figure 22.b), the correlation coefficient remains close to +0.3 over the range of window size values (10 to 600 days). For the 2004-07 period (see Figure 22.c), it is about +0.2, slightly decreasing from +0.25 to +0.17 with increasing window size. The mean correlation coefficient for the 2004-07 period is smaller than for the 1991-94 period but is still distinctively greater than 0.1, the uncertainty estimated from the random time series.

As time lags in the ozone response to solar UV variability are not accounted for in the previous correlations calculations, we repeat them with varying time lags. The results are called cross-correlations to differentiate them from the previous ones. Naturally, for a null time lag, the results are identical. Results are plotted in Figures 23.a and 23.b as a function of pressure and time lag for the 1991-94 and 2004-07 period respectively. The shaded areas indicate results statistically significant at confidence level greater than 95%. As expected, the maximum cross-correlation for the 1991-94 period is found on the 4.6 hPa level with no significant time lag (see also Table 1); this maximum of 0.29 is close to the maximum of 0.35 found by *Hood and Zhou* [1998] on the same pressure level. The overall variation of the time lag with altitude shown in Figure 23.a is similar to that found in previous studies [*Hood*, 1986; *Brasseur et al.*, 1987; *Brasseur*, 1993; *Hood and Zhou*, 1998] with a negative lag above 3-4 hPa (ozone leading the solar flux) and a positive lag below (ozone lagging the solar flux). Above 1.5 hPa (upper stratosphere-lower mesosphere), the cross-correlation does not exceed 0.1 and is not statistically significant; this result is consistent with *Hood and Zhou* [1998] results also obtained with MLS ozone data. However, using SBUV ozone data, *Hood* [1986] found correlation coefficients exceeding 0.5 above 1.5 hPa. *Hood and Zhou* [1998] attributed these cross-correlations differences in the upper stratosphere-lower mesosphere to the strong diurnal cycle of ozone there (*Parrish et al.*, 2014). Indeed, regression results from ozone measurements at fixed or very slowly varying local times (*e.g.* SBUV data used by *Hood* [1986]) are not expected to be affected by diurnal variations. However, in the case of measurements taken over a wide range of local times that vary from one day to another (*e.g.* MLS nighttime and daytime measurements), the diurnal cycle introduce spurious fluctuations in daily zonal mean calculations, increasing the “noise” (non-solar variability) and thus making more difficult the estimation of a robust solar signal. It is therefore likely that MLS based analyses tend to underestimate the correlation between ozone and UV flux in the upper stratosphere and mesosphere. Ideally, only ozone measurements at the same local time should be considered in order to remove the diurnal variability in the time series. The cross-correlation pattern for the 2004-07 period (Figure 23.b) is more distorted and noisy than for the 1991-94 period (Figure 23.a). The maximum cross-correlation (0.2) is smaller and is found at 10 hPa with a time lag of +5 days (ozone lagging solar flux) instead of 6.8 hPa for the correlation without time lag (Table 2) and instead of 4.6 hPa for the 1991-94 period. *Dikty*

et al. [2010] analyzed the correlation between SCIAMACHY (SCanning Imaging Absorption spectro-Meter for Atmospheric CHartographY) ozone data and Mg II index during cycle 23 and found large variations in cross-correlation results depending on the considered phase; correlations were smaller during solar minimum conditions (2006-2007) than during solar maximum conditions (2003-2004). As expected, our cross-correlation results for the 2004-07 period are closer to *Dikty et al.* [2010] results for solar minimum conditions than maximum conditions.

Ozone response to solar irradiance changes has also been characterized in the literature in terms of sensitivity, which is defined as the percentage change in ozone for one percent change in solar UV. We derive the ozone sensitivity by linear regression of the filtered ozone time series on different pressure levels using only one independent variable (F205). Figures 23.c and 23.d show the sensitivity as a function of altitude for the 1991-94 period (MLS/UARS) and 2004-07 period (MLS/Aura), respectively. The dashed lines denote the $2\text{-}\sigma$ error. For the 1991-94 period, the sensitivity peaks at 0.4 (*i.e.* 0.4 percent change in ozone for one percent change in F205) around 4-5 hPa (35 km), in good agreement with *Hood and Zhou* [1998] results. For the 2004-07 period, the sensitivity profile is somewhat irregular and the sensitivity peaks at only 0.2 around 35 km; it is consistent with a peak value of 0.15 found on the same level by *Dikty et al.* [2010] for the 2006-2007 period (that best overlaps the 3-year period considered here).

4.3.3 Analysis of interannual variations

Time-resolved power spectra (see Figure 21) and correlations coefficients calculated over 1-year intervals (Tables 2 and 3) indicate that the link between solar UV irradiance and ozone appears to be very intermittent. To investigate further the inter-annual variations, we repeat the cross-correlation and sensitivity analyses on 1-year intervals after having divided each period into three 1-year intervals, as done in Tables 2 and 3. In principle, a 1-year interval should correspond to an average of about a dozen solar rotational cycles. Though one has to keep in mind the non-solar ozone variability, one year of data may appear to be sufficiently long for the extraction of a robust solar rotational signal in ozone time series. For comparison, estimations of the 11-year solar cycle signal have been carried out with ozone time series covering at best 3 solar cycles. Figures 24 and 25 show the cross-correlation between filtered solar flux and tropical stratospheric ozone and ozone sensitivity for the three 1-year intervals of the 1991-94 and 2004-07 period. The results for the whole periods (3-year intervals) are shown in Figure 23. For both periods, cross-correlation and sensitivity results vary substantially from one year to another.

For the 1991-94 period, the correlation (at null time lags) and ozone sensitivity remains positive during the 3 years between only about 8 and 2 hPa. Above and below this altitude range, cross-correlation results for the three 1-year intervals are very different with no clear pattern emerging. The correlation is stronger during the third year (from 10/1993 to 09/1994) than during the first and

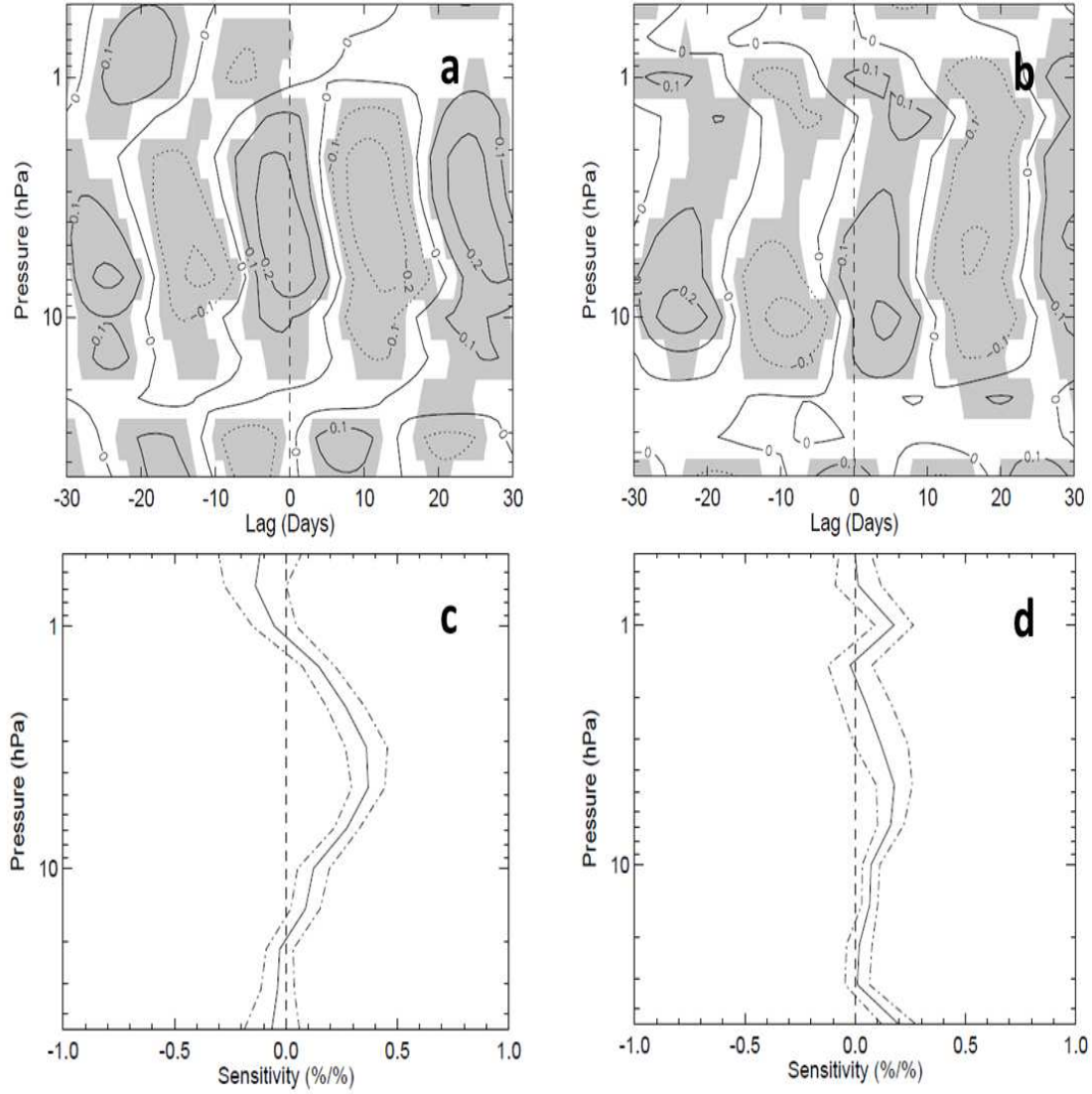


Fig. 23: (Top) Cross-correlation between ozone and 205 nm solar flux as a function of time lag (days) and pressure (hPa) for the (a) 1991-1994 period and for (b) 2004-2007 period. (Bottom) Ozone sensitivity to 205 nm flux (% change in ozone for 1% change in 205 nm flux) as a function of pressure for (c) 1991-1994 period and for (d) 2004-2007 period. The shaded areas in (a) and (b) represent areas with a 95% confidence level. The dash-dotted lines in (c) and (d) represent the 2- σ error. The ozone and 205 nm flux time series had been digitally filtered (see section 3).

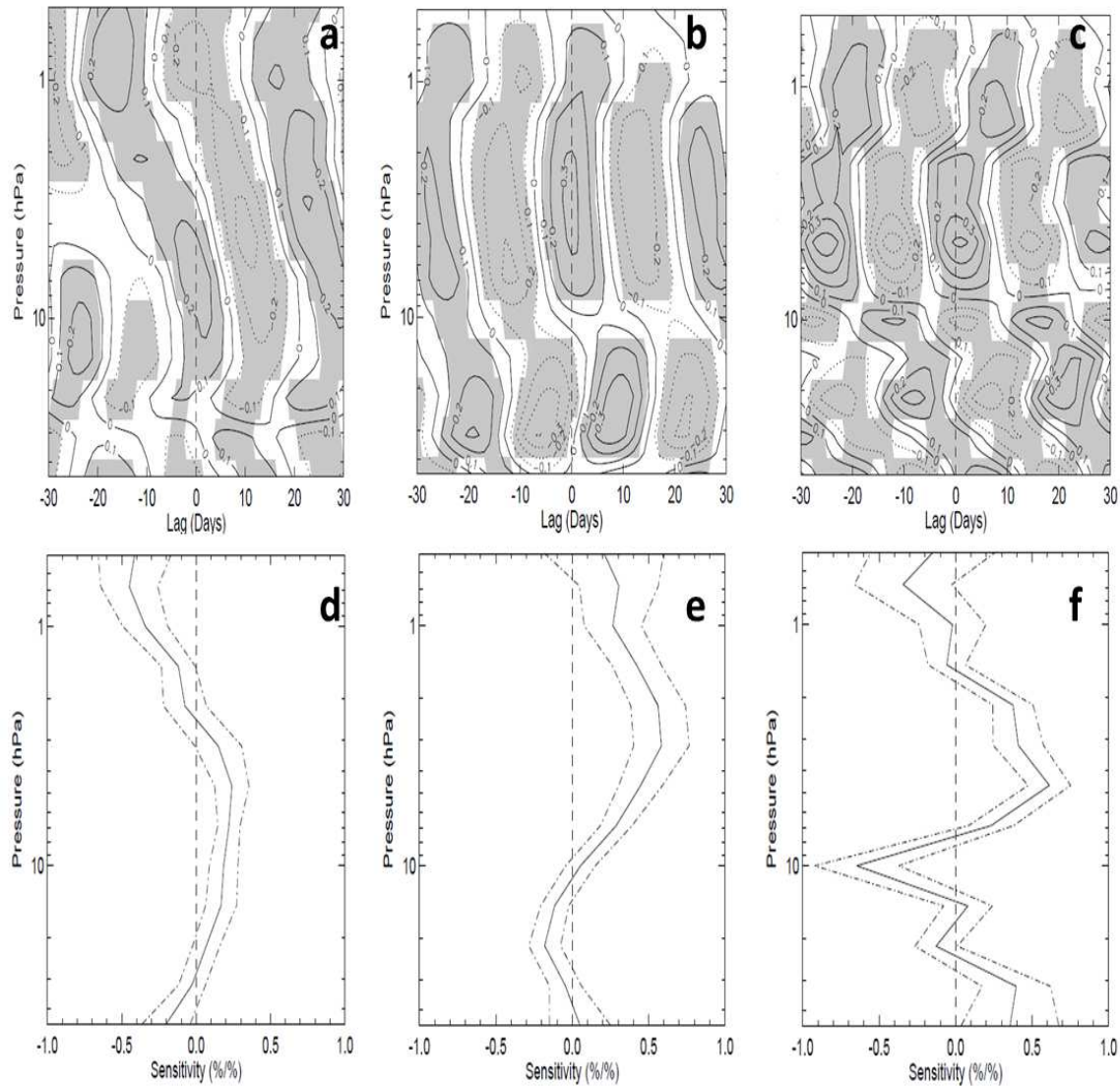


Fig. 24: Same as Figure 23 but for (left) the first year (10/1991-09/1992) , (middle) second year (10/1992-09/1993), and (right) third year (10/1993-09/1994) of the 1991-1994 period. The shaded areas in (a), (b) and (c) represent areas with a 95% confidence level. The dash-dotted lines in (d), (e) and (f) represent the $2\text{-}\sigma$ error. The ozone and 205 nm flux time series had been digitally filtered.

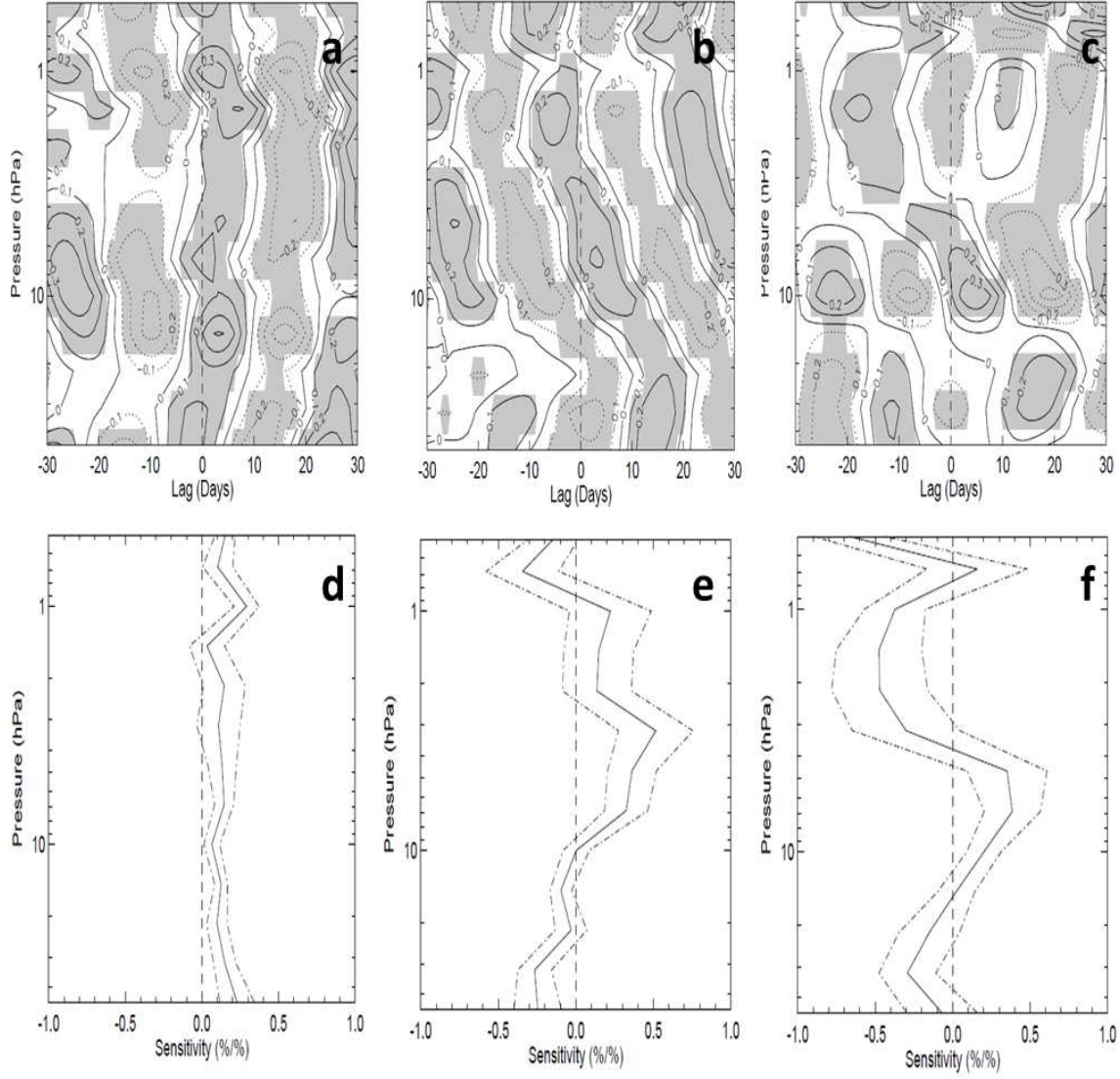


Fig. 25: Same as Figure 24 but for (left) the first year (09/2004-08/2005), (middle) second year (09/2005-08/2006), and (right) third year (09/2006-08/2007) of the 2004-2007 period. The shaded areas in (a), (b) and (c) represent areas with a 95% confidence level. The dash-dotted lines in (d), (e) and (f) represent the 2σ error. The ozone and 205 nm flux time series had been digitally filtered.

second 1-year interval. The cross-correlation peaks at 0.42 at 4.6 hPa for the third year whereas it peaks 0.22 and 0.32 for the first and second year, respectively. In the same way, the sensitivity peaks at only 0.2 during the first year whereas it reaches about 0.5-0.6 (% change in ozone for 1% change in solar UV) at around 3-4 hPa during the second and third year. It is in contrast with F205 rotational periodicities being much more intense during the first year than during the second and third year (see Figure 17).

This finding is rather surprising because F205 rotational fluctuations and hence ozone forcing are by far the strongest during the first year (see Figure 17), being the closest to the maximum of cycle 22. As a result, correlation and ozone responses are expected to be the largest during the first year. This tendency has been confirmed by several observational studies. For example, *Hood* [1986] analyzed almost 2 years (November 78 to mi-October 80) of SBUV tropical ozone data during cycle 21 and found that correlation with solar UV variations tended to be larger during time periods of relatively strong 27-day solar UV modulations. In the same way, *Zhou et al.* [2000] examined four different of about 3 years corresponding to solar maximum and declining phases in solar cycles 21 and 22 and found the largest rotational solar signal in SBUV ozone time series during solar maximum periods. The solar signal was difficult to detect in the declining phases. *Fioletov* [2009] considered of two and half 11-year solar cycles (cycles 21 and 22, first half of cycle 23) and showed that a large fraction of the ozone variance could be attributed to solar rotational fluctuations during the periods of high solar activity whereas the solar rotational signal was barely significant during the periods of low solar activity.

On the other hand, our results are consistent with *Hood and Zhou* [1998] who analyzed MLS/UARS ozone data for the 1991-1994 period and found a correlation two times stronger during the last half of the period than during the first half. *Hood and Zhou* [1998] speculated that it was the result of an artifact of either instrumental or geometric (local time coverage) problems that may have affected the earliest part of the MLS/UARS ozone record more than the later part. However, there is no evidence for it in the dataset or, to our best knowledge, no such problems have been reported for MLS data in the literature. Therefore, it is more likely to reflect real ozone variability. The extraction of the solar signal in the ozone time series does not depend only on the intensity of the solar rotational forcing but also on non-solar, presumably dynamical, sources of ozone variance (operating on solar rotational periodicities) that can be viewed as noise in the solar signal estimation process. It is possible that non-solar fluctuations may have been much larger the first year than the second and third year of the 1991-94 period and would have degrading the signal-to-noise ratio, making the signal extraction more difficult, even if this solar rotational signal must have been greater the first year.

For the 2004-07 period, there are very large inter-annual variations in cross-correlation and sensitivity, notably in terms of amplitude, altitude of maximum and, more generally, overall shape, from one year to another (see Figure 25) throughout the stratosphere. It is not possible to highlight any

common patterns among the different years. The results also differ strongly from the 1991-94 results, except for the sensitivity profile of the second year that somewhat resembles to the profiles for the second and third year of the 1991-94 period between about 3 and 8 hPa. Although the rotational solar forcing is the strongest during the first year of the 2004-07 period (see Figure 17.d), the sensitivity is the weakest throughout the vertical profile during that year. As for the 1991-94 period, the most likely explanation is that non-solar ozone fluctuations were much larger during the first year than the second and third year of the 2004-07 period, “masking” the solar rotational signal.

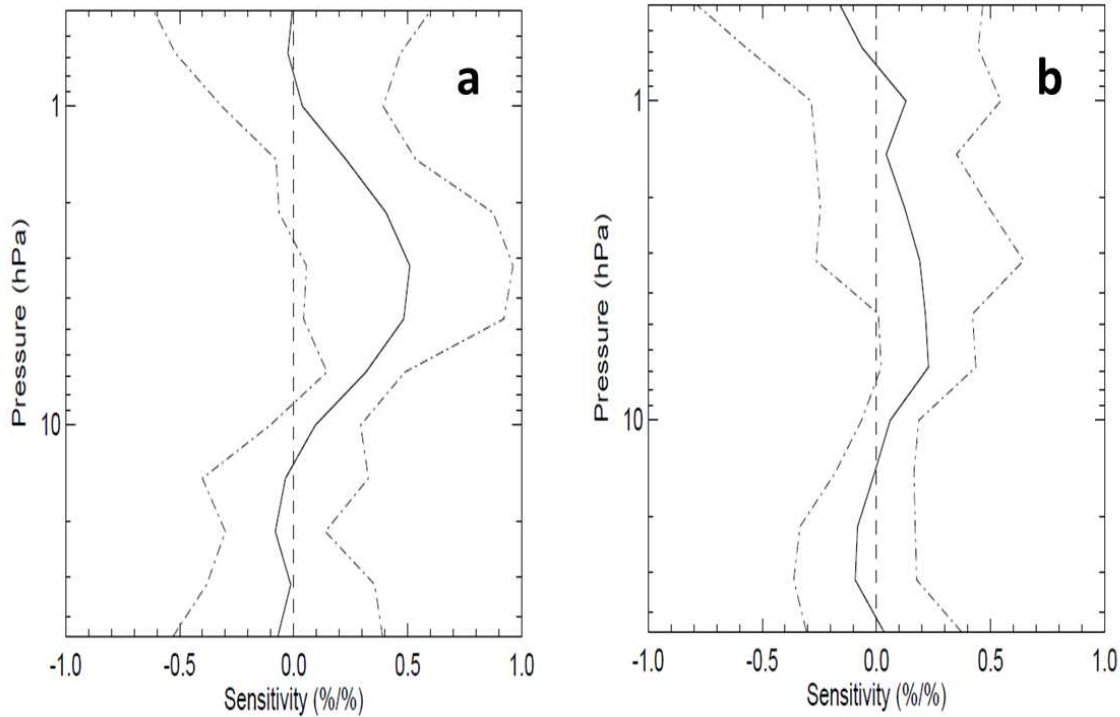


Fig. 26: Mean ozone sensitivity to 205 nm flux (% change in ozone for 1% change in 205 nm flux) as a function of pressure for (a) 1991-1994 period and for (b) 2004-2007 period. The mean sensitivity profile is calculated by averaging 24 sensitivity profiles (calculated over 24 1-year intervals obtained by shifting a 1-year sliding window by a month over the 3-year periods). The dash-dotted lines indicate the 2- σ deviations.

To explore further the interannual variability in ozone sensitivity, sensitivity profiles are calculated over 24 1-year intervals (per 3-year period) obtained by shifting a 1-year sliding window by a month. Figure 26 shows the mean of the 24 sensitivity profiles and 2- σ deviations for the two 3-year periods. Though sensitivity values are slightly weaker, the profiles of mean sensitivity are reasonably similar to the profiles calculated over the 3-year periods (see Figure 23). As in Figure 23, the mean sensitivity peaks between about 1 and 10 mb typically and are much smaller for the 2004-07 period than for 1991-94 period. The amplitude of the 2-sigma deviations shows that ozone sensitivities calculated over

1-year intervals can vary widely with very small sensitivities for some 1-year intervals and sensitivities even approaching 1 (between about 2 and 5 hPa) for other intervals.

4.4 Summary and concluding remarks

The purpose of the present observational study is to estimate the solar rotational signal in tropical stratospheric ozone and its inter-annual variability. Based on the availability of MLS stratospheric ozone data on-board the UARS satellite and Aura satellite, we consider two 3-year periods falling within the descending phases of two successive 11-year solar cycles, from 10/1991 to 09/1994 for cycle 22 and from 09/2004 to 08/2007 for the rather exceptional cycle 23. We follow how the stratospheric ozone response to rotational UV variations changes during the descending phases of the 11-year cycles and from one cycle to the other. We choose the solar irradiance at 205 nm (F205), a key quantity in ozone photochemistry, and the daily F205 time series is generated from a well-established and widely used solar reconstruction model [Lean *et al.*, 2005]. We have also tested other UV proxies, notably from satellite observations (UARS/SOLSTICE for cycle 22 and SORCE/SOLSTICE (SORCE/Solar Stellar Irradiance Comparison Experiment [Snow *et al.*, 2005] during cycle 23). Results obtained with these observational UV time series are not presented here because they are very close to those obtained with the NRL-SSI F205 time series.

First, the raw solar F205 and ozone time series are analyzed independently to identify their characteristic frequency components. Power spectra indicate a broad peak centered around 27 days, which is stronger for 1991-94 period than 2004-07 period. Time-resolved spectral analyses show that rotational periodicities are highly variable in the 205-nm flux time series; they even disappear for half a year during the 2004-07 period. In contrast to the 205 nm flux, no prominent solar rotational signature is found in the raw stratospheric ozone time series for both periods.

We then estimate the level of correlation between stratospheric ozone and F205 variations. The coherence for the 1991-94 period is found to be strong and significant (at the 90% confidence level) over periods ranging from 20 to 28 days and between about 10 and 1 hPa with a maximum coherence of 0.7 at the 22-day period around 6-7 hPa. The coherence is weaker for the 2004-07 period. This is consistent with results from *Fioletov* [2009] who found a weaker (not statistically significant) coherence during the solar maximum of cycle 23 than during the maxima of cycles 21 and 22. Time-resolved spectra (wavelet transform coherence, WTC) reveal that the coherence appears to be almost intermittent with very patchy WTC fields. The most significant feature is a strong coherence within the solar rotational periodicities lasting 7-8 months, from the middle of 1993 to the beginning of 1994. Small areas of strong coherence can also be found outside the rotational periodicities; they typically do not last more than a couple of months and hence could easily be generated by random fluctuations in the time series. Coherence, time-integrated (Figure 20) and time-resolved (Figure 21), is much weaker during the 2004-07 period. The most unexpected feature is that the coherence waxes and wanes, without

coinciding with time intervals during which the solar rotational forcing itself is strong. For instance, the solar 205 nm rotational periodicities are the most intense during 1992 (see Figure 17.c) whereas the coherence appears to peak within these periodicities but at the end of 1993.

In order to focus on the solar rotational spectral domain and to make our results as comparable as possible to previous studies, we carry on the analysis with times series filtered in the frequency domain. Correlation coefficients calculated over the 3 years of filtered data are found to be positive over the 10 to 1.5 hPa pressure range for the 1991-94 period with a maximum of 0.29 at 4.6 hPa whereas they are about two times smaller for the 2004-07 period and even negative at 1.5 hPa. Time lag tends to be negative above 3-4 hPa and positive below. This overall pattern is similar to that found in previous studies [Hood, 1986; Brasseur *et al.*, 1987; Brasseur, 1993; Hood and Zhou, 1998]. The cross-correlation pattern for the 2004-07 period is much more distorted and noisy than for the 1991-94 period. The maximum cross-correlation (0.2) is found at a time lag of 5 days on the 10 hPa level instead of 6.8 hPa for the correlation without time lag and 4.6 hPa for the 1991-94 period. Above 1.5 hPa (in the lower mesosphere), the cross-correlation is not significant. At those altitudes, the strong diurnal ozone variability, present in the MLS/UARS data, tends to obscure the correlation between ozone and UV flux [Hood and Zhou, 1998]. Correlation has also been quantified in terms of ozone sensitivity (i.e. ozone percentage change per 1% change in the solar index, here 205 nm irradiance). For the 1991-94 period, the sensitivity peaks at 0.4 (i.e. 0.4 percent change in ozone for 1 percent change in 205 nm irradiance) around 4-5 hPa (35 km), in good agreement with Hood and Zhou [1998] results. For the 2004-07 period, the sensitivity profile is somewhat irregular and sensitivity peaks at only 0.2, which is in agreement with Dikty *et al.* [2010] results.

In order to explore to what extent correlation and sensitivity vary, not only with altitude, but also from one year to another, we calculate the correlation coefficients over 1-year intervals. A 1-year interval should correspond to an average of about a dozen solar rotational cycles. For both periods, cross-correlation and sensitivity results vary substantially from one year to another. For the 1991-94 period, correlation and ozone sensitivity remain positive during the 3 years between only about 8 and 2 hPa. Above and below this altitude range, cross-correlation results for the three 1-year intervals are very different with no clear pattern emerging. The correlation is stronger during the third year (from 10/1993 to 09/1994) than during the first and second 1-year interval. The cross-correlation peaks at 0.42 at 4.6 hPa for the third year whereas it peaks 0.22 and 0.32 for the first and second year, respectively. In the same way, the sensitivity peaks at only 0.2 during the first year whereas it reaches about 0.5-0.6 (% change in ozone for 1% change in solar UV) at around 3-4 hPa during the second and third year. It is in contrast with the fact that F205 rotational periodicities are much more pronounced during the first year than during the second and third year. For the 2004-07 period, the interannual variations in cross-correlation and sensitivity are much larger, notably in terms of amplitude, altitude of maximum and, more generally, overall shape of the profiles. It is difficult to highlight any common features. An interesting similarity with the 1991-1994 period is that, although the rotational solar

forcing is the strongest during the first year of the 2004-07 period, the ozone sensitivity is the weakest throughout the pressure range of interest (from about 10 to 1 mb). This finding, common to both periods, is rather unexpected. When the solar rotational fluctuations are well marked with large amplitudes, notably around the maxima of 11-year cycles, ozone response and correlation are expected to be the largest. A part from a study by *Hood and Zhou* [1998] who analyzed MLS/UARS ozone data for the 1991-94 period, this tendency has been confirmed by several observational studies [*Hood*, 1986; *Zhou et al.*, 2000; *Fioletov*, 2009]. The same analysis was repeated for 24 1-year intervals (per 3-year period) obtained by shifting a 1-year sliding window by a month. Ozone sensitivity is found to be almost negligible for some 1-year intervals whereas it can even approach 1 between about 2 and 5 hPa for other intervals. Obviously, the lack of correlation during some intervals should not be interpreted as an absence of influence of UV changes on ozone; it is more indicative of the presence of other sources of ozone variability that make the correlation between ozone and solar UV radiation look somewhat intermittent. Ozone variance, presumably of dynamical origin, in the rotational spectral range may have been greater during the first year than the second and third year for both periods (1991-1994, 2004-2007), degrading the signal-to-noise ratio and hence the estimation of the solar rotational signal and, as shown here, not only during periods when the solar rotational forcing is weak. Our results suggest that one year of ozone data (covering on average 12 solar rotational cycles) is insufficient to extract a robust solar rotational signal because of other sources of ozone variability, even during periods of strong solar rotational activity (like during the 1991). Even considering 3 years of observations (corresponding to about 40 solar cycles), we find the estimation of the rotational solar signal is not reliable during the declining phase of 11-year solar cycle. It is worth pointing out that observational studies estimating the 11-year solar cycle signal in stratospheric ozone time series have covered at best three 11-year solar cycles [*Fioletov*, 2009]. As stratospheric ozone is also influenced by decadal climate variability [*Toumi et al.*, 2001], it is not clear to what extent the estimation of the 11-year solar cycle signal is robust.

The relationship between ozone and the 27-day solar variability has also been studied with Chemistry Chemical Models (CCMs) (*e.g.* *Rozanov et al.* [2006] ; *Austin et al.* [2007] ; *Gruzdev et al.* [2009]). We now examine the consistency of our observational results with these model results. Even though all atmospheric processes and their couplings are not perfectly represented in models, CCMs can allow us to evaluate the expected ozone sensitivity to solar forcing and, thus, improve our comprehension of the processes linking stratospheric ozone and solar UV irradiance. As for observational results, model results can vary from one CCM study to another. *Austin et al.* [2007] calculated a peak tropical ozone sensitivity of 0.4 % per 1% change in 205 nm solar flux which is in good agreement with our peak value for the 3 years of cycle 22 but not with cycle 23 results. In addition, their peak is located at about 2 hPa instead of 4.6 hPa. *Gruzdev et al.* [2009] calculated the same maximum sensitivity of 0.4 but at 40 km. *Rozanov et al.* [2006] found a similar result with sensitivity values scattered between 0.2 and 0.8 in the stratosphere. In all these model studies, there seems to be a strong inter-annual variability in the ozone sensitivity, though not fully quantified. The inter-annual variability in the sensitivity was

attributed to nonlinearities in the chemistry [Austin *et al.*, 2007] or to the dynamical state of the background atmosphere [Gruzdev *et al.*, 2009]. It is important to point out that the quantitative agreement between our study and some model results on the value of the peak ozone sensitivity might also be fortuitous. It only holds for cycle 22 and, even during this cycle, our observation-derived sensitivity varies widely from one year to another.

Finally, the differences between results from cycle 22 and cycle 23 could also be attributed to the fact that they do not cover exactly the same part of the descending phase of 11-year solar cycles (see Figure 16). The 3 years of cycle 22 considered here are closer to the 11-year solar maximum (including even about 6 months of cycle 22 solar maximum), than the 3 years of cycle 23. As studies with CCMs are not constrained by the availability of ozone observations, several 11-year cycles could be considered in order to investigate how the solar-ozone relationship on rotational timescales varies over and within several entire 11-year cycle (ascending phase, maximum and minimum phases). The current 11-year cycle (cycle 24) is intriguing. The amplitude of this cycle is even smaller than the previous three cycles, even cycle 23, suggesting that it might even be more atypical than cycle 23. It would be interesting to study it and investigate whether the ozone response to solar rotational variability is also different.

Chapitre 5

Sensitivity of tropical stratospheric ozone to rotational UV variations at different time scales : observations vs model

Sommaire

5.1	Introduction	86
5.2	Data and Model description	87
5.2.1	The 205 nm solar flux (or F205)	87
5.2.2	Tropical stratospheric ozone satellite observations	88
5.2.3	LMDz-Reprobus	89
5.3	Ozone response to the 27-day solar cycle over a 3-year time scale	90
5.4	Temporal variability of the ozone response	100
5.5	Summary and concluding remarks	106

Résumé

Ce chapitre est l’objet d’un article qui sera prochainement soumis dans *Journal of Geophysical Research*, dont le résumé est ci-dessous.

Après avoir estimé la réponse de l’ozone stratosphérique au cycle solaire rotationnel aux tropiques à l’aide des observations satellitaires, un autre objectif affiché de cette thèse est d’évaluer la capacité d’un modèle de chimie-climat (LMDz-Reprobus) à reproduire la réponse tirée des observations. Pour cela, une simulation du modèle dans sa configuration guidée est effectuée couvrant les deux fenêtres d’observations de l’instrument MLS (1991-1994 et 2004-2007). La configuration guidée correspond à une version chimie-transport du modèle (CTM) dans laquelle les champs de vents et de température sont relaxés vers les analyses météorologiques ERA-Interim. En outre, cinq simulations d’ensemble de 1991 à 2007 avec le modèle dans sa configuration chimie-climat (CCM) sont réalisées afin d’accroître la statistique d’analyse et voir dans quelle mesure la dynamique influence l’estimation du signal solaire. L’analyse des diverses simulations est réalisée à partir de la même méthodologie que celle développée pour les observations (chapitre 4) afin de faciliter les comparaisons. En accord avec les observations (cf chapitre 4), la périodicité rotationnelle à 27 jours n’est pas clairement identifiable dans les périodogrammes des séries temporelles d’ozone issues du modèle en configuration guidée pour les 2 périodes de trois ans considérées. En revanche, la moyenne des 5 périodogrammes correspondants aux 5 simulations CCM présente un pic à 27 jours, néanmoins accompagné d’une large dispersion. Cela confirme que le signal rotationnel contenu dans les séries d’ozone de trois ans peut être masqué par d’autres sources de variabilité (probablement d’origine dynamique) certaines années. L’analyse de la cohérence entre les données brutes d’ozone et F205 sur les deux périodes de trois ans montre que le modèle guidé est capable de reproduire l’amplitude et l’extension verticale du signal rotationnel tirées des données MLS ainsi que les grandes différences observées entre les deux périodes de 3 ans. En revanche, la moyenne des cinq profils de sensibilité des simulations d’ensemble (CCM) ne montre pas de différence significative d’une période à l’autre et se caractérise par un maximum de 0.4-0.5 vers 3 hPa. Néanmoins, la dispersion autour de cette moyenne (*i.e.* les différences entre les simulations) est très large, notamment aux altitudes du maximum de sensibilité, ce qui traduit la présence d’autres sources de variabilité. Afin d’explorer l’origine de cette dispersion, la réponse de l’ozone aux variations de F205 est étudiée à l’échelle de l’année lors des deux périodes à partir des simulations du modèle guidé. Pour cela, les deux intervalles de trois ans sont divisés en trois intervalles d’un an. En accord avec les observations, l’amplitude et la structure verticale du profil de sensibilité issu de la simulation CTM varient considérablement d’une année à l’autre sans relation cohérente avec l’intensité du forçage solaire (exprimé comme une variance des fluctuations rotationnelles de F205). L’origine de la variabilité interannuelle peut ainsi être majoritairement attribuée à la variabilité dynamique contenue dans les données de température et de vents d’ERA-Interim utilisées pour forcer le modèle LMDz-Reprobus dans sa configuration guidée.

Un des autres objectifs de cette thèse est d’explorer la dépendance de la réponse de l’ozone aux variations solaires rotationnelles suivant les différentes phases du cycle solaire à 11 ans. En effet, la variance de F205 est beaucoup plus élevée pendant les maxima de cycle solaire à 11 ans que les minima et donc on peut s’attendre à ce que la réponse de l’ozone soit aussi plus forte. L’analyse est réalisée sur cinq intervalles de trois ans décrivant les phases montantes, descendantes et extrema d’un cycle solaire à 11 ans. Le profil moyen de sensibilité calculé à partir des simulations d’ensemble (CCM) varie assez peu suivant la phase du cycle solaire considérée. Cependant, la dispersion autour de la réponse moyenne de l’ozone présente une forte dépendance à la phase du cycle solaire. Une approche basée sur l’utilisation d’une fenêtre glissante (avec un pas de 1 mois) de taille variable (1 an et 3 ans) permet d’accéder à l’évolution temporelle de la sensibilité moyenne et de sa dispersion. Cette analyse montre que la dispersion est anti-corrélée à la variance de F205 qui elle-même dépend de la phase du cycle solaire à 11 ans. Enfin, les profils moyens de sensibilité sont calculés à partir d’une fenêtre glissante de taille variable (1 an, 3 ans, 7 ans et 15 ans) sur toute la période 1991–2007. Les profils moyens de sensibilités présentent les mêmes caractéristiques (forme, amplitude) quelle que soit la taille de la fenêtre avec un maximum de 0.4 localisé vers 3 hPa. En revanche, la dispersion diminue lorsque la taille de la fenêtre d’analyse augmente. Ainsi, l’extraction du signal solaire rotationnel dans les séries d’ozone est beaucoup plus fiable avec une fenêtre d’analyse de 15 ans. L’estimation peut être considérée robuste pour une fenêtre de taille inférieure, au minimum 3 ans, si l’analyse est effectuée lors de la période de maxima du cycle à 11 ans.

Dans ce chapitre, nous étudions à nouveau la relation entre les variations du flux solaire et l'ozone stratosphérique tropical. Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons les outils utilisés (données d'observations et modèle) pour cette analyse. Dans un second temps, nous reprenons l'analyse réalisée au chapitre précédent à partir des données d'observations d'ozone dans le but de comparer ces résultats aux sorties du modèle LMDz-Reprobus. Nous étudions dans cette partie la variabilité interannuelle de la réponse d'ozone sur les deux périodes de trois ans. Dans un troisième temps, nous analysons la réponse de l'ozone aux variations solaires au cours des différentes phases d'un cycle solaire de 11 ans. Nous étudions également cette réponse sur des échelles de temps différentes. Enfin dans une dernière partie, nous présentons les principales conclusions de cette étude.

5.1 Introduction

The longitudinal inhomogeneous distribution of magnetic field structures on the surface of the rotating Sun causes temporal variations of the solar radiation reaching the Earth atmosphere with a main period of approximately 27 days. The variations are not uniform spectrally, their relative amplitudes tend to increase sharply with decreasing wavelengths. The variations can occasionally be of the order of the amplitude of the 11-year solar cycle, notably during periods of high solar activity [Rottman *et al.*, 2004]. But they are small for periods of minimum solar activity. A large number of observational studies have been carried out to determine the effects of the 27-day rotational solar cycle on stratospheric ozone, generally at low latitudes based on the analysis of satellite observations (*e.g.* Hood and Zhou [1998] ; Fioletov [2009] ; Dikty *et al.* [2010]). These studies show that the maximum sensitivity of tropical ozone to the solar rotational cycle occurs at about 40 km and varies from 0.2 to 0.6% for a 1% change in solar UV radiation indicator, typically the irradiance at the 205 nm wavelength. Results from modelling studies have shown a reasonably good agreement with the rather large range of ozone sensitivities derived from observations (*e.g.* Rozanov *et al.* [2006] ; Austin *et al.* [2007] ; Gruzdev *et al.* [2009]). Recently, Bossay *et al.* [2015] considered two periods of 3 years during the descending phases of cycles 22 and 23 and found that the solar rotational signal in stratospheric ozone time series varies strongly from one year to another. They also found that the ozone sensitivity did not correlate with the intensity of the solar rotational forcing. For instance, the amplitude of solar rotational fluctuations of the 205 nm flux were by far the largest the first year of each 3-year period but the ozone sensitivity was maximum the following years. It is rather surprising and in contradiction with previous studies. Indeed, a stronger solar forcing is expected to result in a larger ozone response which should be easier to detect. The lack of correlation during specific period should not be interpreted as an absence of influence of UV variations on stratospheric ozone. Having considered only 2 periods of three years, it is not possible to conclude to a systematic effect. These results indicate that other sources of variability, presumably dynamical, affect ozone on rotational time scales and can "hide" the solar signal, at least during an interval of one year, even during periods of high solar activity. These large inter-annual variations in the estimated ozone sensitivity make the correlation between ozone and solar UV looks intermittent. In some studies, the solar rotational signal in ozone time series was only clearly detected

and quantified during period of high solar activity (*e.g.* maximum phase of a 11-year solar cycle). It remains unclear to what extent the solar rotational signal can be estimated during periods of low solar activity and which time interval is required for an accurate estimation.

In the present study, we address these questions using a chemistry-climate model (CCM) because ensemble simulations provide enough statistics for meaningful results, especially compared with observational records. The ozone response to the 27-day solar cycle is investigated over a range of time scales (from a year to more than an entire 11-year solar cycle). We first analyze the two periods of 3 years considered in *Bossay et al.* [2015] during the declining phases of two different 11-year solar cycles : solar cycle 22 (10/1991-09/1994) and solar cycle 23 (09/2004-08/2007). As done in *Bossay et al.* [2015], solar rotational signals in MLS tropical ozone observations (onboard UARS for cycle 22 and Aura for cycle 23) are retrieved from regression against the 205 nm solar irradiance (reconstructed by the NRL-SSI model). Numerical simulations during these two observational windows are performed using the LMDz-Reprobus CCM forced by the time series of the daily NRL solar spectral irradiance. In order to evaluate the model-calculated ozone response to the 27-day solar cycle during the two observational periods, we first use the nudged version of LMDz-Reprobus in which the temperature and wind fields are relaxed towards meteorological analysis. In this configuration, the dynamics is expected to be rather close to the actual reality is well suited to comparisons to observational time series. 15-year ensemble simulations with the CCM (free-running configuration) are used to explore the interannual variability in the solar rotational signal and identify the conditions for extracting a significant signal.

The observational datasets and model configurations and simulations are described in detail in the first section. Using the same statistical tools and procedure, the observation-derived and model-calculated ozone responses are analyzed and compared in section 2. The temporal variability of the solar rotational signal in the observations and the model is investigated in section 3. The respective influences of the phase of the 11-year solar cycle and of the length of the considered time interval on the quality of solar signal estimation are also examined in this section. Conclusions can be found in section 5. For the sake of simplicity, the first period (10/1991-09/1994) during cycle 22 will be referred thereafter as 1991-94 period and the second period (09/2004-08/2007) during cycle 23 will be referred 2004-07 period.

5.2 Data and Model description

5.2.1 The 205 nm solar flux (or F205)

The solar forcing used in this study is the spectral solar irradiance at 205 nm (called thereafter F205). This wavelength is considered as a good proxy for characterizing the solar variability in the UV domain but also as an indicator of tropical stratospheric ozone production. Indeed, this wavelength

corresponds to a so-called window region that is positioned between two strong absorption bands of molecular oxygen and ozone [Brasseur and Solomon, 2005]. The atmospheric absorption in this region is low, allowing to this solar UV radiation to penetrate deeply in the atmosphere (20 km). The spectral solar irradiance is measured by satellite since 1978 but it is also reconstructed from model which used as inputs various solar proxies. One of the well-established and widely used solar reconstruction models is the Naval Research Laboratory Solar Spectral Irradiance (NRL-SSI) model [Lean, 1997, 2000]. Above 400 nm, this model uses both darkness component from photospheric sunspot number index and a brightening component derived from faculae proxies (Ca II, Mg II and F10.7 cm indexes). Below 400 nm, spectral irradiance is derived from a multiple linear regression analysis of UARS/SOLSTICE observations.

5.2.2 Tropical stratospheric ozone satellite observations

In this study, we use ozone measurements from the Microwave Limb Sounder (MLS) instrument that offer the opportunity, with very similar instruments, to analyze two observational windows of 3 years during the declining phases of two 11-year solar cycles. During the first period, the instrument was onboard UARS satellite which was launched on 12 September 1991, into a 57° inclination and a 585 km altitude orbit and was operational until 1994. Waters [1989, 1993] describe in detail the microwave limb-sounding technique. The ozone retrieval is based on 205 GHz radiances. The typical 1- σ precision for ozone mixing ratio measurements is 0.5 ppmv at 0.46 hPa, 0.3 ppmv at 1-4.6 hPa and 0.2 ppmv at 10-46 hPa. As shown in Hood and Zhou [1998], an artificial 36-day periodicity, caused by the UARS yaw maneuver cycle [Froidevaux et al., 1994], is present in zonally averaged MLS data. This periodicity is present at all latitudes and increases with increasing altitude. A solution was proposed by Hood and Zhou [1998] to remove this artificial periodicity. They suggest replacing both nighttime and daytime measurements used for zonal average ozone profiles by only daytime measurement near a local time. However, the fraction of daytime measurements in daily measurements is too low (around 30%) resulting in much larger sampling errors and time gaps in the zonal averages.

During the second period, MLS was onboard the satellite Aura which was launched on 15 July 2004 into a sun-synchronous near-polar orbit around 705 km in order to observe atmospheric chemical composition and dynamics. Aura MLS is an advanced successor to the MLS on UARS. Detailed information on the Microwave technique in general and the Aura MLS instrument in particular is given in Waters et al. [2006]. MLS observes a large suite of atmospheric parameters by measuring millimeter- and submillimeter-wavelength thermal emission from Earth's limb with seven radiometers covering five broad spectral regions (118, 190, 240, 640 GHz and 2.5 THz). The "standard product" of ozone is retrieved from radiance measurement near the 240 GHz. The version 2.2 of the MLS ozone product is used in this study. The Aura MLS fields of view point forward in the direction of orbital motion and vertically scan the limb in the orbit plane, giving a data coverage from 82°N to 82°S latitude on every orbit. Thus Aura MLS provides continuous daily sampling of both polar regions, with none

of the temporal gaps from yaw maneuvers that occurred with UARS MLS. The MLS limb scans are synchronized to the Aura orbit, with 240 scans per orbit at essentially fixed latitudes. This results in about 3500 scans per day, with an along-track separation between adjacent retrieved profiles of 1.5° great circle angle. The longitudinal separation of MLS measurements set by Aura orbit, $10\text{--}20^\circ$ over low and middle latitudes, with much finer sampling in the polar regions. The vertical resolution is about 3 km in upper troposphere and stratosphere and about 4-6 km in mesosphere. The $1\text{-}\sigma$ precision for ozone mixing ratio measurements is about 0.1 to 0.3 from 46 hPa to 0.5 hPa. Daily stratospheric ozone profiles are averaged over the tropical band $[20^\circ\text{S}\text{--}20^\circ\text{N}]$.

5.2.3 LMDz-Reprobus

The LMDz-Reprobus model is a Chemistry-Climate Model based on the coupling between the extended version of the General Circulation Model LMDZ5 [Sadourny and Laval, 1984; Le Treut *et al.*, 1994, 1998; Lott *et al.*, 2005; Hourdin *et al.*, 2006, 2013] and the stratospheric chemistry model which is the chemistry module of the Reprobus chemistry-transport model [Lefevre *et al.*, 1994; Lefèvre *et al.*, 1998]. LMDZ is an atmospheric general circulation model developed at the Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD). The dynamical part of the code is based on a finite-difference formulation of the primitive equations of meteorology [Sadourny and Laval, 1984]. The model uses a classical so-called hybrid σ -P coordinate in the vertical. The maximum altitude for the L39 discretization is about the same altitude of 70 km as for the stratospheric version used in [Lott *et al.*, 2005]. The model is integrated with a horizontal resolution of 3.75° in longitude and 1.9° in latitude. The equations are discretized on a staggered and stretched latitude-longitude Arakawa-C grid. The Reprobus chemistry model [Jourdain *et al.*, 2008; Marchand *et al.*, 2012] calculates the chemical evolution of 55 atmospheric species and includes a comprehensive description of the stratospheric chemistry (Ox, NOx, HOx, ClOx, BrOx and CHOx). It uses 160 gas-phase reactions and 6 heterogeneous reactions on sulfuric acid aerosols and PSCs. Absorption cross-sections and kinetics data are based on the latest JPL recommendation from [Sander *et al.*, 2011]. In the troposphere, where the chemistry is not explicitly treated by Reprobus, the model is relaxed towards a monthly varying climatology of O₃, CO and NOx computed by the TOMCAT chemical-transport model [Law *et al.*, 1998; Savage *et al.*, 2004].

The solar part of the radiative scheme of LMDZ5 is based on an improved version of the two bands scheme developed by Fouquart and Bonnel [1980] and the thermal infrared part of the radiative code is taken from Morcrette *et al.* [1986]. While this scheme is crude, note that the thermal component of the solar forcing (e.g. changes in net heating from solar changes only, keeping chemical composition unchanged) does not exhibit a dependency on wavelength as strong as photolysis component of the solar forcing. Nonetheless, the use of a simple two bands radiation code tends to underestimate the temperature response when compare to other radiations models with the same solar irradiance fluctuations [CCMVal, 2010; Forster *et al.*, 2011]. The radiative scheme takes into account the radiative active species H₂O, CO₂, O₃, N₂O, CH₄, CFC-11 and CFC-12. The photolysis rates used

in Reprobis are pre-calculated off-line with the Tropospheric and Ultraviolet Visible (TUV) model [Madronich and Flocke, 1999] and then tabulated in a look-up table for 101 altitudes, 7 total ozone columns and 27 solar zenith angles. TUV calculates in spherical geometry the actinic flux, scattering and absorption through the atmosphere by the multi-stream discrete ordinate method of [Stamnes *et al.*, 1988]. The spectral domain extends from 116 to 850 nm. Calculations of photolysis rate are performed on a 1 nm wavelength grid, except in the regions relevant for solar cycles (27-day and 11-year solar cycles). In these regions, the resolution is largely increased to accurately describe the spectral features in the solar flux or in the absorption cross-sections : the wavelength resolution reaches 0.01 nm in the Schumann-Runge bands of O₂. At this resolution, the absorption by O₂ can be considered to be treated line-by-line. Moreover, the temperature dependent polynomial coefficient determined by [Minschwaner *et al.*, 1992] is used. The temperature dependence of absorption cross-sections is taken into account using climatological temperature profiles. The albedo considered for the computation of photolysis rates is set to a globally average value of 0.3 with solar zenith angle varying from 0 to 95°. For each sunlit grid point, the actual photolysis rates used by LMDz-Reprobus are then interpolated in the table according to those parameters (solar zenith angle, ozone column, altitude). Thus, the 27-day solar cycle forcing is taken into account by using daily photolysis rates calculated by TUV in the photochemistry module of LMDz-Reprobus. We do not take into account the direct effect on heating rates generated by UV variations because previous modeling studies have already shown that the stratospheric ozone response to solar variations is mostly driven by the effects of UV changes on the photolysis rates, in particular the photolysis of molecular oxygen.

LMDz-Reprobus can be used in two configurations. The first one is the free-running model configuration (*i.e.* Chemistry-Climate Model) that accounts for all the interactions between chemistry, dynamics and radiation. It can also be used in its nudged version where transport and dynamics are forced using temperatures and winds from the ECMWF model outputs (ERA-interim). The nudged configuration allows us to focus the evaluation on the photochemistry of the model as the dynamics is expected to be close to the observations ; it is the most appropriate configuration for comparisons to specific observational time series. The nudged configuration is used over the two 3-year periods of MLS ozone measurements, as analyzed in *Bossay et al.* [2015]. In the CCM configuration, we perform an ensemble of 5 simulations of 17 years (from 1991 to 2007).

5.3 Ozone response to the 27-day solar cycle over a 3-year time scale

The two periods of MLS ozone measurements considered in this study (10/1991-09/1994 and 09/2004-08/2007) are highlighted in red on the temporal evolution of the daily F205 from NRL-SSI model [Lean *et al.*, 2005] shown in Figure 27. They fall within the declining phases of two different 11-year solar cycles : cycle 22 and cycle 23. These two periods were analyzed in details in *Bossay et al.*

[2015].

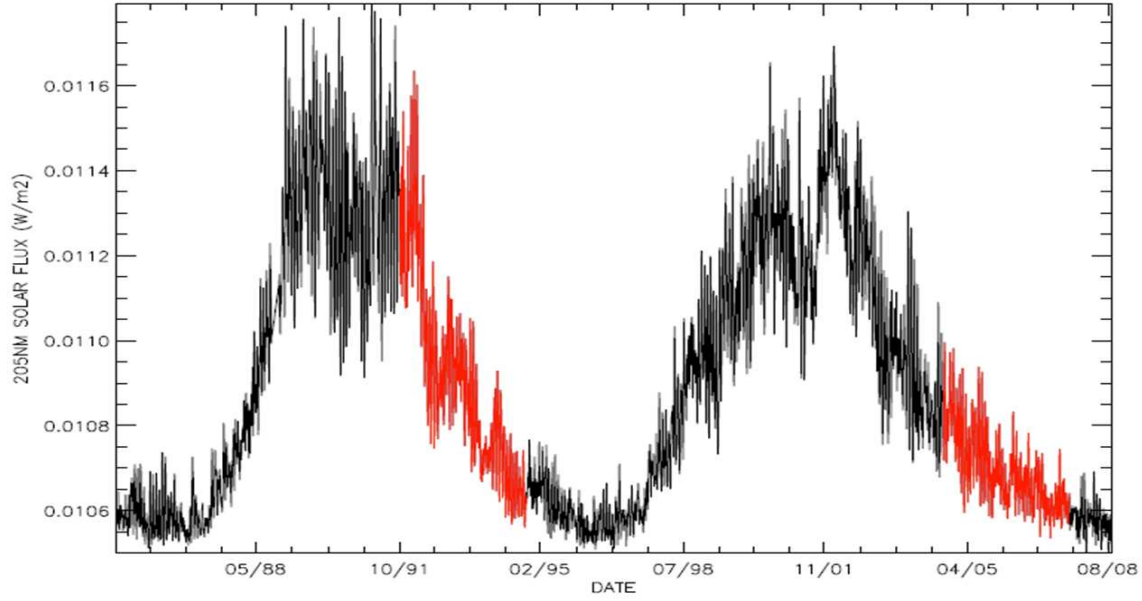


Fig. 27: Temporal evolution of daily F205 from NRL-SSI model over solar cycles 22 (1985-1996) and 23 (1996-2008). The two 3-year periods considered here (10/1991-09/1994 and 09/2004-08/2007) are highlighted in red.

The Fast Fourier Transform (FFT) power spectra of these two F205 time series (Figure 28, the top 2 panels) confirm that the high-frequency variability in the 205 nm flux time series largely originates from the solar rotational cycle. In both plots, there is a broad and strong peak between 20 and 35 days, centered around 27 days. Both peaks are broad because the solar rotational periodicities cover a rather large frequency domain. There is also a small secondary peak at about 13.5 days. It corresponds to the first harmonic of the 27-day cycle and to the presence on the Sun surface of two sunspots which rotate with the same period but are separated by about 180° in longitude (*e.g.* Bai [2003] ; Zhang *et al.* [2007]). The time-resolved power spectral density derived from the continuous wavelet transforms (CWT) of the two F205 time series are presented in Figure 28, bottom panels. The "cone-of-influence" is represented in these figures with the dotted lines and the 95% confidence level is denoted with solid contour lines and the black vertical dotted lines represent one-year intervals within the 3-year periods. The time-resolved power spectra (CWT) indicate that the rotational solar component varies strongly in time for both 1991-94 and 2004-07 to the point that the rotational periodicities can disappear for several months.

A spectral analysis is also carried out on daily stratospheric ozone time series averaged over the

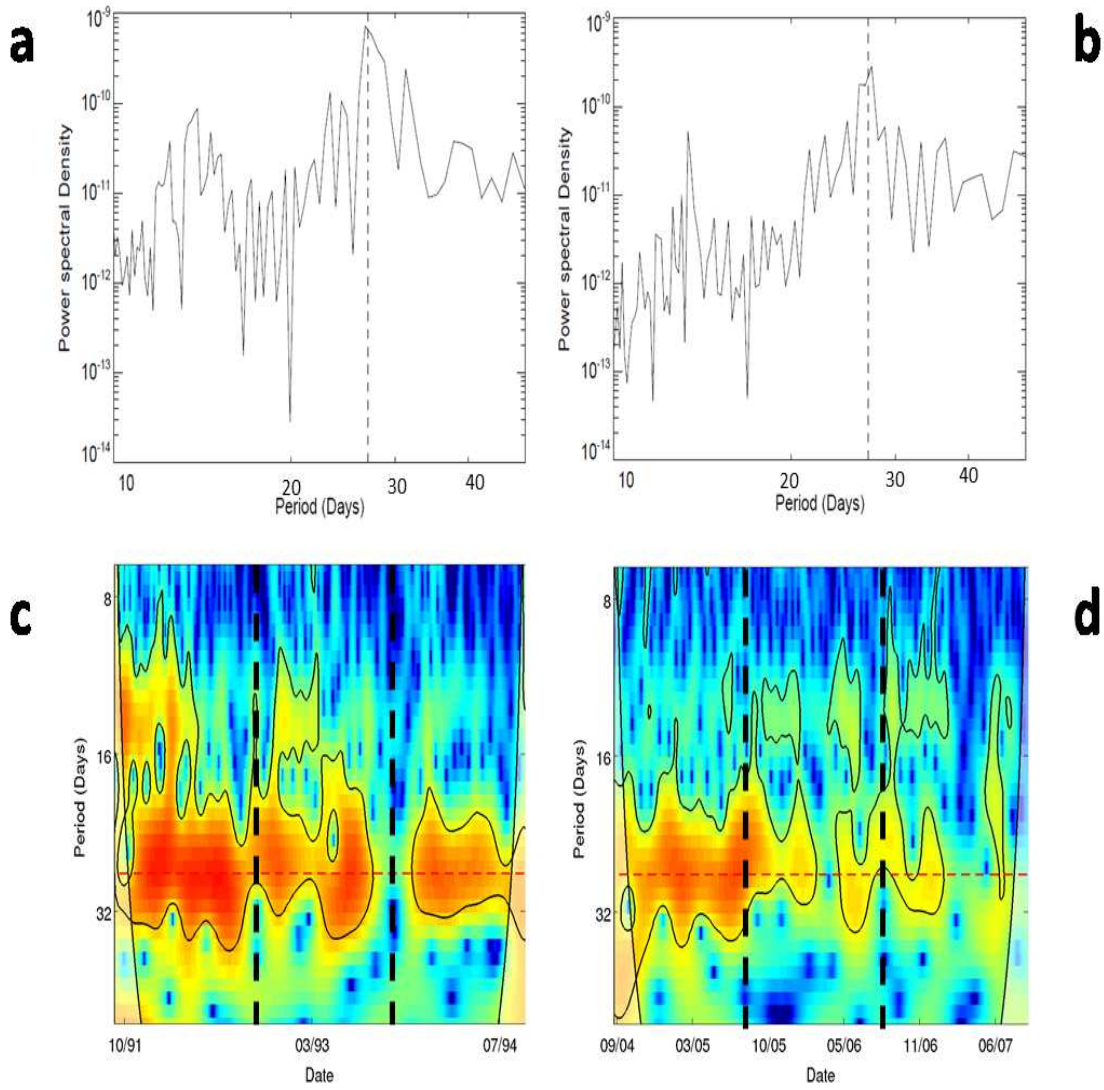


Fig. 28: (Top) *F205 FFT power spectra (from NRL-SSI model) for the (a) 1991-1994 period [10/1991-09/1994] and (b) 2004-2007 period [09/2004-08/2007]. (Bottom) Time-resolved power spectra densities (or scalogram) estimated from continuous wavelet transform (CWT) for (c) the 1991-1994 period and (d) 2004-2007 period. The vertical dotted line on (a) and (b) represents the 27-day period. The horizontal dotted line on (c) and (d) indicate the 27-day period; the solid contour lines represent the 95% confidence level.*

tropical band [20°S-20°N]. Figure 29 shows the normalized Lomb-Scargle periodograms (well adapted for non-continuous series, Lomb, 1976 ; Scargle, 1982) of tropical stratospheric ozone from observations (a : MLS/UARS, 1991-94 period ; d : MLS/Aura, 2004-07 period), from nudged model results (b : 1991-94 ; e : 2004-07) and from CCM results (c : 1991-94 ; f : 2004-07) at the 3.2 hPa (40 km) pressure level altitude where the solar signal is usually strong. The solid line in panels c and f indicate the mean of the 5 periodograms of the CCM simulations and the dotted line the 2- σ standard deviation.

We can notice that the 2- σ domain calculated from the ensemble of 5 CCM runs is represented in these latter periodograms in dotted line. The two periodograms of MLS ozone measurements (Figure 29.a and Figure 29.d) show small peaks in the 20-30 days periods range but they cannot be attributed unambiguously to the solar rotational cycle. In addition, there are much more important peaks, notably at longer periods. Note that the large peak found at the 35-day period for 1991-94 has not physical meaning, it corresponds to the yaw-maneuver period of the MLS instrument as described previously [Froidevaux *et al.*, 1994; Hood and Zhou, 1998]. The periodograms of the nudged model results (Figure 29.b and Figure 29.e) do not also exhibit a clear solar rotational peak. As in the MLS periodograms, there are some minor peaks between 20 and 30 days and their amplitudes are smaller for 2004-07 than for 1991-94. In contrast, the mean periodogram of the 5 CCM results presents a distinctive peak centered at 27 days for 1991-94 (Figure 29.c) that appears to be less pronounced and shifted to 25 days period for 2004-07 (Figure 29.f). However, the standard deviation associated with these peaks is very large indicating that the solar rotational signal is very weak or cannot be detected in some of the CCM simulations. The detection and estimation of the rotational signal in the ozone time series must be very sensitive to the presence of other sources of ozone variability, probably dynamical, that are quite variable from one year to another. Thus the absence of a distinctive rotational signal in the MLS and nudged time series (of 3 years) is possibly more indicative of the presence of strong non-solar ozone variability.

Ozone diurnal variation become very large above 1 hPa [Parrish *et al.*, 2014]. As UARS MLS carried out measurements at local times that varied from day to day, the diurnal cycle generates noise that tends to hamper the estimation of the solar rotational signal. For this reason, we limit the cross-spectral analysis to the vertical domain between 46 hPa to 1 hPa. Figure 30 presents the vertical profile of the mean squared coherence between stratospheric ozone and F205 from MLS observations (a and d), nudged model results (b and e) and CCM model results (c and f) are presented in Figure 30. Solid contour lines denote the 90% confidence level and the vertical dotted lines indicate the 27-day period.

A strong and statistically significant signal is found for MLS/UARS (1991-94) between 20 and 28 days and between about 10 and 1 hPa with a maximum of about 0.7 at the 22-day period around 6 hPa. In contrast, the coherence for MLS/Aura (2004-07) is generally weaker with only a small patch of significant coherence at the 90% confidence level. The coherence fields from the nudged model results

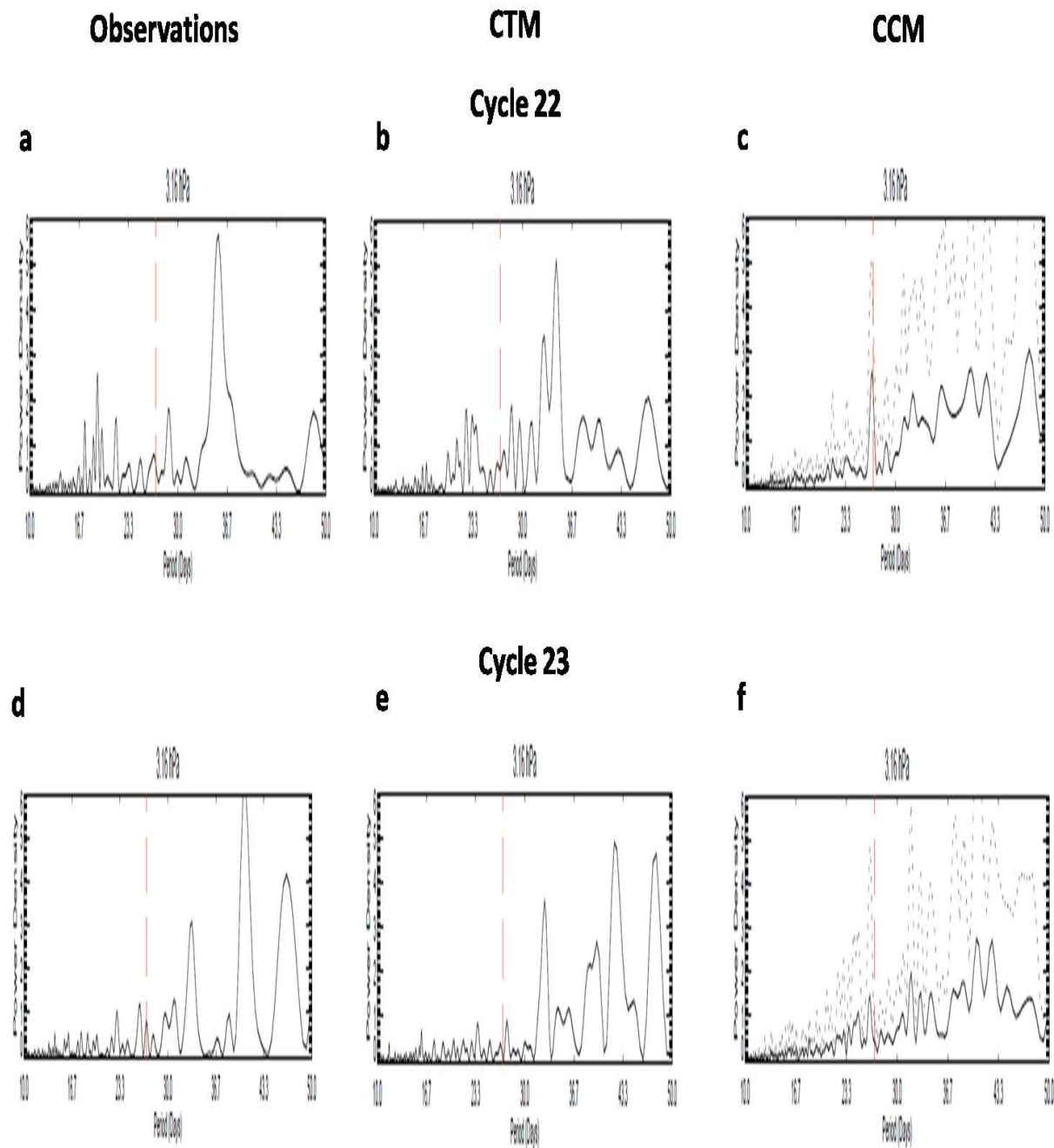


Fig. 29: Ozone Lomb-Scargle periodograms for the (top panels) 1991-1994 period and for the (bottom panels) 2004-2007 period. The two left panels represent ozone Lomb-Scargle periodograms from (a) MLS/UARS and (d) MLS/Aura observations. The two middle panels (b and e) represent the ozone Lomb-Scargle periodograms from the CTM version of LMDz-Reprobus and the two right panels (c and f) from the runs ensemble of the CCM version. In addition to the CCM-version panels (c and f), dotted line indicates the 2- σ standard deviation of the CCM runs ensemble.

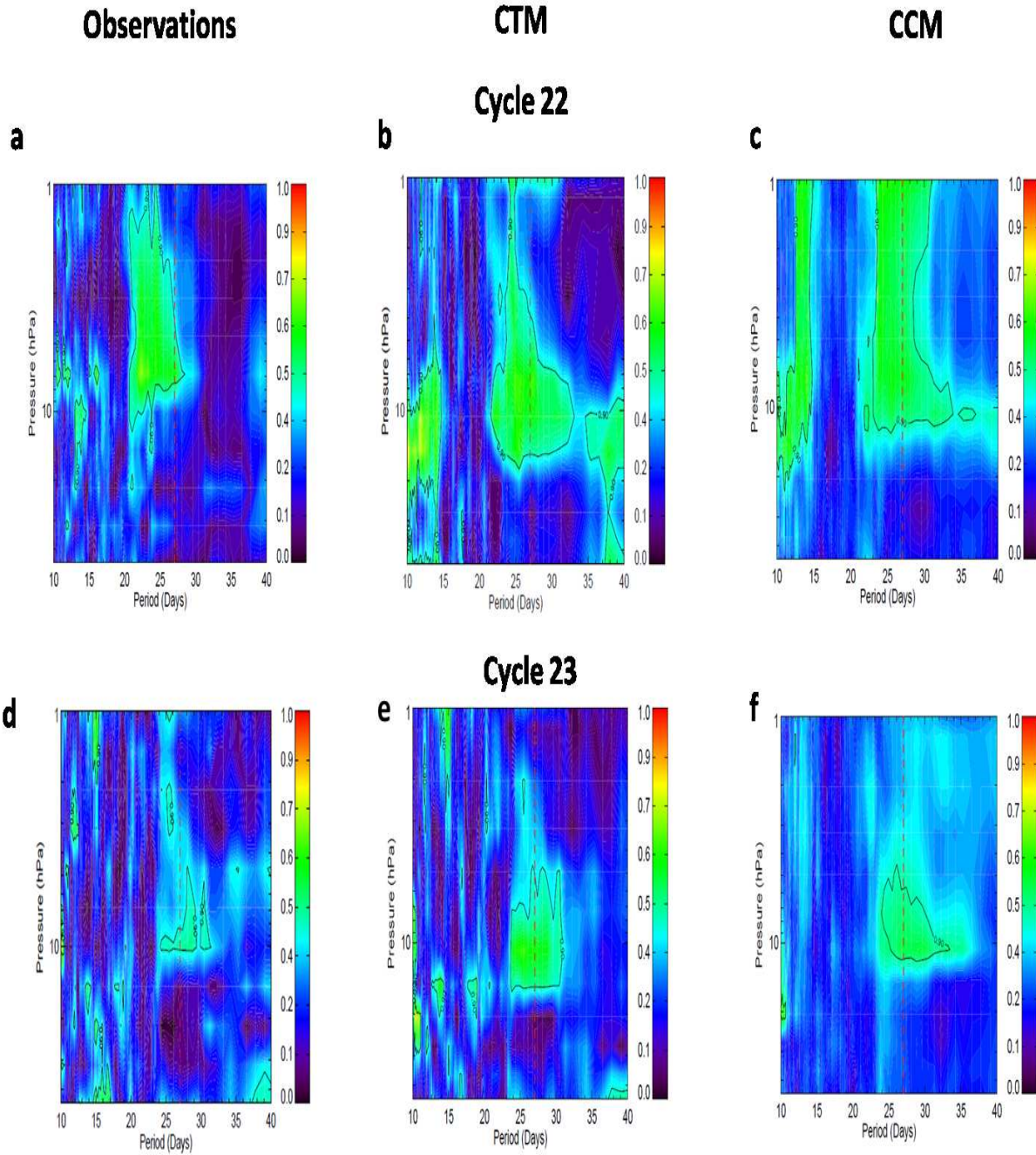


Fig. 30: Mean squared coherence between ozone and F205 as a function of period (days) and pressure (hPa) for the (bottom panels) 2004-2007 period. The two left panels represent mean squared coherence between F205 and ozone from (a) MLS/UARS and (d) MLS/Aura observations. The two middle panels (b and e) represent mean squared coherence between F205 and the nudged version ozone. The two right panels (c and f) mean squared coherence between F205 and ozone from the runs ensemble (CCM). Contour lines represent the 90% confidence level. The red vertical dotted lines indicate the 27-day period.

are somewhat similar to the ones from the MLS observations for the 2 periods reproducing the general changes between the 2 periods. The main difference is a significant coherence signal extending to lower levels in the nudged model results for both periods. The mean coherence fields from the CCM results are also similar to the ones from the MLS observations. However, the area of significant coherence around the 27-day period covers a wider area in the CCM coherence fields. However, this area does not extend as low as the nudged model results and hence is in better agreement with the MLS coherence fields. Again, the general differences observed between the two periods in MLS coherence fields are reasonably well reproduced in the CCM coherence results. For 2004-07, the area of significant coherence is overestimated in the nudged model and CCM coherence fields compared to the MLS fields. For 1991-94, there is also a secondary area of significant signal in the CCM coherence fields. It is centered at about 13.5 day period and extends almost throughout the stratosphere; this area is much more localized and weaker in the MLS and nudged model results. For 2004-07, there is no significant signal around 13-14 days in all the coherence fields. In order to test further the significance of the coherence and identify its origin, we perform an additional simulation where the solar forcing is kept constant by using fixed photolysis rates during the model simulation. The total absence of significant coherence found in this simulation (not shown) confirms that the coherence between F205 and stratospheric ozone is not just random and that it originates primarily from photolysis processes.

To focus exclusively on periodicities relevant to the solar rotational cycle (13.5 and 27 days) and thus improve the quality of solar rotational signal retrieval, all the time series are filtered using the same digital filter that has been commonly used in previous solar rotational studies [Hood, 1986; Chandra, 1986; Keating *et al.*, 1987; Hood and Zhou, 1998; Zhou *et al.*, 2000]. It can be considered equivalent to a band-pass filter in the 7-35 days frequency range. Once the data are filtered, cross-correlation between F205 and ozone are computed. The results are presented as a function of time lag and altitude in Figure 31. The first column of panels corresponds to the cross-correlation calculated using MLS observations (MLS/UARS in Figure 31.a and MLS/Aura in Figure 31.d), the second column to the nudged model results (Figure 31.b and 31.e), and finally the third column to the CCM model results (31.c and 31.f). The shaded areas indicate statistical significance greater than 95%.

For 1991-94, the cross-correlation peaks at 0.29 on the 4.6 hPa level with no significant time lag; this maximum value is close to the maximum of 0.35 found by Hood and Zhou [1998] on the same pressure level. The overall variation of the time lag with altitude shown in Figure 30 is similar to that found in previous studies [Hood, 1986; Brasseur *et al.*, 1987; Brasseur, 1993; Hood and Zhou, 1998] with a negative lag above 3-4 hPa (ozone leading the solar flux) and a positive lag below (ozone lagging the solar flux). The cross-correlation pattern for 2004-07 (Figure 31.d) is more distorted and noisy than for 1991-94 (Figure 31.a). The cross-correlation maximum (0.2) is smaller than for 1991-94 and is found at 10 hPa with a time lag of +5 days (ozone lagging solar flux). Although the cross-correlation fields for the nudged and CCM model are a bit smoother with larger shaded (statistically significant) areas than for the MLS data, most of the gross features present in the MLS cross-section fields appear

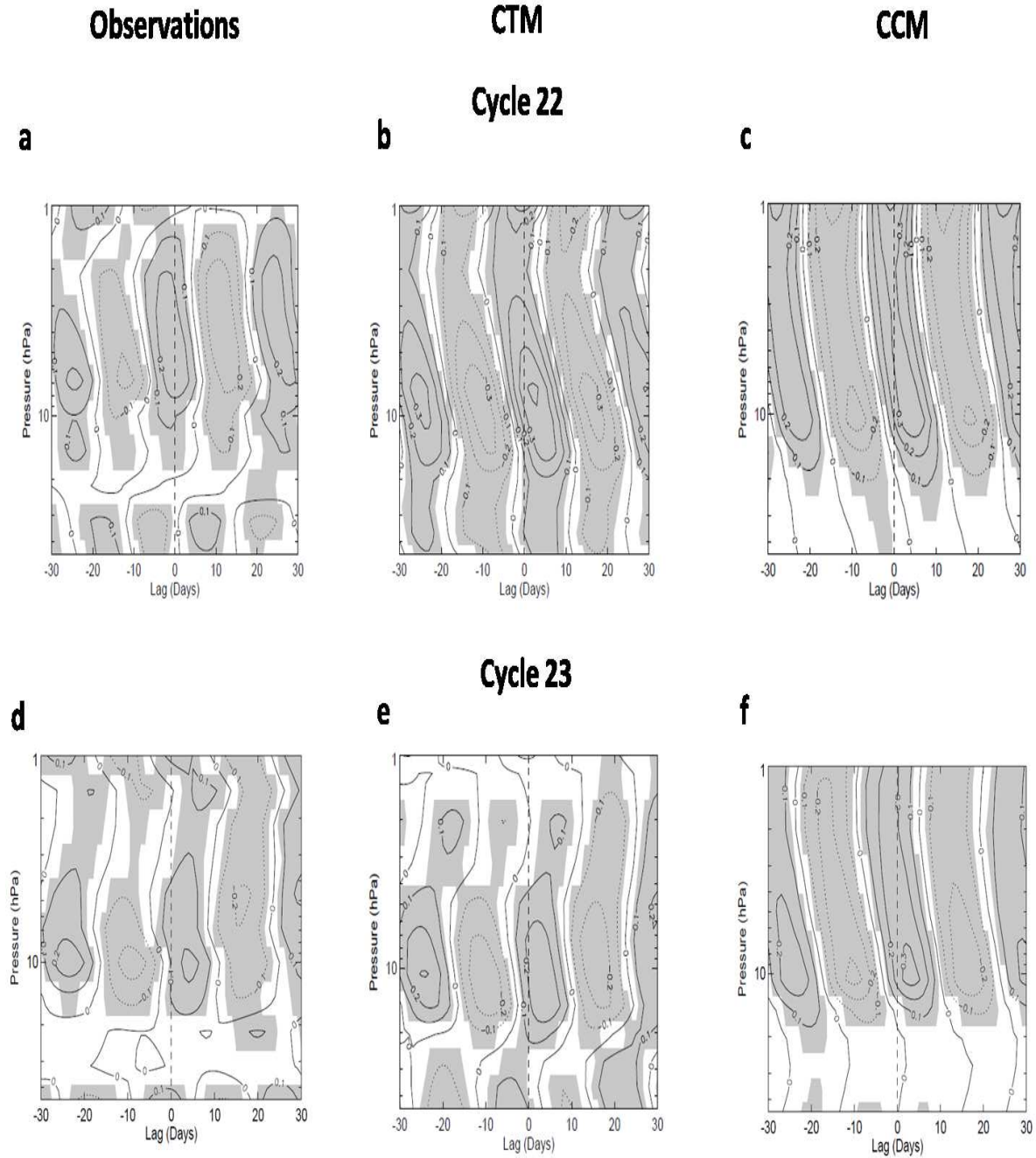


Fig. 31: Cross-correlation between ozone and F205 as a function of time lag (days) and pressure (hPa) for the (top panels) 1991-1994 period and for the (bottom panels) 2004-2007 period. The two left panels represent cross-correlation between F205 and (a) MLS/UARS ozone and (d) MLS/Aura ozone. The two middle panels (b and e) represent cross-correlation between F205 and the nudged version ozone and the two right panels (c and f) cross-correlation between F205 and the averaged ozone from the runs ensemble (CCM). The shaded areas represent areas with 95% confidence level. The ozone and F205 time series had been digitally filtered.

to be reproduced by the model in its nudged and CCM configuration. For 1991-94, the maximum of correlation in model results occurs at lower altitude (around 7 hPa) than in the observations and with a positive time lag (around +3 days). In the case of 2004-07, there is a particular good agreement in middle stratosphere between observations and nudged model results where the maximum occurs at the same altitude (10 hPa), with the same amplitude (0.2) and the same time lag (+4 days). CCM results for 2004-07 show a maximum of correlation also at 10 hPa and at the same time lag but with higher amplitude (0.3). The area of statistically significant cross-correlation covers almost completely the upper stratosphere in the CCM whereas the cross-correlation is generally barely significant in this region in the observations and nudged model.

Ozone response to solar irradiance changes has also been characterized in terms of sensitivity, which is defined as the percentage change in ozone for one percent change in F205. We derive the ozone sensitivity by linear regression of the filtered ozone time series on different pressure levels using only one independent variable (F205). Figure 32 shows the sensitivity profiles from MLS/UARS (Figure 32.a) and MLS/Aura data (Figure 32.d) on the left hand side, from the nudged model in the middle and from the CCM on the right hand side. The top panels concern the 1991-94 period and the bottom panels the 2004-07 period. It is worth pointing out that the dotted lines in the MLS and the nudged model panels represent the $2\text{-}\sigma$ standard error estimated from the linear regression calculations. In the case of the CCM panel, the dotted line represent $2\text{-}\sigma$ standard deviation from the mean and thus the solid line represent to the mean sensitivity profile calculated from the 5 individual profiles corresponding to the five CCM simulations.

For the 1991-94 period, the sensitivity peaks at 0.4 around 4-5 hPa (35 km), in good agreement with [Hood and Zhou, 1998] study. For the 2004-07 period, the shape of the sensitivity profile is somewhat distorted and the sensitivity peaks at only 0.2 around 35 km; it is consistent with a peak value of 0.15 derived on the same level by Dikty *et al.* [2010] for a somewhat similar period (2006-07). The sensitivity profile calculated from the nudged model results for 1991-94 (Figure 32.b) is in very good agreement with the MLS data sensitivity profile (Figure 31.a); the nudged model sensitivity profile peaks at 4-5 hPa with a value slightly lower (0.3%/%) than that derived from the MLS observations. For 2004-07, the agreement between observations and nudged model results is also very satisfactory. The nudged model is able to reproduce correctly the very significant differences in ozone sensitivity between the two periods. The sensitivity profiles calculated from the CCM simulations strongly differ from the MLS and nudged model results. The mean sensitivity profiles for the two periods appear to be the same. The maximum sensitivity is found at around 3 hPa with a value of 0.4%/ for both periods. Interestingly, the $2\text{-}\sigma$ standard deviations from the mean estimated from the ensemble of 5 CCM simulations are very large in these sensitivity profiles. They represent 0.5%/ at the maximum level (3hPa) and can reach value of 0.7%/ at higher levels indicating that there are large differences between the 5 sensitivity profiles. The most likely origin of these variations is large differences in the magnitude of non-solar ozone variability component resulting from different dynamics (winds,

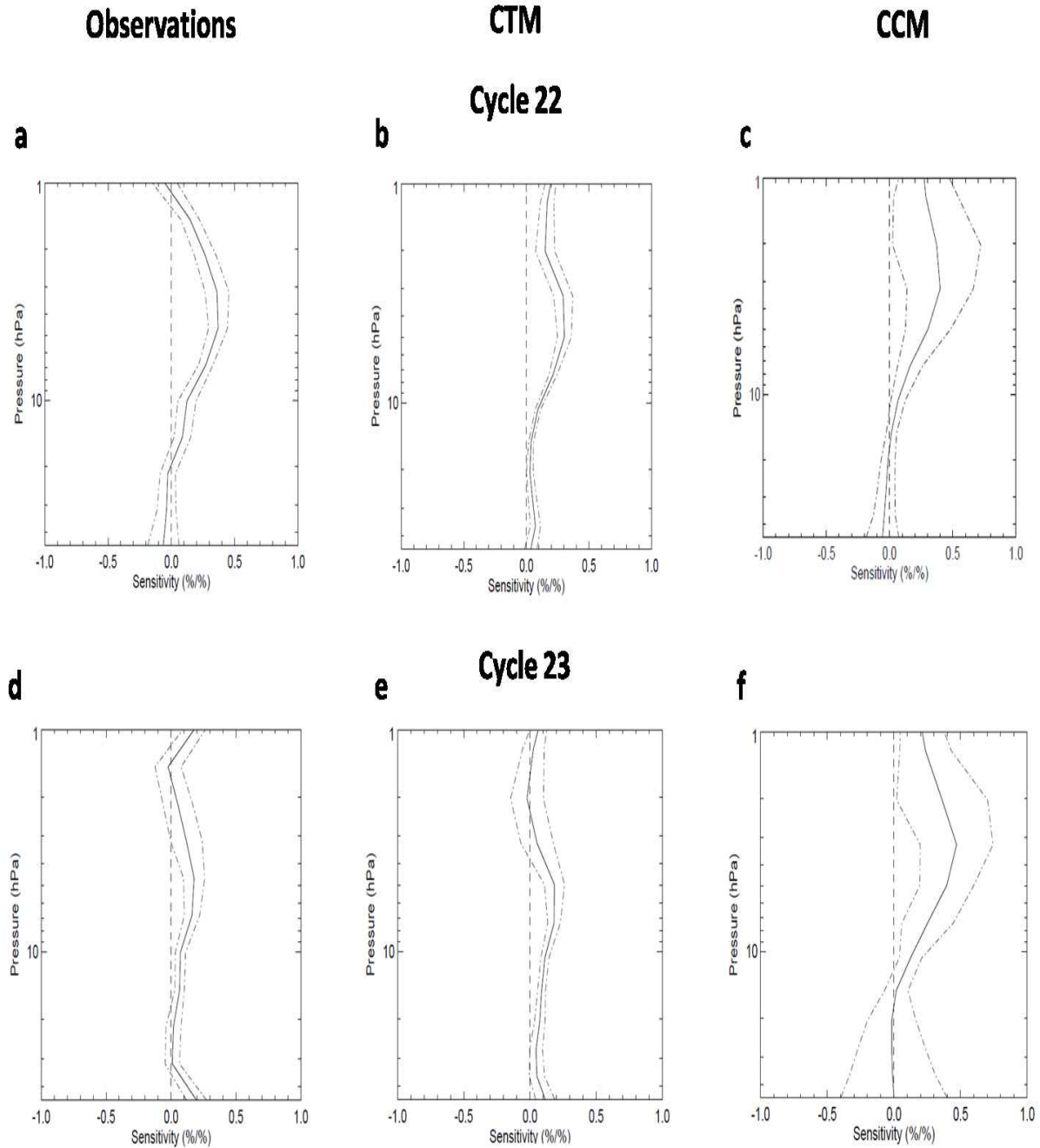


Fig. 32: Ozone sensitivity to F_{205} (% change in ozone for 1% change in F_{205}) as a function of pressure (hPa) for the (top panels) 1991-1994 period and for the (bottom panels) 2004-2007 period. The two left panels represent sensitivity profiles of (a) MLS/UARS ozone and (d) MLS/Aura ozone to F_{205} . The two middle panels (b and e) represent sensitivity of nudged version ozone to F_{205} and the two right panels (c and f) sensitivity of averaged ozone from the runs ensemble (CCM) to F_{205} . The dash-dotted lines represent the 2σ error. The ozone and F_{205} time series had been digitally filtered.

temperature) in each CCM simulation. The presence of these dynamical sources of variability would make uncertain the estimation of the solar rotational signal over 3-year time intervals.

5.4 Temporal variability of the ozone response

In order to investigate the apparent large variability in ozone sensitivity in the CCM results (see Figure 32), we analyze the stratospheric ozone response to solar irradiance variations over 1-year intervals for the two periods. Thus, the 3-year periods are divided into three 1-year intervals in order to investigate the variability in ozone sensitivity from one year to the next. Figures 33 and 34 present the sensitivity profiles for each 1-year interval calculated from the MLS observations (bottom panels) and from the nudged model results (top panels) over the 1991-94 period and 2004-07 period, respectively. These three 1-year intervals correspond to the three intervals delimited with the vertical dotted lines in Figures 28.c and 28.d.

There is a very large year-to-year variability in the sensitivity profile in the case of MLS measurements with even a change of sign at some levels. The annual sensibility maximum varies from 0.25 to 0.6% during the 1991-94 period and from 0.2 to 0.4% during the 2004-07 period with its altitude varying between 3 to 6 hPa. Surprisingly, this year-to-year variability is not consistent with the year-to-year change in the amplitude of solar rotational fluctuations (as estimated by the time-resolved power spectral density of F205 in Figure 28.c and Figure 28.d). Indeed, the ozone sensitivity to F205 variations is weaker over the first year for both periods whereas the amplitude of the solar rotational cycle is greater during this first year (see Figures 28.c and 28.d). Inversely, during period with a much weaker rotational cycle (second and third years), the sensitivity is greater in the middle stratosphere. These results suggest that the year-to-year variability in sensitivity does not originate from the inter-annual variability in F205 but rather in dynamics. Also, Figures 33 (1991-94 period) and 34 (2004-07 period) show that the large inter-annual variability found in the observations is well reproduced by the nudged model results especially at pressure levels lower than 10 hPa for 1991-94 period and over the entire vertical profile for 2004-07 period. The nudged model simulation is expected to contain a year-to-year dynamical variability that is close to reality because it is forced by the ERA-interim winds and temperature. As a result, it appears to be able to reproduce the year-to-year variations in the ozone variability driven by dynamics and hence the resulting year-to-year variability in the ozone sensitivity. It confirms that the origin of the inter-annual variability in sensitivity can be attributed to the dynamical variability. In the same way, the dynamical variability can also explain the large differences in sensitivity between the 5 CCM simulations (see Figure 32).

The temporal evolution of the daily F205 presented in Figure 27 and Figure 35 shows clearly that the levels of solar activity, notably amplitude of the solar rotational cycle, varies strongly with the phase of 11-year solar cycle. It would be interesting to see to what extent the ozone sensitivity varies with the phase of the 11-year solar cycle. In order to do so, we divide the five 15-year (1990-2005)

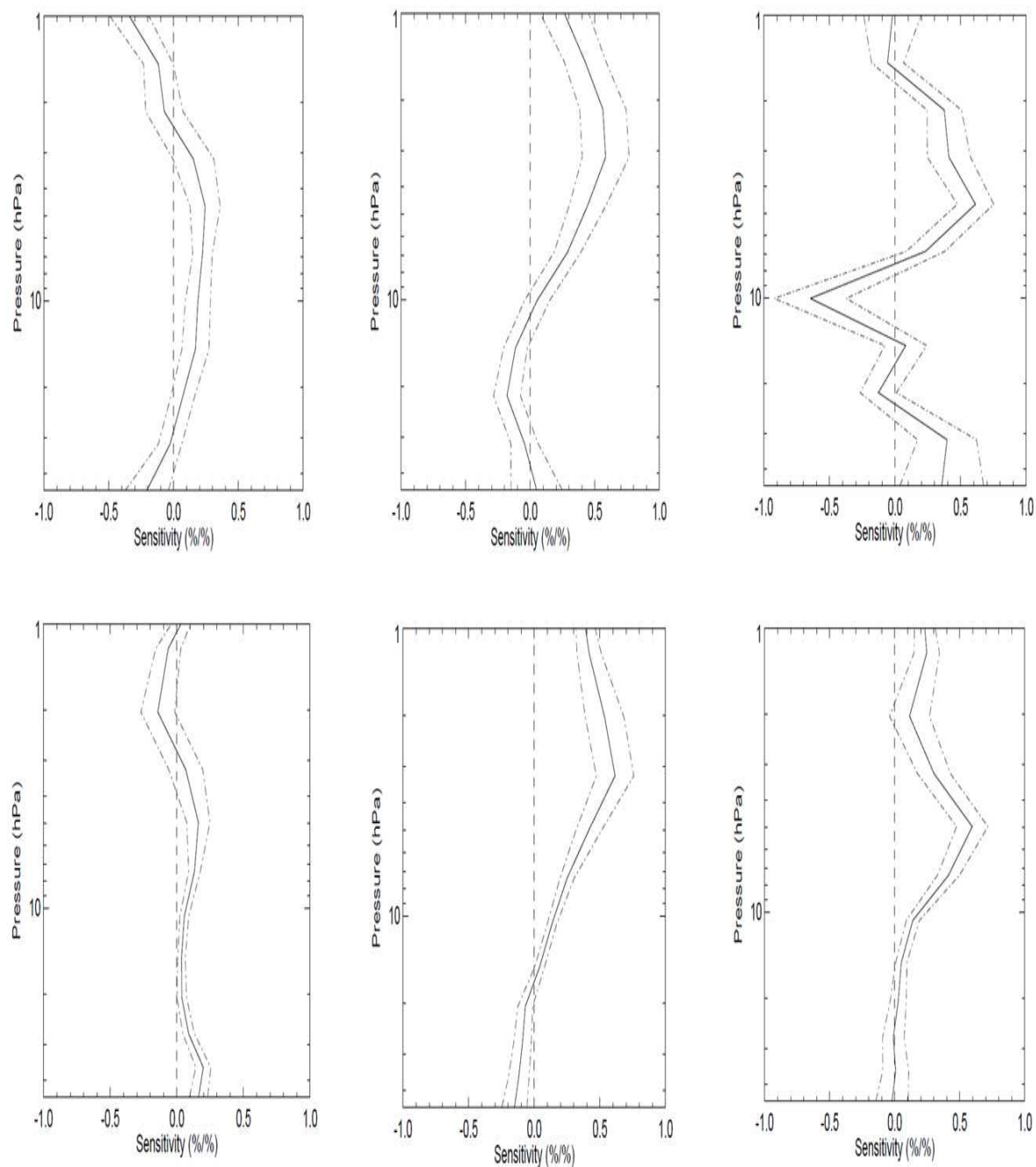


Fig. 33: Same as Figure 32 but with ozone from (top panels) observations and from (bottom panels) the nudged version. The two left panels represent sensitivity over the first year (10/1991-09/1992), middle panels over the second year (10/1992-09/1993), and right panels over the third year (10/1993-09/1994) of the 1991-94 period. The dash-dotted lines represent the 2σ error. The ozone and F205 time series had been digitally filtered.

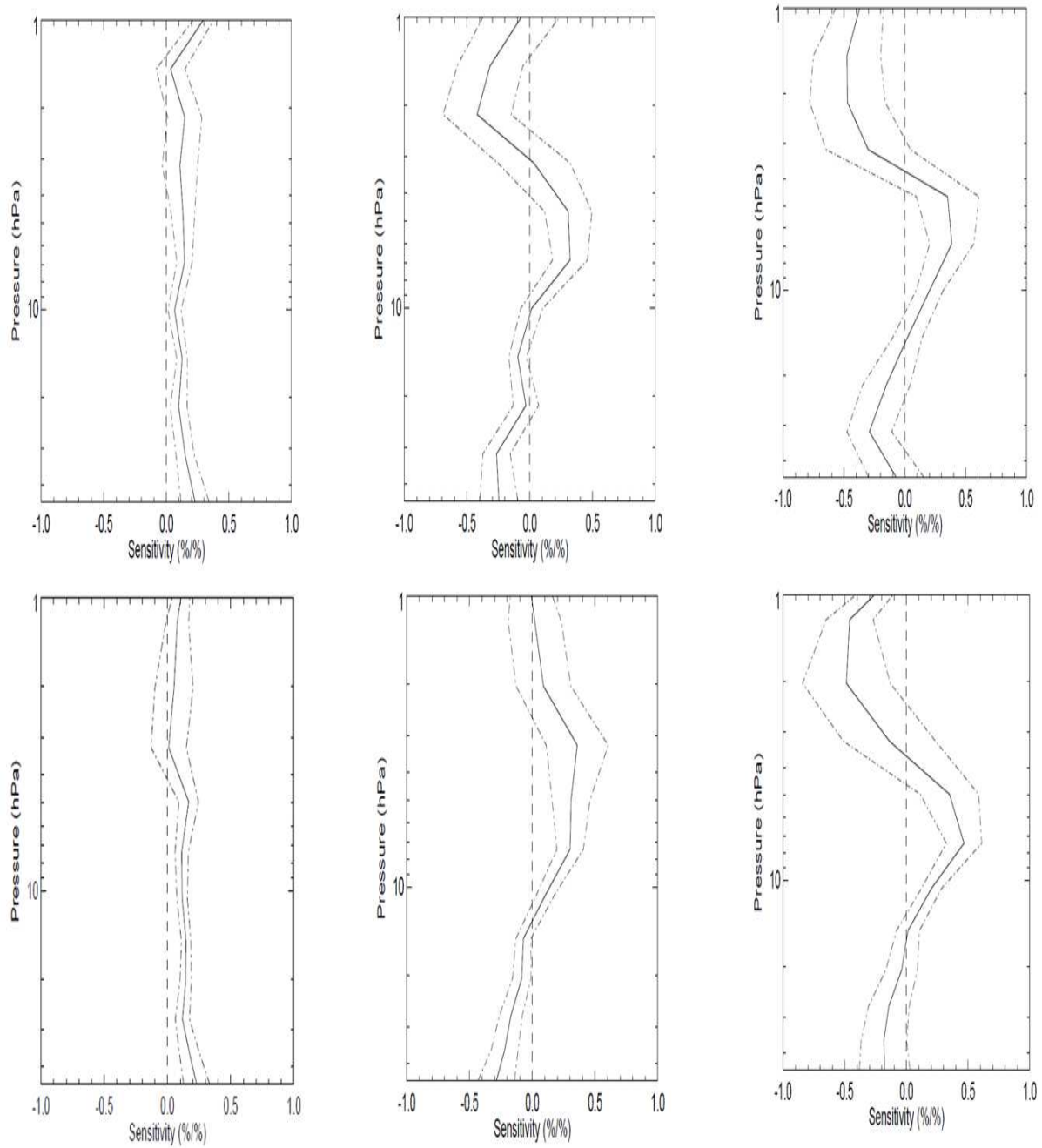


Fig. 34: Same as Figure 32 but with ozone from (top panels) observations and from (bottom panels) the nudged version. The two left panels represent sensitivity over the first year (09/2004-08/2005), middle panels over the second year (09/2005-08/2006), and right panels over the third year (09/2006-08/2007) of the 2004-07 period. The dash-dotted lines represent the $2\text{-}\sigma$ error. The ozone and F205 time series had been digitally filtered.

CCM simulations into 3-year intervals corresponding to different phases of 11-year solar cycles (*e.g.* maximum, minimum, descending, ascending phases) which are highlighted using different colors in the F205 time series in Figure 35 (top panel). The bottom panels (b to g) of Figure 35 present the mean (of the 5 simulations) sensitivity profiles for each 3-year interval.

Figure 35 presents the mean (of the 5 simulations) sensitivity profiles for each 3-year interval. Whatever the 3-year interval considered, all the mean sensitivity profiles are very similar with a maximum at around 3 hPa. The most pronounced difference is the value of the sensitivity maximum that varies between 0.3 and 0.48%/%. This dispersion is quite low compared to the year-to-year variability found in section 2. Overall, with an ensemble of 5 simulations, the mean sensitivity profile calculated over 3 year intervals appears to be rather independent to the level of solar activity within the range of variability of 11-year solar cycles. The $2\text{-}\sigma$ standard deviations from the mean profile are also plotted with dotted lines in Figure 35. The dispersion ($2\text{-}\sigma$ standard deviation) around the mean seems to be much more sensitive to the phase of 11-year solar cycle phase than the mean sensitivity itself. The sensitivity dispersion seems to be generally lower during high solar activity periods. Nonetheless, we can notice that the dispersion is lower for the maximum phase of cycle 22 than for the maximum phase of cycle 23. It is consistent with the results of *Fioletov* [2009] observational study that also show a stronger 27-day periodicity in the upper stratosphere tropical ozone during the maximum phase of the solar cycle 22 than the maximum phase of the cycle 23. Even if the dispersion does not appear to be directly connected to the phase of the 11-year cycle, it might be expected to depend on the magnitude of the solar rotational variations.

Instead of segmenting into several periods chosen arbitrarily as done in Figure 35, we extend the analysis by considering running time windows shifted by 1 month at each time step to finely follow the temporal evolution of the mean ozone sensitivity and its dispersion over the entire 15 years of model simulations. Initially, two sizes of windows (3 years and 1 year) are used.

Figure 36 compared the temporal evolution (from 01/01/1991 to 31/12/2005) of the variance of the filtered F205 time series (top curves) and of the variance (*i.e.* dispersion) of the ozone sensitivity (bottom curves) computed from filtered outputs of the five CCM simulations over a 3-year (a) and a 1-year (b) running windows. For the 3-year running window, there is a clear anti-correlation between the F205 variance, an indicator of the amplitude of the solar rotational fluctuations, and the dispersion on the ozone sensitivity. The robustness of the solar rotational signal retrieval is degraded when the F205 variance is low and inversely. The results for 1-year running windows also shows a good anti-correlation between the F205 variance and the dispersion on the ozone sensitivity. Note that the dispersion for 1-year running windows is 3 and 5 times higher than the dispersion for 3-year running windows in the low and high solar activity phases respectively. This very large dispersion for 1-year running windows may explain why the year-to-year variability in sensitivity can appear uncorrelated with the year-to-year change in the amplitude of solar rotational fluctuations over 3-year

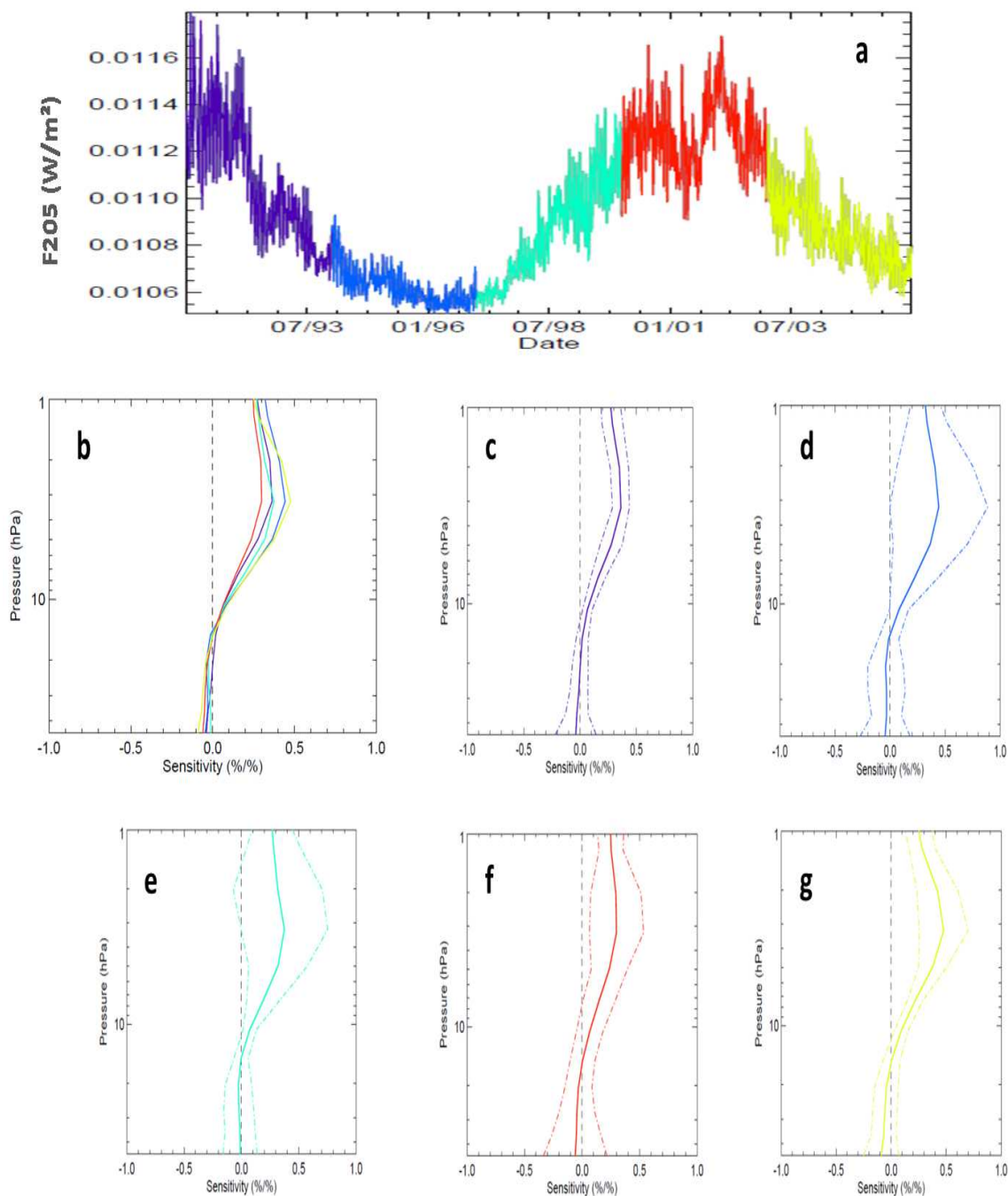


Fig. 35: (a) F_{205} time series over 1990-2005 period. Five three-year periods are determined over this period and are highlighted using different colors. (b) The five mean sensitivity profiles over the runs ensemble (CCM) for each 3-year period. Each color of these sensitivity profiles corresponds to the 3-year period color seen in (a). (c) Mean sensitivity profile (c) over the first 3-year period (07/1990-06/1993), (d) over the second period (07/1993-06/1996), (e) over the third period (07/1996-06/1999), (f) over the fourth period (07/1999-06/2002), (g) and over the fifth period (07/2002-06/2005). The dash-dotted lines represent the 2σ standard deviation of the five runs ensemble (CCM). The ozone and F_{205} time series had been digitally filtered.

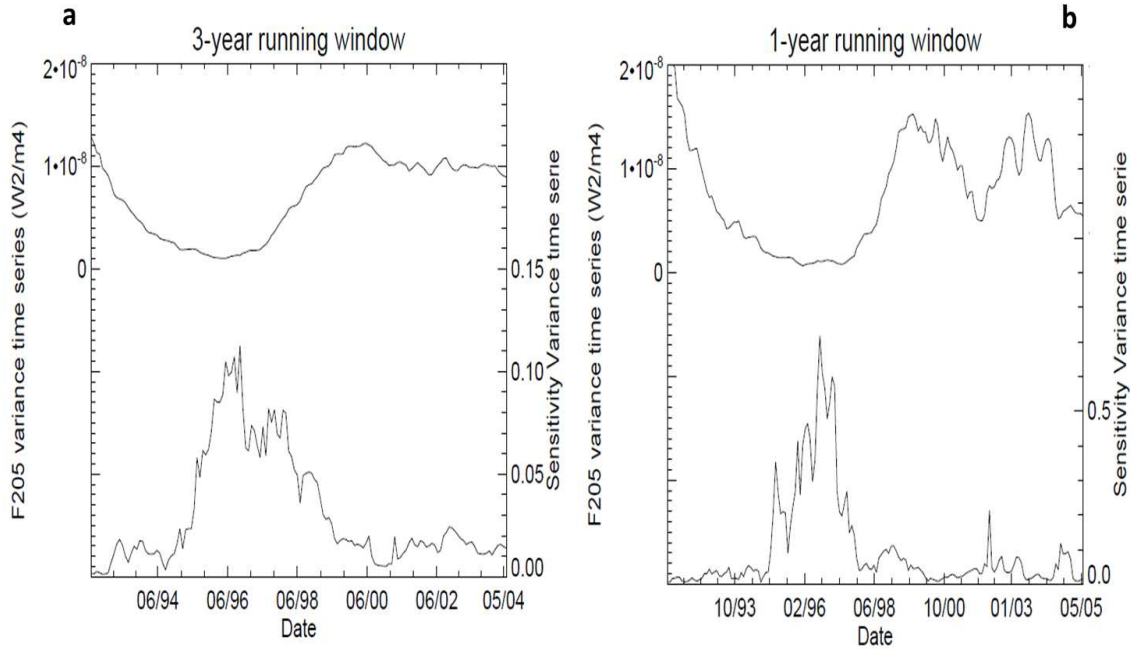


Fig. 36: Digitally filtered F205 variance time series and ozone sensitivity variance time series computed from filtered outputs of the five runs ensemble (CCM) and over a (a) 3-year running window and (b) 1-year running window. Each window is sliding for one month at each step.

periods (see section 5.3). Overall, the errors in the estimation of the solar rotational ozone sensitivity depend strongly not only on the level of solar rotational activity but also on the size of the time window.

Finally, we test the robustness of the estimated ozone sensitivity with respect to the size of the analysis windows (1 year, 3 years, 7 years and 15 years). Figure 37 shows the mean of the sensitivity profiles calculated from the ensemble of 5 CCM simulations for different sizes of time windows (1 year, 3 years, 7 years and 15 years). One can keep in mind in these comparisons that, for the 1-year window analysis, the statistic is high ($5 \times 15 \times 12$ samples) but the time interval over which the signal is estimated is short (1 year) whereas for the 15-year window analysis, the statistic is much smaller (5×15 samples) but the estimation is carried out over a much longer time interval (15 years). Interestingly, the mean of the sensitivity profiles varies little with the size of the analysis windows with a maximum (0.4%/%) located at 3 hPa; it is the altitude where the dispersion is the most pronounced. Figure 37 shows that the longer the size of time window is, the smaller the dispersion (2σ standard deviation) is, especially during high solar activity. During periods of high solar activity such as at the maximum phase of 11-year solar cycles, even with an apparently good statistics, a 1-year window analysis doesn't allow to estimate reliably the solar rotational signal. During the declining and minimum activity phases of 11-year solar cycles, the results suggest that a reliable estimation of the solar rotational ozone sensitivity requires a time series exceeding at least 3 years. Not surprisingly, the most accurate estimation of

the ozone sensitivity is derived for a time-window of 15 years. It is likely that some of the discrepancies between the results of different studies regarding the estimation of ozone sensitivity originate from the size of the analysis window.

5.5 Summary and concluding remarks

In the present study, the solar rotational signal in tropical stratospheric ozone and its temporal variability is investigated at different time scales using a chemistry-climate model. The solar irradiance at 205 nm is chosen as the UV activity index and its daily irradiance is taken from a well established and widely used solar reconstruction [Lean *et al.*, 2005]. For the evaluation of the model calculations against observations, we consider two 3-year periods falling within the descending phases of two successive 11-year solar cycles, from 10/1991 to 09/1994 for cycle 22 and from 09/2004 to 08/2007 for cycle 23. Stratospheric ozone data are provided by the MLS instruments on-board UARS satellite for the 1991-94 period and Aura satellite for the 2004-07 period. Numerical simulations are performed using the chemistry-climate model LMDz-Reprobus in its nudged configuration during the two periods and in its free-running configuration over an ensemble of five simulations of 17 years (from 1991 to 2007). The objective is to follow the temporal evolution of stratospheric ozone response to rotational UV variability during the two 3-year periods and to compare the observations-based and model results. In addition, the ozone response is analyzed at different time scales to explore its dependency on the phase of 11-year solar cycle and see to what extent its estimation is influenced by the length of the time window.

First, the solar 205 nm flux and ozone time series are analyzed independently to identify their characteristic frequency components. Spectral analyses indicate a broad peak centered around 27 days, which is stronger for the 1991-94 period than for the 2004-07 period. Time-resolved spectral analyses show that rotational periodicities are highly variable in the 205 nm flux (F205) time series; they can even disappear up to for half a year. In contrast to F205, there is not distinctive solar rotational signal in the power spectra of the MLS stratospheric ozone measurements time series for both periods. The nudged model results also do not show a clear rotational signature which is in agreement with the spectral analysis of MLS observations. Interestingly, the spectral analyses of the ensemble CCM simulations show a clear signal at the 27-day period but with a large dispersion (*i.e.* differences between the CCM simulations) suggesting that the rotational signal in ozone is certainly masked by other strong sources of high-frequency variability, certainly of dynamical origin, in some of the model simulations. The cross-correlation analyses (coherences) between the UV solar flux and stratospheric ozone measurements reveal a clear correlation that varies strongly from one 3-year period to another. Correlation has also been quantified in terms of ozone sensitivity (*i.e.* ozone percentage change per 1% change in the solar index, here 205 nm irradiance). For the 1991-94 period, the sensitivity peaks at 0.4 around 4-5 hPa (35 km), which is in good agreement with Hood and Zhou [1998] results. For the 2004-07 period, the sensitivity profile is somewhat irregular and sensitivity peaks at only 0.2, which is

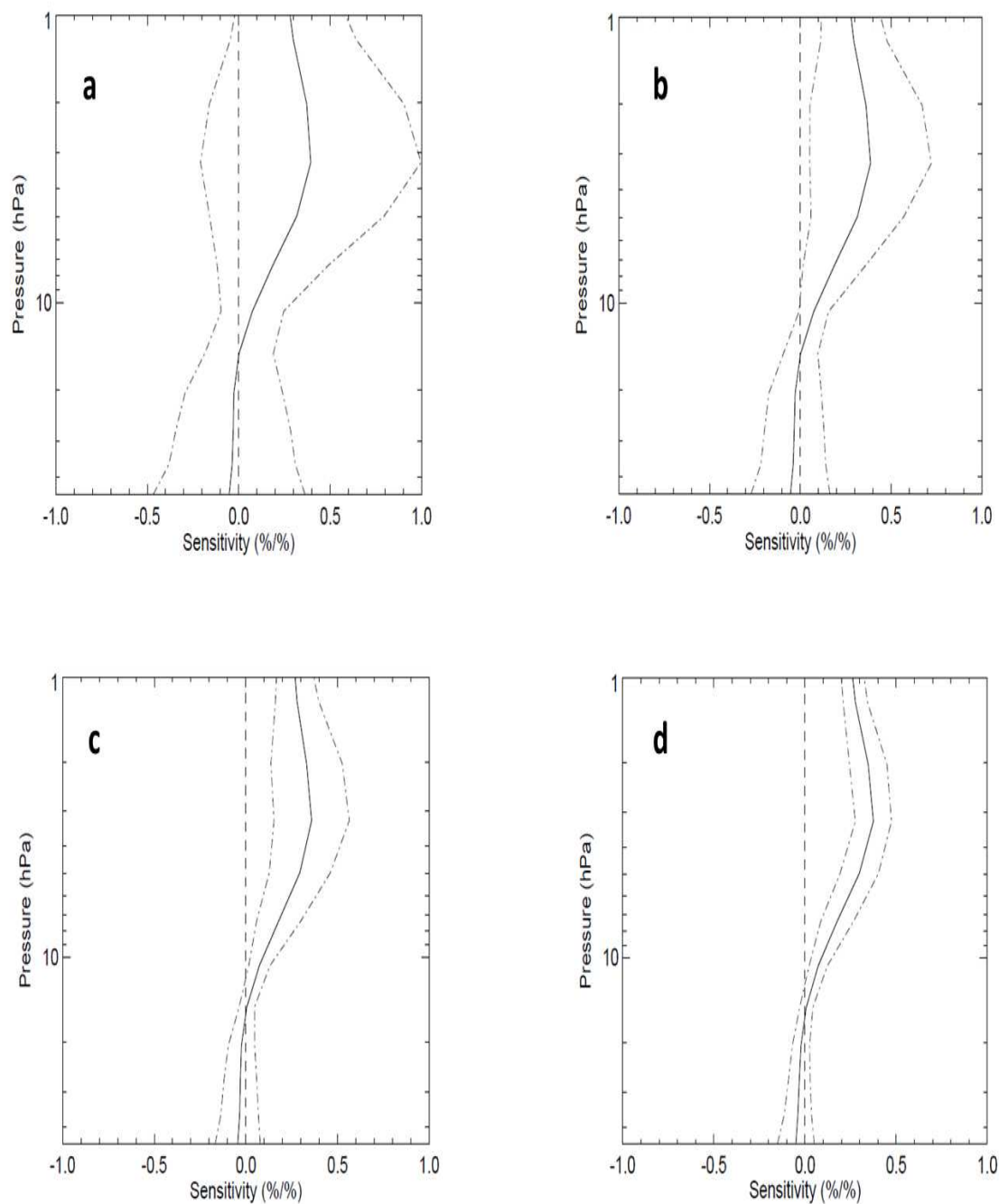


Fig. 37: Mean ozone sensitivity profiles to F_{205} variations over the 1990-2005 period and over different analysis window sizes. Sensitivity profiles are computed over a (a) 1-year sliding window, (b) 3-year sliding window, (c) 7-year sliding window, (d) and 15-year sliding window. The dash-dotted lines represent the 2σ standard deviation of the five runs ensemble (CCM). The ozone and F_{205} time series had been digitally filtered.

consistent with *Dikty et al.* [2010] results. The shape and magnitude of the sensitivity profile are well reproduced by the nudged model as well as the differences found between the two cycles. In contrast, the mean sensitivity calculated from the ensemble of 5 CCM runs changes very little whatever the observational window and reveals at level of the maximum of sensitivity (around 3 hPa) a very large variance suggesting that the retrieval of the 27-day cycle ozone signal can be mitigated by the presence of other sources of variability, possibly dynamical origins that obscure the link between ozone and solar variability.

In order to investigate the factors influencing the accuracy of the solar signal estimation, we analyze the stratospheric ozone response to solar rotational variations over different time intervals for different levels of solar activity. The nudged model is able to reproduce most of year-to-year variations in ozone sensitivity observed in the MLS time series. Although the CCM is forced by the same solar spectra irradiance time series as the nudged model, the CCM cannot at all reproduce the year-to-year variations in the apparent ozone sensitivity. The only difference between the nudged model and the CCM is the dynamics. The CCM calculates its own dynamics whereas the nudged model contains a year-to-year dynamical variability that is close to reality because it is forced by the ERA-interim winds and temperature. As a result, it is able to reproduce the year-to-year variations in the ozone variability of dynamical origin and hence the resulting year-to-year variability in the ozone sensitivity. It confirms that the origin of the inter-annual variability in sensitivity can be attributed to the dynamical variability. In the same way, the dynamical variability can also explain the large differences in sensitivity between the 5 CCM simulations with each of them having their own dynamical variability.

The level of solar activity, notably the amplitude of the solar rotational fluctuations, varies strongly within an 11-year solar cycle. In order to study it, we divide the five 15-year (1990-2005) CCM simulations into 3-year intervals corresponding to different phases of 11-year solar cycles (*e.g.* maximum, minimum, descending, ascending phases). Overall, with an ensemble of 5 simulations, the mean sensitivity profile calculated over 3 year intervals appears to be rather independent of the level of solar activity within the range of solar variability observed over a typical 11-year solar cycle. However, the dispersion around the mean sensitivity is found to be much more sensitive to the phase of 11-year solar cycle. The dispersion is generally lower during high solar activity periods.

Instead of segmenting into several periods chosen arbitrarily, we extend the analysis by considering running time windows shifted by 1 month at each time step to finely follow the temporal evolution of the mean ozone sensitivity and its dispersion over the entire 15 years of model simulations. For the 3-year running window, there is a clear anti-correlation between the F205 variance (an indicator of the amplitude of the solar rotational fluctuations) and the dispersion on the ozone sensitivity. The robustness of the solar rotational signal retrieval is degraded when the F205 variance is low and inversely. The results for 1-year running windows also show a good anti-correlation between the F205 variance and the dispersion on the ozone sensitivity. Note that the dispersion for 1-year

running windows is 3 and 5 times higher than the dispersion for 3-year running windows in the low and high solar activity phases respectively. This very large dispersion for 1-year running windows may explain why the year-to-year variability in sensitivity can appear uncorrelated with the year-to-year solar rotational variations over 3-year periods (see section 5.3). Overall, the errors in the estimation of the solar rotational ozone sensitivity depend strongly not only on the level of solar rotational activity but also on the size of the time window.

Finally, we test the robustness of the estimated ozone sensitivity with respect to the size of the analysis time window. One has to keep in mind that there is compromise between the size of the time window and the statistics. For instance, for a 1-year window analysis, the statistic is high (5x15x12 samples) but the time interval over which the signal is estimated is short (1 year) whereas for the 15-year window analysis, the statistic is much smaller (5x15 samples) but the estimation is carried out over a much longer time interval (15 years). The interesting finding is that the mean of the sensitivity profiles varies little with the size of the analysis windows. However, that is not the case of the dispersion. Even during periods of high solar activity such as at the maximum phase of 11-year solar cycles, a 1-year time series doesn’t allow to estimate reliably the solar rotational signal. During the declining and minimum activity phases of 11-year solar cycles, the results suggest that a reliable estimation of the solar rotational ozone sensitivity requires a time series exceeding at least 3 years. It is likely that some of the discrepancies between the results of different studies regarding the estimation of ozone sensitivity originate from the size of the analysis window.

In order to investigate this large variance, we have analyzed the sensitivity over the two observational windows at a time scale of 1 year that which allowed us to estimate its inter-annual variability. The shape as well as the magnitude and vertical level of the sensitivity vary significantly from one year to another up to change sign. Surprisingly, this strong inter-annual variability presents no matches with the inter-annual variability of the rotational UV cycle. Comparisons with the nudged model results show a good agreement suggesting that the origin of this inter-annual variability can be attribute to the dynamical variability contained in the ERA-interim winds and temperatures used to force the nudged model. The high dependency of the magnitude of the rotational UV variation to the phases of the 11-year solar cycle might suggest that we could find the same dependency in the term of sensitivity. Therefore we have determined different intervals of 3 years over the 1990-2005 period describing the different phases of the 11-year solar cycle. In each interval, we have analyzed the mean CCM results calculated from the ensemble of 5 simulations as well as its 2σ standard deviation. The dispersion in sensitivity profiles appears to be much more sensitive to the 11-year solar cycle phase than the mean sensitivity profile. The use of a running time-window approach over the 1990-2005 period allowed us to obtain the temporal evolution of the sensitivity and its dispersion. Thus, this allowed us to compare the variance of the rotational UV flux with the variance of the sensitivity as a function of time for two analysis window sizes (3 years and 1 year). The robustness of the retrieval of the 27-day cycle ozone response appears to depend directly on the variance of the 205 nm solar irradiances and by this way indirectly on the 11-year solar cycle phases. Finally, we have calculated the mean sensitivity

profiles from the CCM results over the entire period (1991-2007) with 4 different window sizes (1 year, 3 years, 7 years and 15 years). The mean sensitivity profiles present the same features whatever the size of window used ; a maximum located at 3hPa of 0.4 whereas the $2\text{-}\sigma$ standard deviation increase when the length of the window decrease. The robustness of the retrieval of the 27-day ozone response is reliable with a 15-year window size and can be sufficiently acceptable with lower window size in 11-year solar cycle maxima periods but remains too low whatever the 11-year solar cycle phases with a 1-year window of analysis.

Chapitre 6

*Mesospheric ozone response to solar rotation cycle observed by
the GOMOS satellite instrument*

Sommaire

6.1	Introduction	116
6.2	Ozone and solar data	118
6.3	Results	118
6.4	Summary and concluding remarks	125

Résumé

Ce chapitre est l’objet d’un article qui sera prochainement soumis dans *Geophysical Research Letters*, dont le résumé est ci-dessous.

Le dernier objectif est la détection d’un signal solaire rotationnel dans l’ozone mésosphérique. Le nombre d’études indiquant l’existence d’un signal solaire dans l’ozone mésosphérique est très limité et ne couvrent pas l’ensemble de la mésosphère tropicale en altitude. Elles sont toutes basées sur l’analyse des données SME (Solar Mesospheric Explorer) qui sont des mesures de jour. Notre étude se focalise sur la détection d’un signal solaire rotationnel dans des données de nuit issues des mesures par occultation stellaire de GOMOS à bord du satellite ENVISAT. Ces données couvrent l’ensemble de la mésosphère. Il est intéressant de considérer la réponse de l’ozone. En effet, des récentes simulations d’un modèle de chimie-climat ont suggéré que le maximum de la réponse de l’ozone au cycle de rotation solaire se produit dans la haute mésosphère et de nuit [Gruzdev et al., 2009]. Les caractéristiques des mesures GOMOS sont bien adaptées à un test de ces prédictions du modèle. La raie HI Lyman- α est choisie comme indicateur solaire car elle détermine le taux de photolyse de H_2O et donc la production de radicaux hydrogénés destructeurs d’ozone, le puit le plus important dans l’équilibre chimique de l’ozone mésosphérique. La période (486 jours) des mesures GOMOS considérée ici se déroule durant la phase descendante du cycle solaire à 11 ans numéro 23.

Les séries temporelles d’ozone et de la raie HI Lyman- α sont d’abord analysées séparément. Il y a un pic spectral très fort et large centré à 27 jours, l’harmonique principale du cycle solaire rotationnel, dans le spectre de puissance de la série temporelle de la raie HI Lyman- α . Une analyse des spectres de la série temporelle d’ozone GOMOS révèle aussi la présence d’un pic caractéristique autour de 27 jours dans le domaine d’altitude 77 à 83 km. Ceci est la première indication claire d’un signal rotationnel solaire dans les données d’ozone mésosphérique de nuit. Afin de se concentrer sur le domaine spectral d’intérêt, la série solaire et l’ozone temps sont filtrées numériquement pour éliminer les fluctuations haute fréquence (périodes de moins de 7 jours) et les fluctuations à long terme (*e.g.* variations saisonnières, semi-annuelles et annuelles). La corrélation (à décalage temporel nul) entre l’ozone et la raie HI Lyman- α pour les données filtrées change de signe vers 79 km. La corrélation est positive en dessous de 79 km mais négative au dessus. Pour pouvoir comparer avec les résultats du modèles de chimie-climat HAMMONIA [Gruzdev et al., 2009], le décalage temporel et la sensibilité de l’ozone au cycle rotationnel sont calculés à corrélation maximale. Au-dessus de 80 km, le décalage temporel moyen oscille entre environ 15 et 20 jours et en dessous de cette altitude, il est proche de 0. Entre ces deux régions, il y a un changement très rapide de ce décalage. La forme générale du profil de décalage temporel ressemble à celui (également calculés au maximum de corrélation) calculé à partir des données de nuit du modèle HAMMONIA (voir la Figure 39 issue de Gruzdev et al. [2009]). L’écart le plus remarquable, entre nos résultats à partir des données GOMOS et ceux du modèle, est

l’altitude de la transition du décalage temporel. Cette transition a lieu vers environ 70 km dans le modèle [Gruzdev et al., 2009] alors qu’elle a lieu à environ 80 km dans notre étude. Cependant, il faut souligner que les erreurs relatives sur les mesures GOMOS sont très grandes dans cette gamme d’altitude et donc les résultats sont moins fiables. Il y a une autre différence mineure entre nos résultats et ceux du modèle HAMMONIA. Le décalage temporel dans la haute mésosphère oscille entre 15 et 20 jours dans les données GOMOS alors qu’il est plus ou moins constant, autour de 15 jours, dans les simulations du modèle. En ce qui concerne le profil de sensibilité de l’ozone aux variations solaires rotationnelles (*i.e.* % de variation d’ozone pour 1% de variation de l’intensité de la raie HI Lyman- α), il existe généralement un bon accord entre nos résultats et ceux du modèle (voir la Figure 38 issue de Gruzdev et al. [2009]). Les altitudes de sensibilité maximale (72 à 74 km) et minimale (81-83 km) sont très similaires. Dans l’ensemble, nos résultats confirment la prédiction du modèle HAMMONIA, *i.e.* que le maximum de sensibilité au cycle de rotation solaire se trouve dans la haute mésosphère et de nuit. La différence la plus prononcée est l’amplitude du maximum. Le maximum dépasse 4%/ % dans notre étude au lieu de 1,7%/ % dans le modèle HAMMONIA. Notons cependant que les erreurs de mesure et d’analyse sont grandes autour de cette altitude.

Pour aider le lecteur, les Figures 38 et 39 issues de Gruzdev et al. [2009] sont fournies ci-dessous.

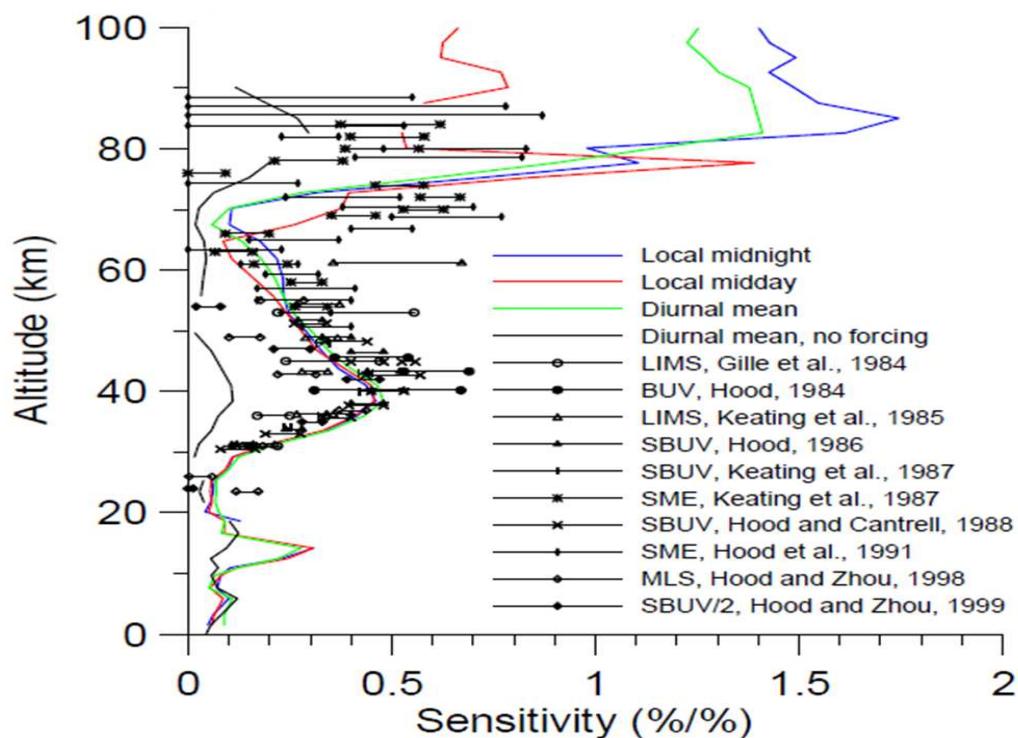


Fig. 38: Comparison of ozone sensitivity (% change for 1% in 205 nm irradiance) derived by the linear regression method from model calculations averaged over 20°S–20°N for the annual mean (color and black curves) with observations in the tropical region (horizontal bars). Blue, red, and green curves correspond to sensitivities for local midnight, local midday, and diurnal mean quantities, respectively, for the case of standard forcing (S_{27}). Black curves correspond to the case without forcing (S_0) (from Gruzdev et al. [2009]).

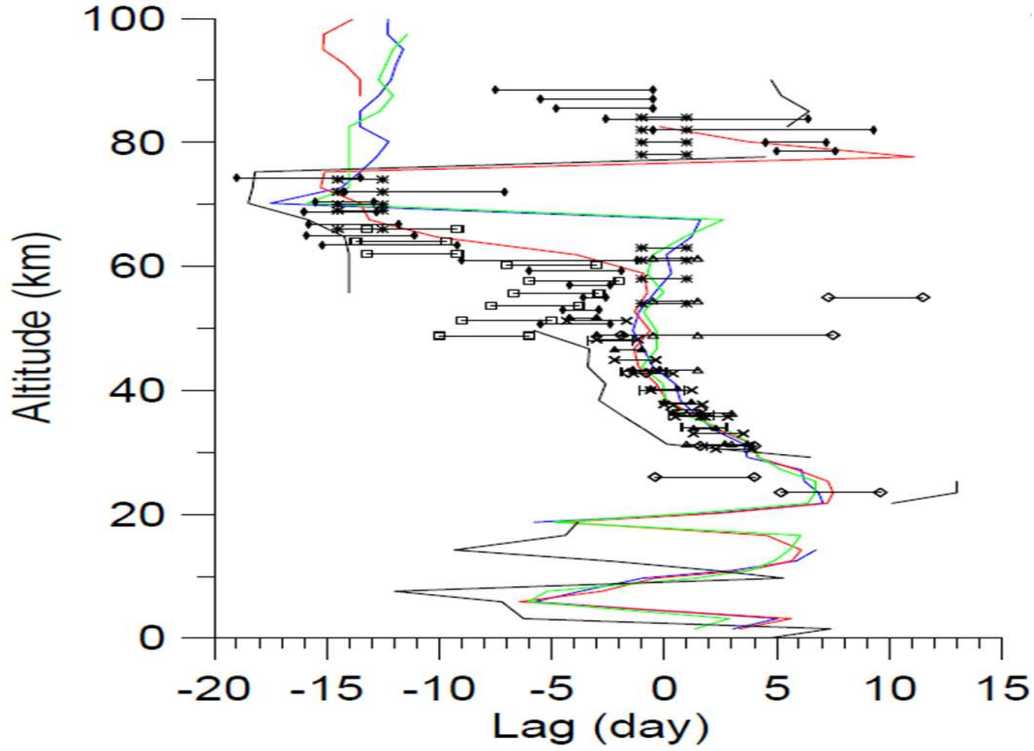


Fig. 39: Comparison of the phase lags of ozone responses derived by the linear correlation method from model calculations averaged over 20°S – 20°N for the annual mean (color and black curves) with observations in the tropical region (horizontal bars). Blue, red, and green curves correspond to lags for local midnight, local midday, and diurnal mean quantities, respectively, for the case of standard forcing (S27). Black curves correspond to the case without forcing (S0). A response lags (leads) the forcing if the lag is positive (negative). Only those model lag values are shown that correspond to statistically significant sensitivities Figure 38. Note that the sharp phase shift at 75 km in the red curve in (a) is due to adding a period value (27 days) to the phase lag for easier comparison with the observations (from Gruzdev et al. [2009]).

6.1 Introduction

It is already well established that a large component of stratospheric ozone variability originates from short-term and long-term quasi-periodic fluctuations in solar activity, notably the 11-year solar magnetic activity cycle (also called the Schwabe cycle) and the 27-day solar rotational cycle (also called the Carrington cycle). Numerous observational [Hood, 1986; Chandra and McPeters, 1994a; Zhou et al., 1997; Hood and Zhou, 1998; Zhou et al., 2000; Ruzmaikin et al., 2007; Fioletov, 2009; Dikty et al., 2010] and modelling [Brasseur, 1993; Williams et al., 2001; Rozanov et al., 2006; Austin et al., 2007; Gruzdev et al., 2009; Merkel et al., 2011] studies have demonstrated the influence of solar variability on stratospheric ozone. The main process responsible for the stratospheric ozone response to solar variability is the solar UV-driven photolysis of molecular oxygen (O_2) which is the source of O_3 in the stratosphere. The effect of solar variability on the mesosphere has attracted less attention. There have been quite a few modeling studies (*e.g.* Shimazaki and Laird [1970] ; Kenesha et al. [1979] ; Allen et al. [1984] ; Rodrigo et al. [1981, 1986]), but the number of observational studies is very limited [Aikin and Smith, 1986; Eckman, 1986; Keating et al., 1987; Hood et al., 1991]. One of the difficulties in detecting such a signal in the mesosphere is the considerable amplitude of the ozone diurnal variations [Huang et al., 2008; Dikty et al., 2010]. When a mesospheric ozone time series spans a range of local times varying from day to day [Smith et al., 2013], the short-term ozone variance can be vastly dominated by fluctuations associated with the sampling of the diurnal cycle. These fluctuations can be viewed as noise in the extraction of the solar signal and thus makes uncertain the estimation of the ozone response to short-term solar variability.

The most suited mesospheric ozone datasets for detection is likely to be provided by sun-synchronous satellites with measurements at nearly constant local times over the course of the mission. The SME (Solar Experimental Explorer) satellite, launched in a sun-synchronous orbit, provides one of those datasets at fixed local time [Barth et al., 1983]. To our best knowledge, it is the only observational dataset that has been used successfully in the unambiguous detection of a rotational solar signal in mesospheric ozone. Aikin and Smith [1986] were the first to report conclusive evidence for solar rotational periodicities in mesospheric ozone time series with a significant correlation between ozone and a solar UV indicator, the HI Lyman- α line. They analyzed 244 days of SME ozone data, starting in January 1982, between 50-87 km and found a significant correlation near 50 km and between 65 and 70 km. A correlation was also detected at higher altitudes between 80 and 85 km when only the first 110 days of data were considered. Keating et al. [1987] analysed almost 2 years of SME data averaged between 40°N and 40°S and detected a maximum in ozone response near 0.05 mbar (70 km) with a peak ozone sensitivity value of -0.14 (*i.e.* -0.14% ozone decrease for a 1% increase in solar HI Lyman- α line intensity). This strong negative correlation was not found in the Aikin and Smith [1986] study. Finally, Hood et al. [1991] extended the analysis to about four years of SME data. Their results are generally in good agreement with Keating et al. [1987] earlier results with a peak negative ozone response near 70 km (corresponding to an ozone sensitivity of -0.16 versus HI Lyman- α line and

-0.65 versus the solar 205 nm flux). They also detected a secondary maximum in the OH response near 80 km. Interestingly, the altitude of this secondary maximum appears to correspond exactly to the altitude of the maximum in the mesospheric OH response to solar rotational variations [Shapiro *et al.*, 2012]. Shapiro *et al.* analysed mesospheric OH and H₂O data from Microwave Limb Sounder (MLS/Aura) on solar rotational timescales for two time periods corresponding to different phases of the 11-yr cycle : from December 2004 to December 2005 (the period of "high activity" with a pronounced 27-day solar cycle) and from August 2008 to August 2009 ("solar minimum" period with a vague 27-day solar cycle). They demonstrated, for the first time, that mesospheric OH concentrations correlated well with the HI Lyman- α line intensity (correlation coefficients up to 0.79) at zero time-lag. The OH response maximum was found at 80 km. At the same time, H₂O anti-correlated (correlation coefficients up to -0.74) with the HI Lyman- α line intensity at non-zero time-lag. The results confirm that mesospheric OH and H₂O abundances are closely connected and that O₃ and solar irradiance are mostly anti-correlated in the mesosphere because of the HI Lyman- α line-driven photolysis of H₂O which is a source of hydrogen radicals, the predominant ozone-destroying species.

In a modelling study using the chemistry-climate model HAMMONIA, Gruzdev *et al.* [2009] compiled all these SME-derived results. They estimated ozone sensitivities as regression coefficients corresponding to maximum correlation (for varying time lags) instead of correlation at a null time lag. Model calculations were compared to observational results taking into account the strong diurnal ozone cycle. SME data are day-time measurements and are available up to 87-88 km. Daytime (local midday) ozone sensitivities and phases derived from the model calculations were found to be in reasonably good agreement with the range of SME-derived values except for a maximum around 75 km where SME daytime observations indicated a much smaller sensitivity than the model. Model calculations also suggested that the ozone response to solar rotational variability was very strong in the upper mesosphere, especially for night-time ozone. For instance, there was a very sharp increase in model-calculated (local midnight) ozone sensitivity above 75 km with sensitivity values exceeding 1.5 at night (versus the 205 nm solar flux). In contrast, model-calculated day-time sensitivity was peaking just below 80 km and falling back to half of the night-time values in the upper mesosphere. Nonetheless, SME data did not show a sharp increase in day-time ozone sensitivity in the upper mesosphere.

The purpose of the present study is to detect and characterize the response of mesospheric ozone observed by GOMOS/ENVISAT to solar rotational variations between 2003 and 2005, during the descending phase of solar cycle 23. We focus the analysis on the night-time response and in the tropics because it is a region where the ozone response to solar variability is largely driven by photochemical processes, especially on solar rotational timescales. GOMOS covers the entire tropical mesosphere, up to 100 km, and provides measurements at nearly constant local times. These measurements characteristics allow us to test the model capability with respect to the mesospheric night-time ozone chemistry, including the model prediction of a strong night-time ozone sensitivity in the upper mesosphere.

6.2 Ozone and solar data

The ozone data used here are derived from the measurements made by the GOMOS instrument onboard the European satellite ENVISAT. *Bertaux et al.* [2010] give an overview of the GOMOS instrument, operation, data products and scientific results. The measurement techniques is based on the stellar occultation by the Earth’s atmosphere and the technique for determining ozone profiles from GOMOS observations is described by *Kyrölä et al.* [2006, 2010a,b] and *Sofieva et al.* [2010b]. We use the Level 2 data from GOMOS products and follow recommendations from *Kyrölä et al.* [2006] in eliminating profiles from stars too cooler ($T < 7000$ K) and with a magnitude larger than 1.9. GOMOS ozone profiles cover all latitudes and seasons ; the local time of the measurements is around 22-23h at low latitudes and has a temporal extended range in high latitudes. The profiles extend up to 150 km and have a vertical resolution in the mesosphere of 3 km. In this study, we focus on low latitudes ; ozone profiles are zonally averaged on a tropical band from 20°N to 20°S of latitude for a given day. GOMOS suffered a serious electronic malfunction of the mirror steering mechanism from January 2005 to August 2005 leading to a shut down for several months. Others periods with large gaps occur again (especially in 2009) reducing the number of profiles available. In order to limit the impact of these large periods without data, we only consider the period between 27/09/2003 – 24/01/2005 (486 days) which is characterized by a weak percentage (5%) of missing data. Indeed, if we considered the whole period (2003-2010) about 35% of ozone data are missing in the altitude range of interest. We can also notice that above 105 km the percentage of missing data increases dramatically to reach about 65% over the whole period.

The HI Lyman- α line is chosen as the solar proxy because it determines the rate of H₂O photolysis and hence the production of hydrogen ozone-destroying radicals, a key term in the mesospheric ozone chemical balance. HI Lyman- α line is also a general indicator of solar variability. The daily HI Lyman- α line time series is taken from the solar spectral irradiance (SSI) reconstruction model MGNM-SSI [*Thuillier et al.*, 2012]. It has been compared to the more commonly used NRL-SSI model. SSI and its variability reconstructed by MGNM and NRL were found to be consistent at the 5% level [*Thuillier et al.*, 2014].

6.3 Results

Figure 40.a presents the evolution of the GOMOS mesospheric ozone profile (between 50 and 105 km) over the 486-day period. This period falls within the descending of the 11-year solar cycle 23. Ozone mixing ratio peaks around 95 km and is minimum at 80 km with a very clear Semi Annual Oscillation (SAO) signal in the ozone maximum. Modelling results have shown that this tertiary ozone maximum is caused by low concentrations of hydrogen radicals and hence the associated low in ozone losses through the hydrogen catalytic cycles [*Marsh et al.*, 2001; *Sofieva et al.*, 2010a]. Figure 40.b shows the HI Lyman- α line irradiance time series over the same period. Solar rotational fluctuations

can be clearly seen in the HI Lyman- α line time series. They represent about 10-15% variations with respect to the mean HI Lyman- α line irradiance.

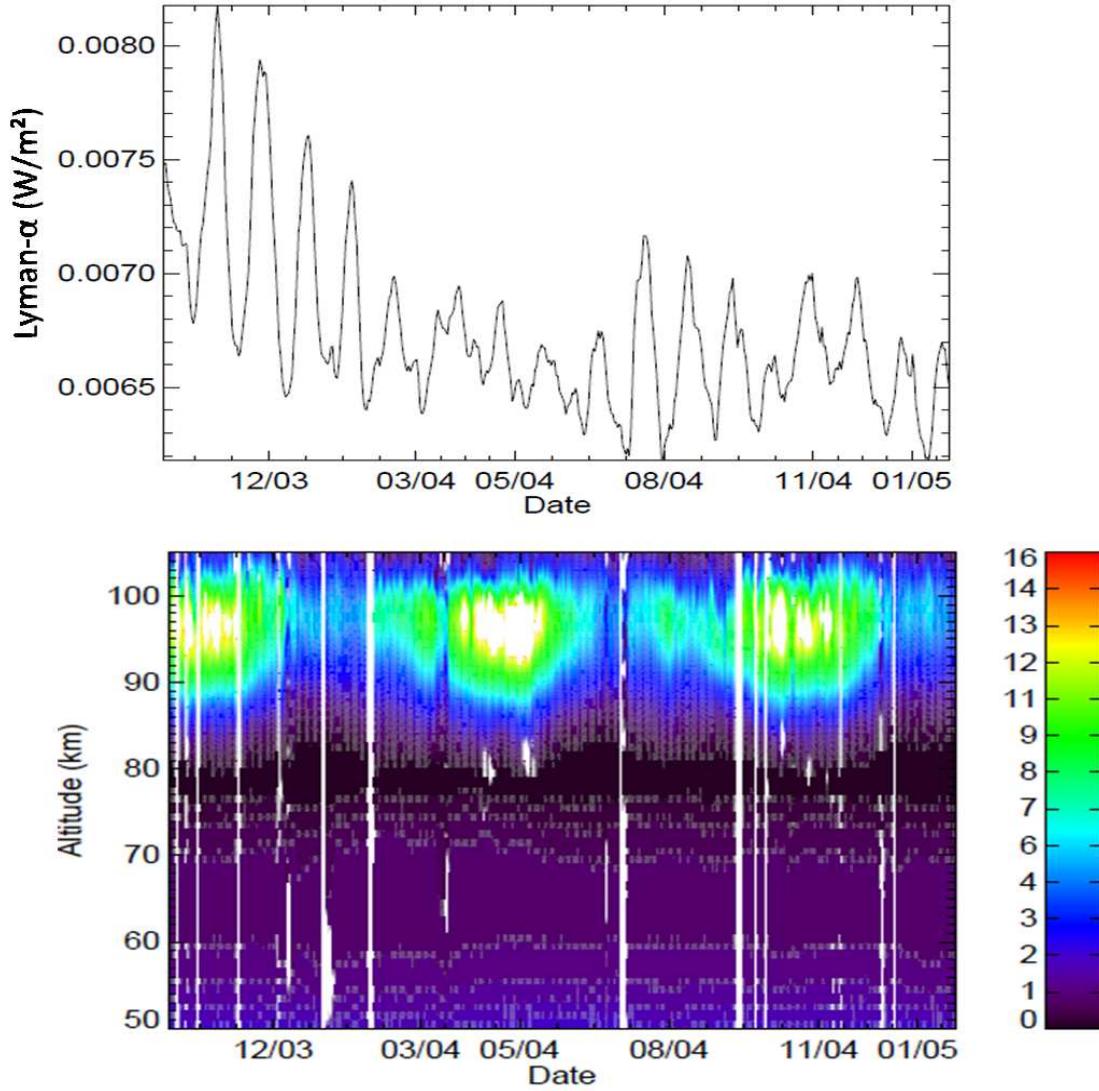


Fig. 40: Temporal evolution of (top) daily HI Lyman- α line from MGNM-SSI model and of (bottom) daily tropical mesospheric ozone (50-105 km) measured by GOMOS/ENVISAT over the descending phase of solar cycles 23 (09/2003-01/2005).

We first analyse independently the HI Lyman- α line irradiance and ozone time series. Figure 41 represents the power spectrum (periodogram) and the continuous wavelet transform (CWT, Morlet) (*i.e.* a time-varying spectral analysis) of the HI Lyman- α line time series. There is a strong and broad peak centred at 27 days (see Figure 41.a) in the power spectrum. The amplitude of the peak is about

2 orders of magnitude greater than the other peaks present at different periodicities. The CWT plot also shows a strong signal around 27-day but it varies substantially in time (see Figure 41.b). The rotational signal is the strongest during the first 3 months of the considered period.

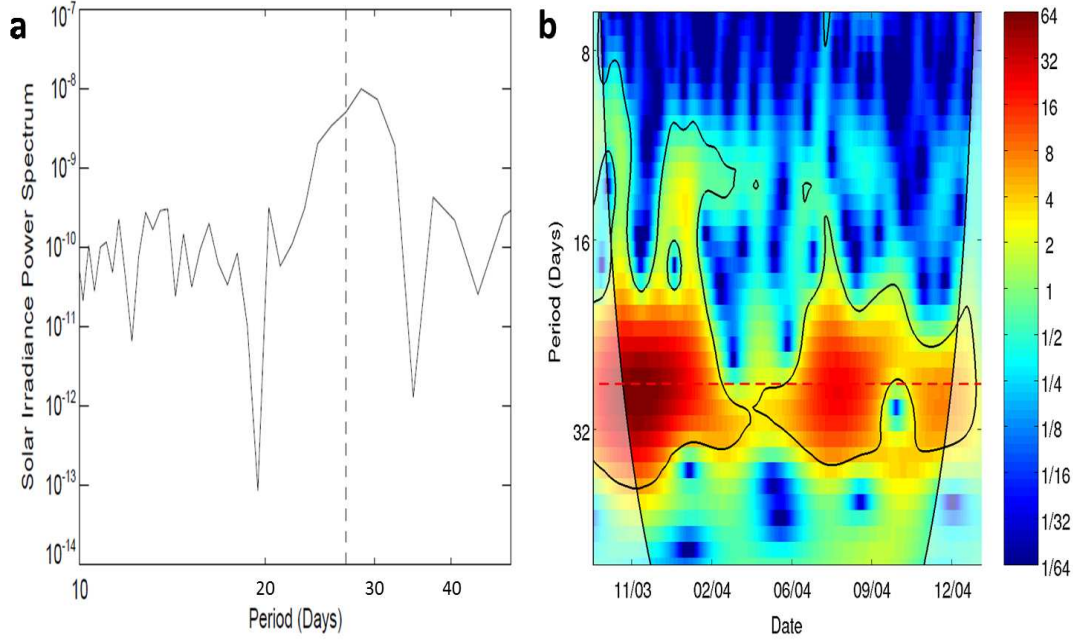


Fig. 41: (a) HI Lyman- α line (periodogram) power spectral density (from MGNM-SSI model). The vertical dotted line indicates the 27-day period. (b) Time-resolved power spectra densities (or scalogram) of Lyman- α estimated from continuous wavelet transform (CWT). The red horizontal dotted line indicates the 27-day period, the solid contour lines represent the 95% confidence level.

As mentioned above, there are gaps in the ozone data time series. As a result, to carry out a spectral analysis of the ozone time series, we calculate Lomb-Scargle periodograms instead of FFT power spectra. The Lomb-Scargle approach is more suited to time series with gaps (for more information see *Lomb* [1976] and *Scargle* [1982]). Figure 42 shows Lomb-Scargle periodograms computed for 12 different altitude levels in the 70-105 km altitude range. The red vertical dotted lines represent the 27-day periodicity. A distinctive peak at about 27 days appears in the 77-83 km altitude range. Above and below this altitude range, there is no evidence of a solar rotational signal in the ozone time series.

We then carry out a cross-spectral analysis between the Lyman- α and ozone time series. Figure 43 presents the mean squared coherence as a function of the period (from 10 to 40 days) and altitude (from 70 to 105 km). Signals that are statistically significant at the 90% confidence level are found between 20 and 35 days in the 50-60 km altitude range and around 77 km and 87 km.

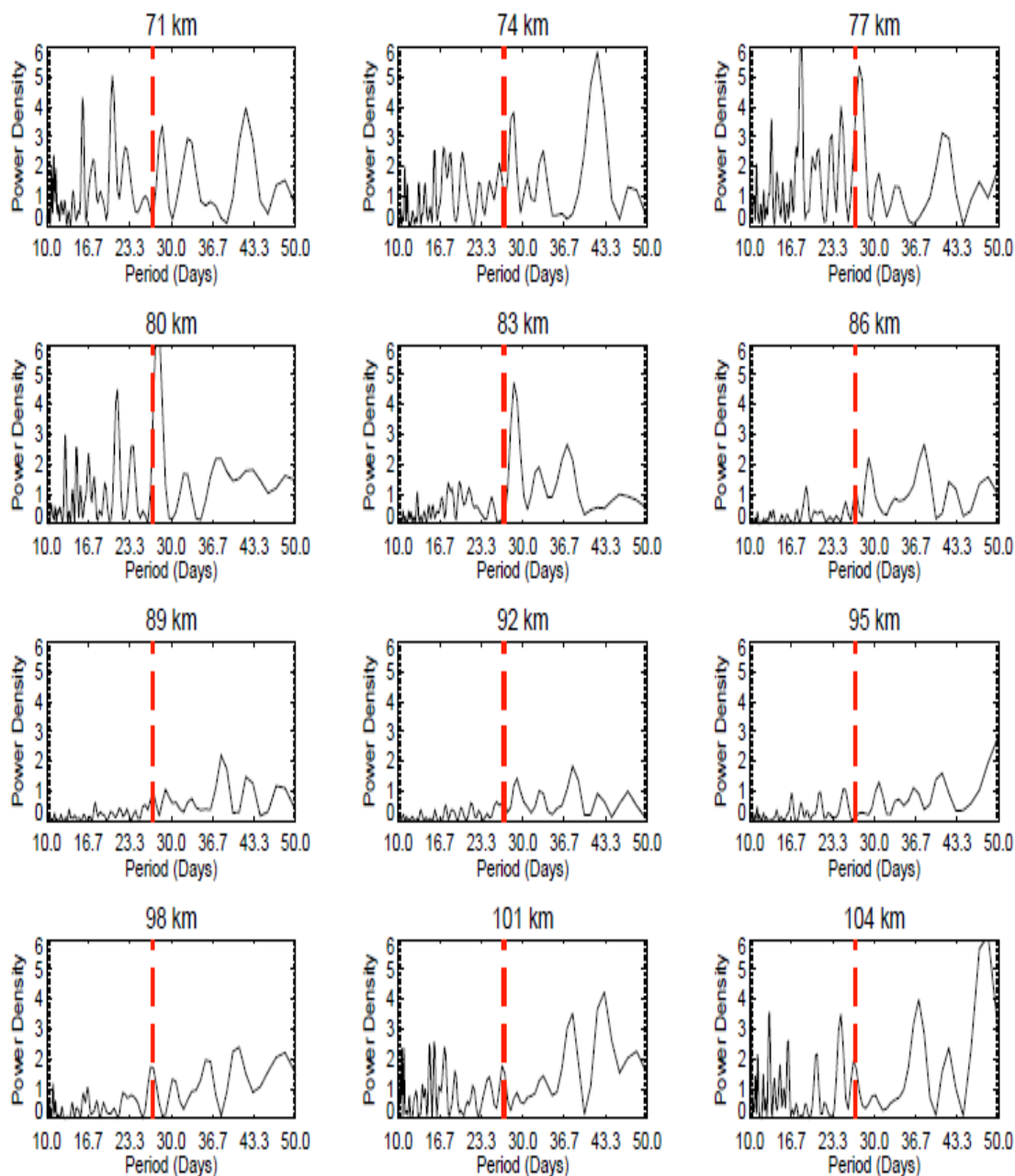


Fig. 42: Ozone Lomb-Scargle periodograms from GOMOS/ENVISAT at 12 different altitude levels. The red vertical dotted lines indicate the 27-day period.

At longer periods (in the 35-50 days range), some peaks of coherence are visible but they are not due to solar origin but rather to dynamical origin.

In order to focus on the spectral domain of interest, where the correlation between solar activity and ozone is usually found to be the highest (typically around 27 days), most previous studies considered data filtered in the frequency domain. Therefore, we apply a digital filter commonly used previously [Hood, 1986; Chandra, 1986; Keating *et al.*, 1987; Hood and Zhou, 1998; Zhou *et al.*, 2000]. The filtering procedure consists of smoothing data with a 7-day running mean which removes very short-term fluctuations. Linear trend and mean value are also removed from these smoothed time series. Finally, a 35-day running mean is subtracted from the data, removing long-term fluctuations (*e.g.* seasonal, semi-annual, annual variations). The overall procedure is equivalent to a band-pass filter in the frequency domain. Others band-pass filters (Butterworth or Bessel) could have been used but, in order to make our results as comparable as possible, we use the same digital filter as in previous studies.

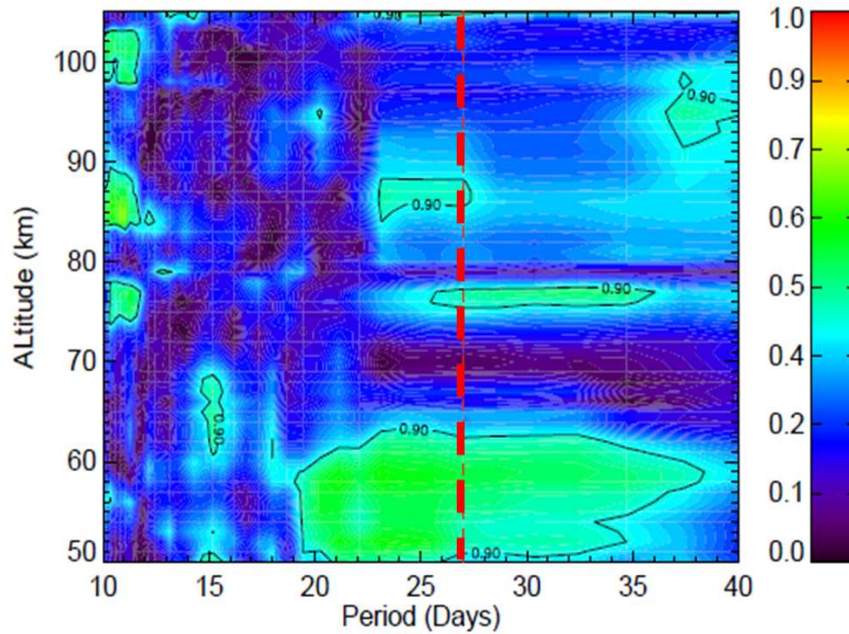


Fig. 43: Mean squared coherence between ozone and HI Lyman- α line as a function of period and altitude. Contour lines represent the 90% confidence level. The red vertical dotted line indicates the 27-day period.

Figure 44 shows the digitally filtered time series of HI Lyman- α line irradiance and mesospheric ozone at 80 km. Generally, ozone and HI Lyman- α line seems to be anti-correlated most of the time, particularly during 2004. Nonetheless, the correlation seems to be inexistent or even positive during short time intervals.

Figure 45.a shows the cross-correlation coefficient between ozone and HI Lyman- α line as function

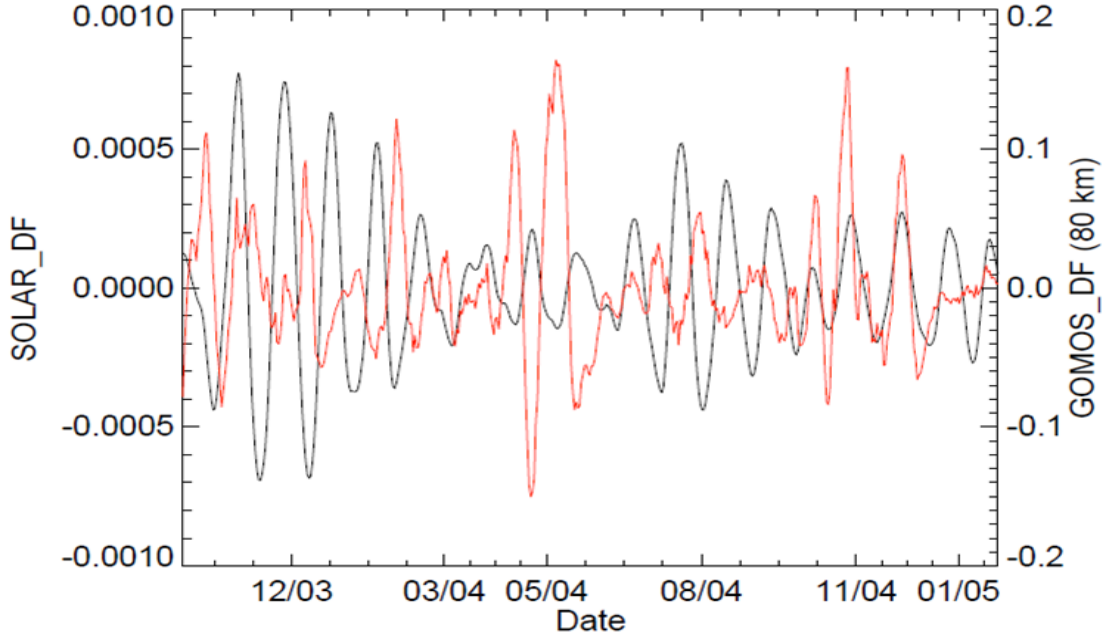


Fig. 44: Temporal evolution evolution of (black) HI Lyman- α line and (red) ozone at 80 km. The two time series had been digitally filtered between 09/2003 and 01/2005.

of altitude and time lag for the filtered data; the corresponding ozone sensitivity calculated at zero time lags from a regression to the Lyman- α is plotted as a function of altitude in Figure 45.b. The correlation coefficient (at null time lag) changes sign above 79 km with positive values below and negative values above (see Figure 45.a). The negative correlation in the upper mesosphere has certainly for origin the positive correlation between by the concentration of OH, the main ozone-destroying radical in this region, and the HI Lyman- α line intensity [Shapiro *et al.*, 2012]. The ozone sensitivity at null time lags peaks at 77 km with a value of 0.7 and at about 82 km with a value exceeding -1 (Figure 45.b).

For the sake of comparison with Gruzdev *et al.* [2009] model results, time lag and sensitivity are now calculated at the maximum correlation (see Figure 45.a). Instead of estimating the errors bars on time lag and sensitivity from the standard errors on the regression coefficients, we use a sort of bootstrap approach. Sensitivity profiles are calculated over five 1-year intervals generated by shifting a 1-year sliding window by one month over the 486-day period. Figure 46.a shows the mean of the 5 time lag vertical profiles and the 2-sigma deviations. The field can be decomposed in two altitude regions : above 80 km, the mean time lag oscillates between about 15 and 20 days and below this altitude it is close to 0. Between these 2 regions, around 80 km, there is a very sharp change of the time lag. The overall shape of the mean time lag profile looks similar to the mesospheric time lag profile (also calculated at maximum correlation) derived for model-calculated night-time data (see Figure 39 from Gruzdev *et al.* [2009]). The most outstanding discrepancy between GOMOS and model results is the

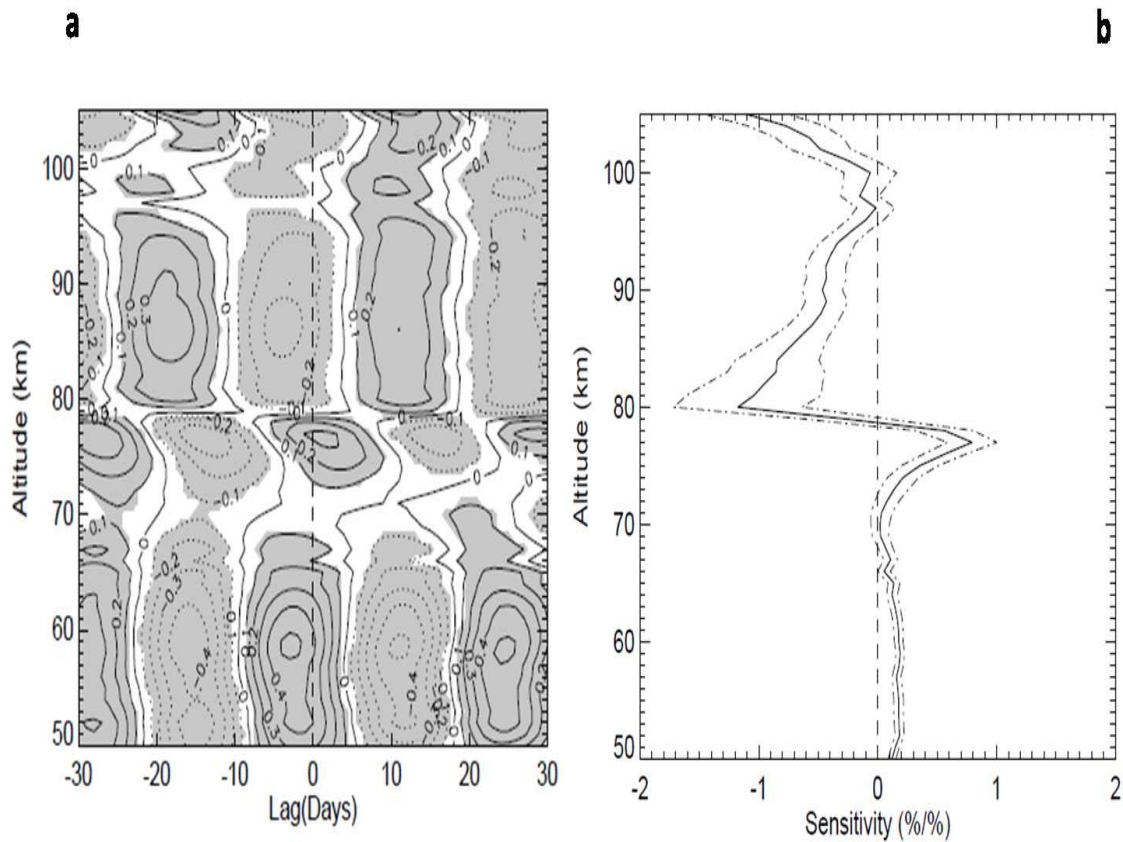


Fig. 45: (a) Cross-correlation between ozone and HI Lyman- α line as a function of time lag (days) and altitude (km). The shaded areas in (a) represent areas with a 95% confidence level. (b) Ozone sensitivity to HI Lyman- α line (% change in ozone for 1% change in HI Lyman- α) line at zero time lag as a function of altitude (km). The dash-dotted lines represent the 2- σ error. The ozone and HI Lyman- α line time series had been digitally filtered.

altitude of the very sharp transition of the time lag at maximum correlation. It takes place around 70 km in *Gruzdev et al.* [2009] whereas it is about 80 km in the GOMOS-based analysis. Recall that 80 km corresponds the minimum in the mesospheric ozone profile (see Figure 40.a) with mixing ratios of less than 0.5 ppmv. In contrast, ozone mixing ratios exceed 12 ppmv at the maximum of around 95 km. As a result, GOMOS measurements relative errors peak at 80 km and so the regression results in this altitude region are less reliable. There is another minor difference between the GOMOS and HAMMONIA results. The upper mesospheric time lag oscillates between 15 and 20 days in the GOMOS data whereas it is more or less constant around 15 days in the model calculations. Figure 46.b presents the mean ozone sensitivity profile at maximum correlation and the $2\text{-}\sigma$ deviations that can be compared to the night-time sensitivity profile derived from HAMMONIA model calculations (see Figure 38 from *Gruzdev et al.* [2009]). There is a generally good agreement between GOMOS-derived and model-calculated sensitivity profiles. The altitudes of maximum and minimum differ slightly. The sensitivity minimum is at about 72-73 km in the present study whereas it is at about 74 km in the model. The maximum is at about 81-82 km in the GOMOS data whereas it is at about 83 km in the model. Our results confirm the *Gruzdev et al.* [2009] model finding that the ozone sensitivity to the solar variability peaks in the upper mesosphere. The most pronounced difference is the amplitude of the maximum in the upper mesosphere. It exceeds 4 in our GOMOS study instead of 1.7 in the HAMMONIA model. This discrepancy does not mean that there is a deficiency in the model because the $2\text{-}\sigma$ error bars on GOMOS-derived sensitivity are large around this altitude and the time period considered here is relatively short.

6.4 Summary and concluding remarks

We present an observational analysis of the response of mesospheric tropical ozone to the solar rotational cycle whose main periodicity is 27 days. The number of observational studies on the detection of a solar rotational signal in mesospheric ozone is limited and all the successful detections of such a signal have been obtained using only one set of observations, SME day-time ozone measurements that do not cover the upper part of the tropical mesosphere. We consider here the GOMOS night-time ozone measurements that covers the entire mesosphere. It is of interest to consider the night-time ozone sensitivity because chemistry-climate model calculations suggested that the strongest response to solar rotational variability occurs during the night time in the upper mesosphere [*Gruzdev et al.*, 2009]. The GOMOS measurements characteristics are well suited to test these model predictions. The HI Lyman- α line is chosen as the solar proxy because it determines the rate of H_2O photolysis and hence the production of hydrogen ozone-destroying radicals, a key term in the mesospheric ozone chemical balance. The period (486 days) of GOMOS measurements considered here falls within the descending phase of the 11-year solar cycle 23.

There is a very strong and broad peak centred at 27 days in the HI Lyman- α line power spectrum.

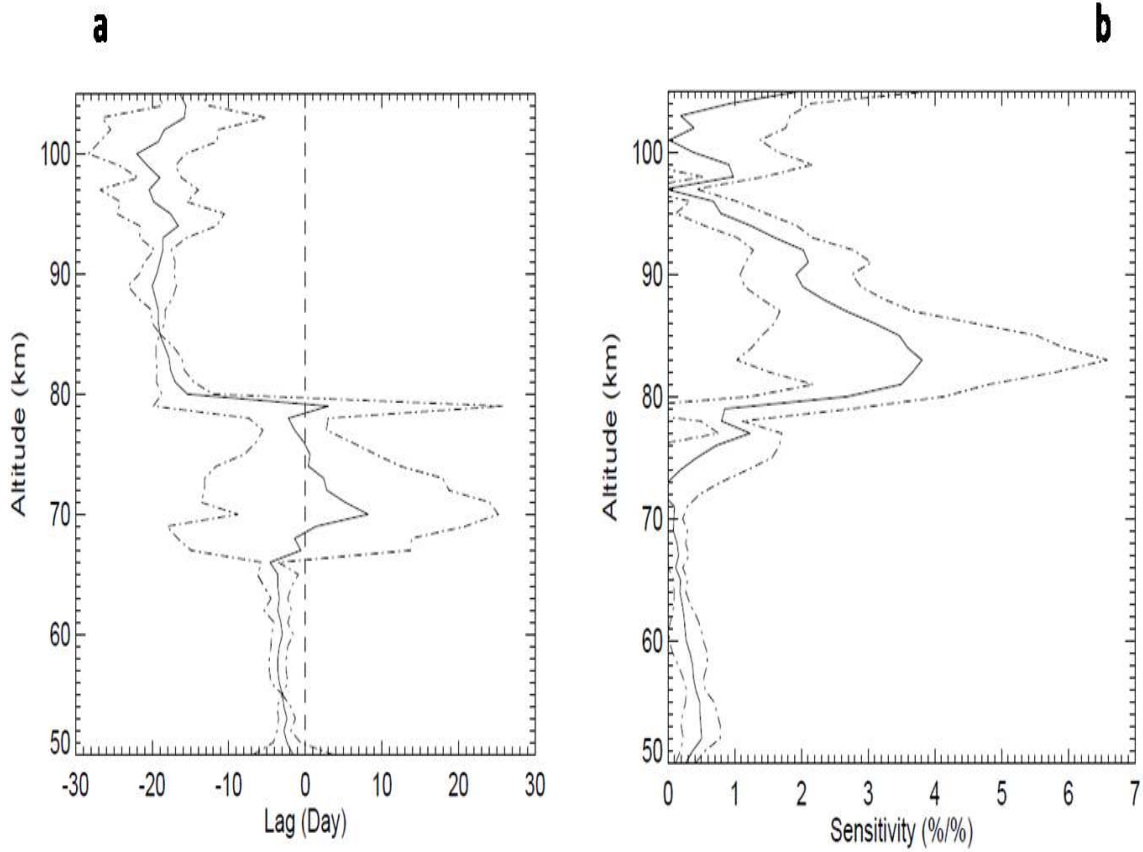


Fig. 46: (a) Phase lag profile of the maximum correlation between ozone and HI Lyman- α line as a function of time lag (days) and altitude (km). (b) Mean ozone sensitivity profile to HI Lyman- α line (% change in ozone for 1% change in HI Lyman- α line) at maximum correlation. The mean sensitivity profile is calculated by averaging 5 sensitivity profiles (calculated over 5 1-year intervals obtained by shifting a 1-year sliding window by one month over the study period). The dash-dotted lines represent the $2\text{-}\sigma$ deviations.

A spectra analysis of the GOMOS ozone time series also reveals the presence of a distinctive peak at about 27 days in the 77-83 km altitude range. It is the first observational evidence of a solar rotational signal in night-time ozone data. As done in previous studies, in order to focus on the spectral domain of interest, the solar and ozone time series are digitally filtered removing very short-term fluctuations and long-term fluctuations (*e.g.* seasonal, semi-annual, annual variations). The correlation at null time lag between the filtered ozone and HI Lyman- α line data changes sign above 79 km with positive values below and negative values above. For the sake of comparison with *Gruzdev et al.* [2009] chemistry-climate model results, time lag and sensitivity are calculated at the maximum correlation. Above 80 km, the mean time lag oscillates between about 15 and 20 days and below this altitude it is close to 0. Between these 2 regions, there is a very sharp change of the time lag. This overall shape of the time lag profile looks similar to the mesospheric time lag profile (also calculated at maximum correlation) derived from model-calculated night-time data (see Figure 39 of *Gruzdev et al.* [2009]). The most outstanding discrepancy between GOMOS and model results is the altitude of the very sharp transition of the time lag at maximum correlation. It takes place around 70 km in *Gruzdev et al.* [2009] whereas it is about 80 km in the GOMOS-based analysis. However, GOMOS measurements relative errors are very large in this altitude range and so results are less reliable. There is another minor difference between the GOMOS and HAMMONIA results. The upper mesospheric time lag oscillates between 15 and 20 days in the GOMOS data whereas it is more or less constant around 15 days in the model calculations. Regarding the ozone sensitivity profile, there is a generally good agreement between our results and model calculations. The altitudes of maximum (72 to 74 km) and minimum sensitivity (81 to 83 km) are very similar. The results confirm the *Gruzdev et al.* [2009] model finding that the ozone sensitivity to the solar rotational cycle peaks in the upper mesosphere. The most pronounced difference is the amplitude of the maximum in the upper mesosphere. It exceeds 4 in the GOMOS study instead of 1.7 in the HAMMONIA model. Note however that the $2\text{-}\sigma$ deviations are the largest (between 1 and 6.5%/%) at this altitude.

Conclusions

Comme l'indique de nombreux jeux de données, une grande partie de la variabilité naturelle de l'atmosphère et du climat est liée à la variabilité solaire. Aujourd'hui, cette contribution du forçage solaire à la variabilité climatique reste encore un sujet de discussions assez vives. Pour pouvoir décomposer l'influence de différents forçages (naturels et anthropiques) sur l'évolution passée et future de l'atmosphère, il est nécessaire de bien comprendre et de bien caractériser les mécanismes d'action de la variabilité solaire. L'impact du forçage solaire sur le climat de surface ne se résume pas à des variations du bilan d'énergie en surface. Les mécanismes sont nettement plus compliqués. L'un des mécanismes importants est le forçage solaire sur l'atmosphère moyenne (stratosphère, mésosphère), notamment par l'intermédiaire de variations d'ozone. En effet, l'irradiance UV dans le domaine spectral crucial pour la production photochimique d'ozone (autour de 200 nm) varie de 6-8% alors que l'énergie solaire totale varie seulement de 0.1%. Les perturbations induites par ces variations se propagent à la surface via des effets radiatifs et dynamiques.

Il est déjà bien établi que la variabilité solaire dans l'UV impacte l'ozone dans la moyenne atmosphère à travers des processus photochimiques. Néanmoins, les estimations de la réponse de l'ozone à la variabilité solaire calculées à partir d'observations varient fortement d'une étude à l'autre selon la période considérée, l'origine des données ou la méthodologie d'analyse. L'objet de cette thèse est de revisiter cette question en caractérisant plus finement les variations temporelles de la réponse et de déterminer les conditions nécessaires pour une estimation robuste de cette réponse. La plupart des études précédentes ont porté sur la réponse de l'ozone à l'échelle du cycle solaire à 11 ans. Cependant, les contraintes liées à la disponibilité de longues séries d'observation d'ozone ainsi que celles associées à la robustesse statistique des résultats favorisent l'analyse de la variabilité de l'ozone liée au cycle rotationnel à celle liée au cycle à 11 ans, d'autant que les processus photochimiques restent les mêmes. En effet, les séries d'observations couvrent environ 130 fois plus de cycles rotationnels que de cycles solaires à 11 ans. Pour ces raisons, la thèse se focalise sur la réponse de l'ozone tropicale dans la moyenne atmosphère aux périodicités de la rotation solaire dont la composante spectrale est le 27 jours. L'intérêt pour les tropiques se justifie par le fait que la réponse de l'ozone est dominée par la photochimie alors qu'aux moyennes et hautes latitudes, la réponse est plus difficile à interpréter en

raison de l'influence supplémentaire des rétroactions dynamiques.

Dans cette thèse, la relation variabilité solaire et ozone est étudiée non seulement à partir de plusieurs jeux de données d'observations satellites mais également de résultats du modèle de chimie-climat LMDz-Reprobus. Les modèles de chimie-climat sont utilisés pour étudier les mécanismes d'action de la variabilité solaire sur le climat de surface, en particulier via les perturbations de la moyenne atmosphère. Il est donc important d'évaluer dans quelle mesure ils sont capables de reproduire la perturbation d'ozone qui détermine largement la réponse de la moyenne atmosphère.

L'irradiance solaire à 205 nm (F205) est choisie comme indicateur quantitatif du forçage solaire sur l'ozone car elle est une variable clé dans la photodissociation de l'oxygène moléculaire, source de l'ozone dans la moyenne atmosphère. Son évolution journalière est tirée de modèles de reconstruction solaire communément utilisés. Les observations d'ozone stratosphérique sont issues des instruments MLS à bord d'UARS (phase descendante du cycle 22) et à bord d'Aura (phase descendante du cycle 23). Les observations d'ozone mésosphérique sont issues de l'instrument GOMOS à bord d'ENVISAT (phase descendante du cycle 23). Les simulations numériques sont réalisées à l'aide du modèle LMDz-Reprobus dans sa configuration guidée (CTM) pendant les périodes d'observations MLS et dans sa configuration chimie-climat (CCM) pour les simulations d'ensemble couvrant 17 ans, de 1991 à 2007. La variabilité solaire est prise en compte dans ces simulations à l'aide des coefficients de photodissociation calculés à partir des spectres solaires journaliers reconstruits (voir détails dans le chapitre 2). Le signal solaire dans les séries temporelles d'ozone est extrait et caractérisé à l'aide d'une large gamme d'outils d'analyse (analyse FFT, périodogramme de Lomb-Scargle, analyse en ondelettes, cohérence, corrélation linéaire, régression) (voir détails dans le chapitre 3).

Les séries temporelles solaires et d'observations d'ozone stratosphérique sont d'abord analysées de façon indépendante au cours de deux périodes d'observations de l'instrument MLS (1991-1994 et 2004-2007). Les spectres de puissance des deux séries F205 de trois ans indiquent un large pic centré autour de 27 jours, de plus grande amplitude lors de la période 1991-1994 que de la période 2004-2007. Les analyses en ondelettes montrent une très forte variabilité temporelle de la composante rotationnelle de F205 avec un maximum de variance lors de la première année de chaque période. Contrairement au flux solaire, la signature rotationnelle n'est pas clairement identifiable dans les séries d'ozone quelle que soit la période considérée. Les résultats de la cohérence entre F205 et l'ozone montrent un fort signal statistiquement significatif entre 20 et 28 jours et entre environ 10 et 1 hPa lors de la période 1991-1994 avec un maximum de 0.7 autour de 6-7 hPa. La cohérence est nettement plus faible pour la période 2004-2007. Afin de se focaliser sur le domaine spectral d'intérêt (périodicités rotationnelles), un filtre digital est appliqué à toutes les séries. La sensibilité de l'ozone (*i.e.* pourcentage de variation d'ozone pour une variation de 1% de F205) est calculée à partir de ces séries filtrées. Pour la première période (1991-1994), la sensibilité est maximale (0.4) autour de 4-5 hPa (environ 35 km).

Pour la deuxième période (2004-2007), la sensibilité reste assez faible tout le long du profil sans maximum marqué. En général, la corrélation entre la variabilité rotationnelle solaire et l’ozone durant la deuxième période est beaucoup plus ténue que durant la première période. Afin d’explorer les variations interannuelles de la sensibilité, l’analyse croisée est répétée sur des intervalles d’un an (comportant en moyenne une douzaine de cycles rotationnels). Pour les deux périodes, la sensibilité varie considérablement d’une année à l’autre. De manière inattendue, la sensibilité de l’ozone est minimum lorsque la variance de F205, et donc le forçage solaire, est maximum et inversement. N’ayant considéré que trois années de données, il n’est pas possible de conclure à un quelconque effet systématique. Ces résultats laissent plutôt supposer que d’autres sources de variabilité influencent l’ozone aux mêmes échelles de temps et peuvent ainsi masquer le signal solaire, du moins sur un intervalle d’un an, même pendant les périodes de forte activité solaire (voir chapitre 4).

Un autre objectif de cette thèse est d’évaluer la capacité d’un modèle de chimie-climat (LMDz-Reprobus) à reproduire la réponse de l’ozone stratosphérique au cycle solaire rotationnel. Pour cela, plusieurs simulations du modèle dans sa configuration guidée (CTM) sont effectuées couvrant les deux fenêtres d’observations de l’instrument MLS (1991-1994 et 2004-2007). En outre, des simulations d’ensemble de 1991 à 2007 du modèle dans sa configuration chimie-climat (CCM) sont réalisées afin d’analyser la variabilité temporelle de la réponse de l’ozone à la variabilité solaire. L’analyse des diverses simulations est réalisée à partir de la même méthodologie que celle développée pour les observations (chapitre 4) afin de faciliter les comparaisons. En accord avec les observations (cf chapitre 4), la périodicité à 27 jours n’est pas clairement identifiable dans les périodogrammes des séries temporelles d’ozone issues du modèle en configuration guidée, quelle que soit la période de trois ans considérée. En revanche, la moyenne des périodogrammes correspondants à chaque simulation d’ensemble (CCM) présente un signal à 27 jours, néanmoins accompagné d’une large dispersion. Cela confirme que le signal rotationnel contenu dans les séries d’ozone de trois ans peut être masqué par d’autres sources de variabilité (probablement d’origine dynamique) certaines années. L’analyse de la cohérence entre les données brutes d’ozone et F205 sur les deux périodes de trois ans montre que le modèle guidé est capable de reproduire l’amplitude et l’extension verticale du signal rotationnel ainsi que les grandes différences observées entre les deux périodes d’étude. La forme et l’amplitude du profil de sensibilité de l’ozone à F205 sont également bien reproduites par le modèle guidé ainsi que les grandes différences observées entre les deux périodes d’analyse. En revanche, la moyenne des cinq profils de sensibilité des simulations d’ensemble (CCM) ne montre pas de différence significative d’une période à l’autre et se caractérise par un maximum de 0.4-0.5 autour de 3 hPa. La dispersion autour de cette moyenne est très importante notamment aux altitudes du maximum de sensibilité, ce qui traduit la présence d’autres sources de variabilité. Afin d’explorer l’origine de cette dispersion, la réponse de l’ozone aux variations de F205 est étudiée à l’échelle de temps de l’année lors des deux périodes à partir des simulations du modèle guidé. Pour cela, les deux intervalles de trois ans sont divisés en trois intervalles d’un an. En accord avec les observations, l’amplitude et la structure verticale du profil de sensibilité varient considérablement d’une année à l’autre sans relation cohérente avec l’intensité du forçage solaire. L’origine

de la variabilité interannuelle peut ainsi être majoritairement attribuée à la variabilité dynamique contenue dans les données de température et de vents d'ERA-Interim utilisées pour forcer le modèle LMDz-Reprobus dans sa configuration guidée.

Un des autres objectifs de cette thèse est d'explorer la dépendance de la réponse de l'ozone aux variations solaires rotationnelles suivant les différentes phases du cycle solaire à 11 ans. En effet, la variance de F205 est beaucoup plus élevée pendant les maxima de cycle solaire à 11 ans que les minima et donc on peut s'attendre à ce que la réponse de l'ozone soit aussi plus forte. L'analyse est réalisée sur cinq intervalles de trois ans décrivant les phases montantes, descendantes et extrema d'un cycle solaire à 11 ans. Le profil moyen de sensibilité calculé à partir des simulations d'ensemble (CCM) varie assez peu suivant la phase du cycle solaire considérée. Cependant, la dispersion autour de la réponse moyenne de l'ozone présente une forte dépendance à la phase du cycle solaire. Une approche basée sur l'utilisation d'une fenêtre glissante (pas de 1 mois) de taille variable (3 ans et 1 an) permet d'accéder à l'évolution temporelle de la sensibilité moyenne et de sa dispersion. Cette analyse montre que la dispersion est anti-corrélée à la variance de F205 qui elle-même dépend de la phase du cycle solaire à 11 ans. Enfin, les profils moyens de sensibilité sont calculés à partir d'une fenêtre glissante de taille variable (1 an, 3 ans, 7 ans et 15 ans) sur toute la période 1991–2007. Les profils moyens de sensibilité présentent les mêmes caractéristiques (forme, amplitude) quelle que soit la taille de la fenêtre avec un maximum de 0.4 localisé à 3 hPa. En revanche, la dispersion diminue lorsque la taille de la fenêtre d'analyse augmente. Ainsi, l'extraction du signal solaire rotationnel dans les séries d'ozone est plus fiable avec une fenêtre d'analyse de 15 ans. L'estimation peut être considérée robuste pour une fenêtre de taille inférieure, au minimum 3 ans, si l'analyse est effectuée lors de la période de maxima du cycle à 11 ans (chapitre 5).

Le dernier objectif est la détection d'un signal solaire rotationnel dans l'ozone mésosphérique. Le nombre d'études indiquant l'existence d'un signal solaire dans l'ozone mésosphérique est très limité et ne couvrent pas l'ensemble de la mésosphère tropicale en altitude. Elles sont toutes basées sur l'analyse des données SME (Solar Mesospheric Explorer) qui sont des mesures de jour. Notre étude se focalise sur la détection d'un signal solaire rotationnel dans des données de nuit, les mesures par occultation stellaire GOMOS à bord du satellite ENVISAT. Ces données couvrent l'ensemble de la mésosphère. Il est intéressant de considérer la réponse de l'ozone de nuit. En effet, de récentes simulations d'un modèle de chimie-climat ont suggéré que le maximum de la réponse, situé dans la haute mésosphère, est maximum de nuit [Gruzdev *et al.*, 2009]. La Lyman- α est choisie comme proxy solaire car elle détermine le taux de photolyse de H_2O et donc la production de radicaux hydrogénés destructeurs d'ozone, le puit le plus important dans l'équilibre chimique de l'ozone mésosphérique. La période (486 jours) des mesures GOMOS considérée ici se déroule durant la phase descendante du cycle solaire à 11 ans numéro 23. Les séries temporelles d'ozone et de Lyman- α sont d'abord analysées séparément. Il y a un pic très fort et large centrée à 27 jours, l'harmonique principale du cycle solaire rotationnel, dans le spectre de puissance de la série temporelle de la Lyman- α . Une analyse des spectres de la

série temporelle d’ozone GOMOS révèle aussi la présence d’un pic caractéristique autour de 27 jours dans le domaine d’altitude 77 à 83 km. Ceci est la première indication claire d’un signal de rotation solaire dans les données d’ozone mésosphérique de nuit. Afin de se concentrer sur le domaine spectral d’intérêt, la série solaire et l’ozone sont filtrées numériquement pour éliminer les fluctuations haute fréquence (périodes de moins de 7 jours) et les fluctuations à long terme (*e.g.* variations saisonnières, semi-annuelles et annuelles). La corrélation (à décalage temporel nul) entre l’ozone et la Lyman- α pour les données filtrées change de signe vers 79 km. La corrélation est positive en dessous de 79 km mais positive au dessus. Pour pouvoir comparer avec les résultats du modèle de chimie-climat HAMMONIA [Gruzdev *et al.*, 2009], le décalage temporel et la sensibilité de l’ozone au cycle rotationnel sont calculés à corrélation maximale. Au-dessus de 80 km, le décalage temporel moyen oscille entre environ 15 et 20 jours et en dessous de cette altitude, il est proche de 0. Entre ces deux régions, il y a un changement très rapide du décalage temporel. La forme générale du profil de décalage temporel ressemble à celui (également calculés au maximum de corrélation) calculé à partir des données de nuit du modèle HAMMONIA (voir la Figure 15.a de Gruzdev *et al.* [2009]). L’écart le plus remarquable entre nos résultats et ceux du modèle est l’altitude de la transition du décalage temporel. Elle a lieu vers environ 70 km dans le modèle alors qu’elle a lieu à environ 80 km dans notre étude. Cependant, il faut souligner que les erreurs relatives sur les mesures GOMOS sont très grandes dans cette gamme d’altitude ce qui rend les résultats moins fiables. Généralement, il existe un bon accord entre le profil de sensibilité de l’ozone aux variations solaires rotationnelles (*i.e.* % de variation d’ozone pour 1% de variation de l’intensité de la Lyman- α) issu de nos résultats et ceux du modèle HAMMONIA (voir la Figure 14.a de Gruzdev *et al.* [2009]). Les altitudes de sensibilité maximale (72 à 74 km) et minimale (81-83 km) sont très similaires. Dans l’ensemble, nos résultats montrent que le maximum de sensibilité au cycle de rotation solaire se trouve dans la haute mésosphère et de nuit confirmant la prédiction du modèle HAMMONIA. La différence la plus prononcée entre les deux études concerne l’amplitude du maximum qui dépasse 4%/ dans notre étude au lieu de 1,7%/ dans le modèle HAMMONIA. Notons cependant que les erreurs de mesures et d’analyse sont grandes autour de cette altitude.

Les perspectives des travaux réalisées au cours de cette thèse concernent à la fois la détection de la réponse du forçage solaire dans les séries d’observations mais aussi la compréhension des différents mécanismes induits par ce forçage :

- L’analyse de la réponse de l’ozone aux variations rotationnelles du soleil effectuée à partir des observations MLS (chapitre 4) a été limitée à des périodes de trois années. Or, les résultats du chapitre 5 ont montré que la détection du signal était plus fiable lorsque la fenêtre d’analyse était plus grande. C’est pourquoi, les données récentes (MLS/Aura, SCIAMACHY/ENVISAT, GOMOS/ENVISAT) pourraient offrir l’opportunité d’étendre la période d’analyse sur une dizaine d’années et permettre de couvrir à la fois la phase descendante du cycle solaire 23 mais aussi le minimum entre les cycles 23 et 24 et la phase ascendante du cycle 24. L’obtention de futures données d’ozone sur la phase descendante du cycle 24 permettrait d’ajouter une série de données

à la comparaison déjà réalisée dans le chapitre 4 sur les phases descendantes des cycles 22 et 23. Cette analyse permettrait de quantifier la réponse de l’ozone stratosphérique aux variations rotationnelles du soleil sur trois cycles solaires à 11 ans (22, 23, 24) de caractéristiques très différentes.

- L’analyse de la variabilité temporelle de la sensibilité de l’ozone (chapitre 5) a clairement montré que la dispersion de la réponse était anti-corrélée à la variance du flux solaire rotationnel F205. On peut s’attendre à ce qu’elle soit également modulée par l’amplitude de variation du cycle solaire à 11 ans qui varie considérablement d’un cycle à l’autre. L’utilisation du modèle LMDz-Reprobus dans sa configuration chimie-climat permettrait de couvrir une plus longue période (de 50 à 100 ans) et d’analyser la variabilité inter-cycle de la réponse de l’ozone aux variations solaire rotationnelles.
- Tout au long de ces travaux, l’analyse de la réponse de l’ozone au forçage solaire à 27 jours a été limitée aux régions tropicales [20°N-20°S] où la réponse de l’ozone est dominée par la photochimie. L’analyse pourrait être étendue aux autres régions (moyennes et hautes latitudes) afin d’étudier les autres rétroactions d’origines dynamiques induites par ce forçage. En effet, les variations du forçage solaire à 27 jours n’impactent pas seulement l’ozone de la moyenne atmosphère. D’autres variables atmosphériques comme la température répondent à ce forçage soit de façon directe (radiative) ou soit par l’intermédiaire des variations d’ozone.
- Ces perturbations de la moyenne atmosphère peuvent se propager à la troposphère et même à la surface. Ces modulations conduisent à des modifications de processus pouvant induire des perturbations jusqu’à la surface. L’utilisation du modèle de chimie climat couplé à un modèle d’océan permettrait de quantifier l’impact climatique du forçage solaire à 27 jours. Enfin, l’étude de ces processus amplificateur de l’impact du forçage solaire à 27 jours sur le climat pourrait être étendue à l’impact du forçage à 11 ans.

Acronymes

ACRIM	Active Cavity Radiometer Irradiance Monitor
CCM	modèle de chimie-climat
CCMVal	Chemistry-Climate Model Validation Activity
CTM	modèle de chimie transport
CWT	Continuous Wavelet Transform
DU	Dobson Unit
ECMWF	European Center for Medium-Range Weather Forecasts
ENVISAT	ENVironment SATellite
FFT	Fast Fourier transform
GCM	modèle de circulation générale
GHG	GreenHouse Gas
GOMOS	Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars
HALOE	Halogen Occultation Experiment
HAMMONIA	HAMBurg Model of the Neutral and Ionized Atmosphere
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
IPSL	Institut Pierre Simon Laplace
IRMB	Institut Royal Meteorologique Belgique
JPL	Jet Propulsion Laboratory
MGNM	MaGnesium Neutron Monitor
MLS	Microwave Limb Sounder
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
NRL	Naval Research Laboratory

PMOD	Physikalisch-Meteorologisches Observatorium Davos
PSC	Polar Stratospheric Cloud
QBO	oscillation quasi-biennale
Reprobus	REactive Processes Ruling the Ozone Budget in the Stratosphere
SAO	Semi-Annual Oscillation
SCIAMACHY	SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CHartographY
SBUV	Solar Backscatter Ultra-Violet radiometer
SIM	Spectral Irradiance Monitor
SME	Solar Mesosphere Explorer
SOLSTICE	Solar Stellar Irradiance Comparison Experiment
SORCE	Solar Radiation and Climate Experiment
SPARC	Statospheric Processes And their role in Climate
SSI	Solar Spectral Irradiance
SUSIM	Solar Ultraviolet Spectral Irradiance Monitor
SW	shortwave
TFD	Transformée de Fourier Discrète
TSI	Total Solar Irradiance
TUV	Tropospheric and Ultraviolet Visible
UARS	Upper Atmosphere Research Satellite
UMLT	Upper-Mesosphere and Lower-Thermosphere
UV	Ultra-Violet
WMO	World Meteorological Organisation
WTC	Wavelet Transform Coherence

Références

- Aikin, A., and H. Smith, Mesospheric ozone changes associated with 27 day solar ultraviolet flux variations, *Geophysical research letters*, 13(5), 427–430, 1986.
- Allen, M., J. I. Lunine, and Y. L. Yung, The vertical distribution of ozone in the mesosphere and lower thermosphere, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 89(D3), 4841–4872, 1984.
- Austin, J., and N. Butchart, Coupled chemistry–climate model simulations for the period 1980 to 2020 : Ozone depletion and the start of ozone recovery, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 129(595), 3225–3249, 2003.
- Austin, J., L. Hood, and B. Soukharev, Solar cycle variations of stratospheric ozone and temperature in simulations of a coupled chemistry-climate model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(6), 1693–1706, 2007.
- Babcock, H. W., and H. D. Babcock, The sun’s magnetic field, 1952-1954, *Astrophysics Journal*, 121, 349, 1955.
- Bai, T., Hot spots for solar flares persisting for decades : longitude distributions of flares of cycles 19-23, *The Astrophysical Journal*, 585(2), 1114, 2003.
- Balachandran, N. K., D. Rind, P. Lonergan, and D. T. Shindell, Effects of solar cycle variability on the lower stratosphere and the troposphere, *Journal of Geophysical Research*, 104(D22), 27,321–27,339, doi :10.1029/1999JD900924, 1999.
- Barth, C. A., et al., Mesospheric ozone changes associated with 27-day solar ultraviolet variations, *Geophysical Research Letters*, 10, 1983.
- Bates, D. R., and M. Nicolet, The photochemistry of atmospheric water vapor, *Journal of Geophysical Research*, 55(3), 301–327, doi :10.1029/JZ055i003p00301, 1950.
- Bertaux, J.-L., et al., Global ozone monitoring by occultation of stars : an overview of gomos measurements on envisat, *Atmos. Chem. Phys*, 10(24), 12,091–12,148, 2010.

- Bossay, S., S. Bekki, M. Marchand, V. Poulain, and R. Toumi, Sensitivity of tropical stratospheric ozone to rotational uv variations during the declining phases of solar cycles 22 and 23, *Journal of Atmospheric Solar-Terrestrial Physics*, 2015.
- Brasseur, G., The response of the middle atmosphere to long-term and short-term solar variability : A two-dimensional model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 98(D12), 23,079–23,090, 1993.
- Brasseur, G., and S. Solomon, *Aeronomy of the middle atmosphere : chemistry and physics of the stratosphere and mesosphere*, vol. 32, Springer Science & Business Media, 2005.
- Brasseur, G., A. De Rudder, G. Keating, and M. Pitts, Response of middle atmosphere to short-term solar ultraviolet variations : 2. theory, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 92(D1), 903–914, 1987.
- CCMVal, S., Sparc report on the evaluation of chemistry–climate models. v. eyring, tg shepherd, and dw waugh, eds., sparc rep. 5, wcrp-132, *Tech. rep.*, WMO/TD-1526, 434 pp.[Available online at [www.sparc-climate.org/publications/sparc-reports/.](http://www.sparc-climate.org/publications/sparc-reports/)], 2010.
- Chandra, S., The solar and dynamically induced oscillations in the stratosphere, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 91(D2), 2719–2734, 1986.
- Chandra, S., and R. McPeters, The solar cycle variation of ozone in the stratosphere inferred from nimbus 7 and noaa 11 satellites, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 99(D10), 20,665–20,671, 1994a.
- Chandra, S., and R. McPeters, The solar cycle variation of ozone in the stratosphere inferred from nimbus 7 and noaa 11 satellites, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 99(D10), 20,665–20,671, 1994b.
- Chiodo, G., D. Marsh, R. Garcia-Herrera, N. Calvo, and J. García, On the detection of the solar signal in the tropical stratosphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(11), 5251–5269, 2014.
- Cooley, J. W., and J. W. Tukey, An algorithm for the machine calculation of complex fourier series, *Mathematics of computation*, 19(90), 297–301, 1965.
- Crutzen, P. J., The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 96, 320–325, doi :10.1002/qj.49709640815, 1970.
- DeLand, M. T., and R. P. Cebula, Solar uv variations during the decline of cycle 23, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 77, 225–234, 2012.
- Delmas, R., G. Mégie, and V. Peuch, *Physique et chimie de l’atmosphère*, Belin, 2005.
- Dewitte, S., D. Crommelynck, S. Mekaoui, and A. Joukoff, Measurement and uncertainty of the long-term total solar irradiance trend, *Solar Physics*, 224(1-2), 209–216, 2004.

- Dickinson, R. E., Solar variability and the lower atmosphere, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 56, 1240–1248, doi :[http ://dx.doi.org/10.1175/1520-0477\(1975\)056<1240 :SVATLA>2.0.CO ;2](http://dx.doi.org/10.1175/1520-0477(1975)056<1240 :SVATLA>2.0.CO ;2), 1975.
- Dikty, S., M. Weber, C. von Savigny, T. Sonkaew, A. Rozanov, and J. P. Burrows, Modulations of the 27 day solar rotation signal in stratospheric ozone from scanning imaging absorption spectrometer for atmospheric cartography (sciamachy)(2003–2008), *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 115(D1), 2010.
- Eckman, R. S., Response of ozone to short-term variations in the solar ultraviolet irradiance : 2. observations and interpretation, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 91(D6), 6705–6721, 1986.
- Efron, B., and R. J. Tibshirani, *An introduction to the bootstrap*, CRC press, 1994.
- Emanuel, K., A cumulus representation based on the episodic mixing model : the importance of mixing and microphysics in predicting humidity, *AMS Meteorol Monogr*, 24(46), 185–192, 1993.
- Emanuel, K. A., A scheme for representing cumulus convection in large-scale models, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 48(21), 2313–2329, 1991.
- Emmert, J., J. Lean, and J. Picone, Record-low thermospheric density during the 2008 solar minimum, *Geophysical Research Letters*, 37(12), 2010.
- Ermolli, I., et al., Recent variability of the solar spectral irradiance and its impact on climate modelling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(8), 3945–3977, 2013.
- Eyring, V., et al., Assessment of temperature, trace species, and ozone in chemistry-climate model simulations of the recent past, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 111(D22), 2006.
- Farge, M., Wavelet transforms and their applications to turbulence, *Annual Review of Fluid Mechanics*, 24(1), 395–458, 1992.
- Fioletov, V., Estimating the 27-day and 11-year solar cycle variations in tropical upper stratospheric ozone, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 114(D2), 2009.
- Fleming, E. L., S. Chandra, C. H. Jackman, D. B. Considine, and A. R. Douglass, The middle atmospheric response to short and long term solar uv variations : Analysis of observations and 2d model results, *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics*, 57(4), 333–365, 1995.
- Forster, P. M., et al., Evaluation of radiation scheme performance within chemistry climate models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 116(D10), 2011.
- Fouquart, Y., and B. Bonnel, Computations of solar heating of the earth’s atmosphere- a new parameterization, *Beitraege zur Physik der Atmosphaere*, 53, 35–62, 1980.

- Fröhlich, C., Solar irradiance variability since 1978, *Space Science Reviews*, 125(1-4), 53–65, 2006.
- Fröhlich, C., Evidence of a long-term trend in total solar irradiance, *Astronomy & Astrophysics*, 501(3), L27–L30, 2009.
- Froidevaux, L., J. W. Waters, W. G. Read, L. S. Elson, D. A. Flower, and R. F. Jarnot, Global ozone observations from the uars mls : An overview of zonal-mean results, *Journal of the atmospheric sciences*, 51(20), 2846–2866, 1994.
- Garcia, R. R., Atmospheric physics : Solar surprise ?, *Nature*, 467(7316), 668–669, 2010.
- Gray, L. J., et al., Solar influences on climate, *Reviews of Geophysics*, 48(4), 2010.
- Grinsted, A., J. C. Moore, and S. Jevrejeva, Application of the cross wavelet transform and wavelet coherence to geophysical time series, *Nonlinear processes in geophysics*, 11(5/6), 561–566, 2004.
- Gruzdev, A., H. Schmidt, and G. Brasseur, The effect of the solar rotational irradiance variation on the middle and upper atmosphere calculated by a three-dimensional chemistry-climate model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(2), 595–614, 2009.
- Haigh, J. D., The impact of solar variability on climate, *Science*, 272(5264), 981–984, 1996.
- Haigh, J. D., The sun and the earth’s climate, *Living Reviews in Solar Physics*, 4(2), 2298, 2007.
- Haigh, J. D., A. R. Winning, R. Toumi, and J. W. Harder, An influence of solar spectral variations on radiative forcing of climate, *Nature*, 467(7316), 696–699, 2010.
- Harder, J. W., J. M. Fontenla, P. Pilewskie, E. C. Richard, and T. N. Woods, Trends in solar spectral irradiance variability in the visible and infrared, *Geophysical Research Letters*, 36(7), 2009.
- Hays, P. B., and R. G. Roble, Stellar spectra and atmospheric composition, *Journal of the atmospheric sciences*, 25(6), 1141–1153, 1968.
- Hines, C. O., Doppler-spread parameterization of gravity-wave momentum deposition in the middle atmosphere. part 1 : Basic formulation, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 59(4), 371–386, 1997.
- Holton, J., *An introduction to dynamic meteorology*, vol. 1, Academic press, 2004.
- Hood, L., Coupled stratospheric ozone and temperature responses to short-term changes in solar ultraviolet flux : An analysis of nimbus 7 sbuv and sams data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 91(D4), 5264–5276, 1986.
- Hood, L., and S. Zhou, Stratospheric effects of 27-day solar ultraviolet variations : An analysis of uars mls ozone and temperature data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 103(D3), 3629–3638, 1998.

- Hood, L., Z. Huang, and S. Bougher, Mesospheric effects of solar ultraviolet variations : Further analysis of sme ir ozone and nimbus 7 sams temperature data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 96(D7), 12,989–13,002, 1991.
- Hood, L. L., Effects of solar uv variability on the stratosphere, *Solar variability and its effects on climate*, pp. 283–303, 2004.
- Hourdin, F., and A. Armengaud, The use of finite-volume methods for atmospheric advection of trace species. part i : Test of various formulations in a general circulation model, *Monthly Weather Review*, 127(5), 822–837, 1999.
- Hourdin, F., et al., The lmdz4 general circulation model : climate performance and sensitivity to parametrized physics with emphasis on tropical convection, *Climate Dynamics*, 27(7-8), 787–813, 2006.
- Hourdin, F., et al., Impact of the lmdz atmospheric grid configuration on the climate and sensitivity of the ipsl-cm5a coupled model, *Climate Dynamics*, 40(9-10), 2167–2192, 2013.
- Huang, F. T., H. G. Mayr, J. M. Russell, M. G. Mlynczak, and C. A. Reber, Ozone diurnal variations and mean profiles in the mesosphere, lower thermosphere, and stratosphere, based on measurements from saber on timed, *Journal of Geophysical Research : Space Physics (1978–2012)*, 113(A4), 2008.
- IPCC, T. F., Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, S. K. Tignor, M. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex, and P. M. e. Midgley, Ipcc, 2013 : climate change 2013 : impacts, adaptation and vulnerability. contribution of working group ii to the fourth assessment report of the intergovernmental panel on climate cha, 2013.
- Jackman, C., et al., Short-and medium-term atmospheric constituent effects of very large solar proton events, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(3), 765–785, 2008.
- Jourdain, L., S. Bekki, F. Lott, and F. Lefèvre, The coupled chemistry-climate model lmdz-reprobus : description and evaluation of a transient simulation of the period 1980–1999, 26(6), 1391–1413, 2008.
- Keating, G., M. Pitts, G. Brasseur, and A. De Rudder, Response of middle atmosphere to short-term solar ultraviolet variations : 1. observations, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 92(D1), 889–902, 1987.
- Kenesha, T. J., S. P. Zimmerman, and C. R. Philbrick, A dynamical model of the mesosphere and lower thermosphere, *Planetary and Space Science*, 27, 385–401, 1979.
- Kodera, K., and Y. Kuroda, Dynamical response to the solar cycle, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 107(D24), ACL–5, 2002.

- Kopp, G., and J. L. Lean, A new, lower value of total solar irradiance : Evidence and climate significance, *Geophysical Research Letters*, 38(1), 2011.
- Krivova, N., S. Solanki, and L. Floyd, Reconstruction of solar uv irradiance in cycle 23, *Astronomy & Astrophysics*, 452(2), 631–639, 2006.
- Krivova, N., S. Solanki, T. Wenzler, and B. Podlipnik, Reconstruction of solar uv irradiance since 1974, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 114(D1), 2009.
- Kurucz, R. L., Model atmospheres for population synthesis, in *The Stellar Populations of Galaxies*, pp. 225–232, Springer, 1992.
- Kyrölä, E., et al., Nighttime ozone profiles in the stratosphere and mesosphere by the global ozone monitoring by occultation of stars on envisat, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 111(D24), 2006.
- Kyrölä, E., et al., Retrieval of atmospheric parameters from gomos data, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(23), 11,881–11,903, 2010a.
- Kyrölä, E., et al., Gomos o 3, no 2, and no 3 observations in 2002–2008, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(16), 7723–7738, 2010b.
- Law, K., P. Plantevin, D. Shallcross, H. Rogers, J. Pyle, C. Grouhel, V. Thouret, and A. Marenco, Evaluation of modeled o3 using measurement of ozone by airbus in-service aircraft (mozaic) data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 103(D19), 25,721–25,737, 1998.
- Lawrence, G. M., G. Rottman, J. Harder, and T. Woods, Solar total irradiance monitor (tim), *Metrologia*, 37(5), 407, 2000.
- Le Treut, H., Z. Li, and M. Forichon, Sensitivity study of the lmd gcm to grennhouse forcing associated with two different cloud water parametrizations, *Journal of climate*, 7, 1827–1841, 1994.
- Le Treut, H., M. Forichon, O. Boucher, and Z.-X. Li, Sulfate aerosol indirect effect and co2 greenhouse forcing : Equilibriumresponse of the lmd gcm and associated cloud feedbacks, *Journal of climate*, 11(7), 1673–1684, 1998.
- Lean, J., The sun’s variable radiation and its relevance for earth 1, *Annual Review of Astronomy and Astrophysics*, 35(1), 33–67, 1997.
- Lean, J., Evolution of the sun’s spectral irradiance since the maunder minimum, *Geophysical Research Letters*, 27(16), 2425–2428, 2000.
- Lean, J., G. Rottman, J. Harder, and G. Kopp, Sorce contributions to new understanding of global change and solar variability, in *The Solar Radiation and Climate Experiment (SORCE)*, pp. 27–53, Springer, 2005.

- Lean, J. L., and M. T. DeLand, How does the sun's spectrum vary?, *Journal of Climate*, 25(7), 2555–2560, 2012.
- Lefevre, F., G. Brasseur, I. Folkins, A. Smith, and P. Simon, Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter : Three-dimensional model simulations, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 99(D4), 8183–8195, 1994.
- Lefèvre, F., F. Figarol, K. S. Carslaw, and T. Peter, The 1997 arctic ozone depletion quantified from three-dimensional model simulations, *Geophysical research letters*, 25(13), 2425–2428, 1998.
- Lockwood, M., Was uv spectral solar irradiance lower during the recent low sunspot minimum?, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 116(D16), 2011.
- Lomb, N. R., Least-squares frequency analysis of unequally spaced data, *Astrophysics and space science*, 39(2), 447–462, 1976.
- Lott, F., Alleviation of stationary biases in a gcm through a mountain drag parameterization scheme and a simple representation of mountain lift forces, *Monthly weather review*, 127(5), 788–801, 1999.
- Lott, F., and M. J. Miller, A new subgrid-scale orographic drag parametrization : Its formulation and testing, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 123(537), 101–127, 1997.
- Lott, F., L. Fairhead, F. Hourdin, and P. Levan, The stratospheric version of lmdz : dynamical climatologies, arctic oscillation, and impact on the surface climate, *Climate dynamics*, 25(7-8), 851–868, 2005.
- Madronich, S., and S. Flocke, The role of solar radiation in atmospheric chemistry, in *Environmental photochemistry*, pp. 1–26, Springer, 1999.
- Manzini, E., N. McFarlane, and C. McLandress, Impact of the doppler spread parameterization on the simulation of the middle atmosphere circulation using the ma/echam4 general circulation model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 102(D22), 25,751–25,762, 1997.
- Marchand, M., et al., Dynamical amplification of the stratospheric solar response simulated with the chemistry-climate model lmdz-reprobus, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 75, 147–160, 2012.
- Marsh, D., A. Smith, G. Brasseur, M. Kaufmann, and K. Grossmann, The existence of a tertiary ozone maximum in the high-latitude middle mesosphere, *Geophysical Research Letters*, 28(24), 4531–4534, 2001.
- Meehl, G. A., W. M. Washington, T. Wigley, J. M. Arblaster, and A. Dai, Solar and greenhouse gas forcing and climate response in the twentieth century, *Journal of Climate*, 16(3), 426–444, 2003.
- Meehl, G. A., J. M. Arblaster, G. Branstator, and H. van Loon, A coupled air-sea response mechanism to solar forcing in the pacific region, *Journal of Climate*, 21(12), 2883–2897, 2008.

- Meehl, G. A., J. M. Arblaster, K. Matthes, F. Sassi, and H. van Loon, Amplifying the pacific climate system response to a small 11-year solar cycle forcing, *Science*, 325(5944), 1114–1118, 2009.
- Merkel, A. W., J. W. Harder, D. R. Marsh, A. K. Smith, J. M. Fontenla, and T. N. Woods, The impact of solar spectral irradiance variability on middle atmospheric ozone, *Geophysical Research Letters*, 38(13), 2011.
- Minschwaner, K., G. Anderson, L. Hall, and K. Yoshino, Polynomial coefficients for calculating o₂ schumann-runge cross sections at 0.5 cm⁻¹ resolution, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 97(D9), 10,103–10,108, 1992.
- Molina, M. J., and F. S. Rowland, Stratospheric sink for chlorofluoromethanes : chlorine atom-catalysed destruction of ozone, *Nature*, 249(5460), 810–12, 1974.
- Morcrette, J.-J., L. Smith, and Y. Fouquart, Pressure and temperature dependence of the absorption in longwave radiation parametrizations, *Beiträge zur Physik der Atmosphäre*, 59(4), 455–469, 1986.
- Nesme-Ribes, E., G. Thuillier, and J.-C. Pecker, *Histoire solaire et climatique*, Belin-Pour la Science, 2000.
- Pagaran, J., M. Weber, M. DeLand, L. Floyd, and J. Burrows, Solar spectral irradiance variations in 240–1600 nm during the recent solar cycles 21–23, *Solar Physics*, 272(1), 159–188, 2011.
- Parrish, A., et al., Diurnal variations of stratospheric ozone measured by ground-based microwave remote sensing at the mauna loa ndacc site : measurement validation and geosccm model comparison, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(14), 7255–7272, 2014.
- Pierce, J., and P. Adams, Can cosmic rays affect cloud condensation nuclei by altering new particle formation rates ?, *Geophysical Research Letters*, 36(9), 2009.
- Randel, W. J., and F. Wu, A stratospheric ozone profile data set for 1979–2005 : Variability, trends, and comparisons with column ozone data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 112(D6), 2007.
- Remsberg, E., et al., Assessment of the quality of the version 1.07 temperature-versus-pressure profiles of the middle atmosphere from timed/saber, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 113(D17), 2008.
- Rodrigo, R., J. Nisbet, and E. Battaner, The effect of horizontal winds upon the chemical composition of the lower thermosphere at high latitude, *Journal of Geophysical Research : Space Physics (1978–2012)*, 86(A5), 3501–3508, 1981.
- Rodrigo, R., J. Lopez-Moreno, M. Lopez-Puertas, F. Moreno, and A. Molina, Neutral atmospheric composition between 60 and 220 km : a theoretical model for mid-latitudes, *Planetary and space science*, 34(8), 723–743, 1986.

- Rottman, G., Variations of solar ultraviolet irradiance observed by the uars solstice—1991 to 1999, *Space Science Reviews*, 94(1-2), 83–91, 2000.
- Rottman, G., L. Floyd, and R. Viereck, Measurements of the solar ultraviolet irradiance, *Solar Variability and Its Effects on Climate*, pp. 111–125, 2004.
- Rottman, G. J., T. N. Woods, and T. P. Sparn, Solar-stellar irradiance comparison experiment 1 : 1. instrument design and operation, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 98(D6), 10,667–10,677, 1993.
- Rozanov, E., T. Egorova, W. Schmutz, and T. Peter, Simulation of the stratospheric ozone and temperature response to the solar irradiance variability during sun rotation cycle, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 68(18), 2203–2213, 2006.
- Ruzmaikin, A., M. Santee, M. Schwartz, L. Froidevaux, and H. Pickett, The 27-day variations in stratospheric ozone and temperature : New mls data, *Geophysical research letters*, 34(2), 2007.
- Sadourny, R., and K. Laval, January and july performance of the lmd general circulation model, *New Perspectives in Climate Modeling*, 1, 173–197, 1984.
- Sander, S. P., et al., Chemical kinetics and photochemical data for use in atmospheric studies evaluation number 17, 2011.
- Savage, N., K. Law, J. Pyle, A. Richter, H. Nüß, and J. Burrows, Using gome no 2 satellite data to examine regional differences in tomcat model performance, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4(7), 1895–1912, 2004.
- Scargle, J. D., Studies in astronomical time series analysis. ii-statistical aspects of spectral analysis of unevenly spaced data, *The Astrophysical Journal*, 263, 835–853, 1982.
- Schmutz, W., A. Fehlmann, W. Finsterle, and the PREMOS team, First light of premos/picard, *Annual report 2011 PMOD/WRC*, 44, 2012.
- Schmutz, W., et al., The premos/picard instrument calibration, *Metrologia*, 46(4), S202, 2009.
- Shapiro, A., E. Rozanov, T. Egorova, A. Shapiro, T. Peter, and W. Schmutz, Sensitivity of the earth’s middle atmosphere to short-term solar variability and its dependence on the choice of solar irradiance data set, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 73(2), 348–355, 2011.
- Shapiro, A., E. Rozanov, A. Shapiro, S. Wang, T. Egorova, W. Schmutz, and T. Peter, Signature of the 27-day solar rotation cycle in mesospheric oh and h 2 o observed by the aura microwave limb sounder, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(7), 3181–3188, 2012.
- Shepherd, T., K. Semeniuk, and J. Koshyk, Sponge layer feedbacks in middle-atmosphere models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 101(D18), 23,447–23,464, 1996.

- Shimazaki, T., and A. Laird, A model calculation of the diurnal variation in minor neutral constituents in the mesosphere and lower thermosphere including transport effects, *Journal of Geophysical Research*, 75(16), 3221–3235, 1970.
- Shindell, D., D. Rind, N. Balachandran, J. Lean, and P. Lonergan, Solar cycle variability, ozone, and climate, *Science*, 284(5412), 305–308, 1999.
- Smith, A., et al., Satellite observations of ozone in the upper mesosphere, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(11), 5803–5821, 2013.
- Snow, M., W. E. McClintock, G. Rottman, and T. N. Woods, Solar-stellar irradiance comparison experiment ii (solstice ii) : Examination of the solar-stellar comparison technique, in *The Solar Radiation and Climate Experiment (SORCE)*, pp. 295–324, Springer, 2005.
- Sofieva, V., et al., Retrievals from gomos stellar occultation measurements using characterization of modeling errors, *Atmospheric Measurement Techniques*, 3(4), 1019–1027, 2010a.
- Sofieva, V., et al., Retrievals from gomos stellar occultation measurements using characterization of modeling errors, *Atmospheric Measurement Techniques*, 3(4), 1019–1027, 2010b.
- Solomon, S., P. J. Crutzen, and R. G. Roble, Photochemical coupling between the thermosphere and the lower atmosphere : 1. odd nitrogen from 50 to 120 km, *Journal of Geophysical Research : Oceans* (1978–2012), 87(C9), 7206–7220, 1982.
- Solomon, S. C., T. N. Woods, L. V. Didkovsky, J. T. Emmert, and L. Qian, Anomalous low solar extreme-ultraviolet irradiance and thermospheric density during solar minimum, *Geophysical Research Letters*, 37(16), 2010.
- Soukharev, B., and L. Hood, Solar cycle variation of stratospheric ozone : Multiple regression analysis of long-term satellite data sets and comparisons with models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* (1984–2012), 111(D20), 2006.
- Stamnes, K., S.-C. Tsay, W. Wiscombe, K. Jayaweera, et al., Numerically stable algorithm for discrete-ordinate-method radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media, *Applied optics*, 27(12), 2502–2509, 1988.
- Steinhilber, F., J. Beer, and C. Fröhlich, Total solar irradiance during the holocene, *Geophysical Research Letters*, 36(19), 2009.
- Stolarski, R. S., and R. J. Cicerone, Stratospheric chlorine : a possible sink for ozone, *Canadian journal of Chemistry*, 52(8), 1610–1615, 1974.
- Thuillier, G., M. Hersé, P. C. Simon, H. Mandel, D. Gillotay, T. Foujols, et al., The visible solar spectral irradiance from 350 to 850 nm as measured by the solspec spectrometer during the atlas i mission, in *Solar Electromagnetic Radiation Study for Solar Cycle 22*, pp. 41–61, Springer, 1998.

- Thuillier, G., L. Floyd, T. N. Woods, R. Cebula, E. Hilsenrath, M. Hersé, and D. Labs, Solar irradiance reference spectra, *Solar Variability and Its Effects on Climate*, pp. 171–194, 2003.
- Thuillier, G., M. Deland, A. Shapiro, W. Schmutz, D. Bolsée, and S. M. L. Melo, The solar spectral irradiance as a function of the mg ii index for atmosphere and climate modelling, *Solar Physics*, 277, 245–266, 2012.
- Thuillier, G., et al., Analysis of different solar spectral irradiance reconstructions and their impact on solar heating rates, *Solar Physics*, 289(4), 1115–1142, 2014.
- Torrence, C., and G. P. Compo, A practical guide to wavelet analysis, *Bulletin of the American Meteorological society*, 79(1), 61–78, 1998.
- Toumi, R., J. Syroka, C. Barnes, and P. Lewis, Robust non-gaussian statistics and long-range correlation of total ozone, *Atmospheric Science Letters*, 2(1-4), 94–103, 2001.
- Unruh, Y. C., W. T. Ball, and N. A. Krivova, Solar irradiance models and measurements : A comparison in the 220–240 nm wavelength band, *Surveys in geophysics*, 33(3-4), 475–481, 2012.
- Van Leer, B., Towards the ultimate conservative difference scheme. iv. a new approach to numerical convection, *Journal of computational physics*, 23(3), 276–299, 1977.
- Viereck, R. A., L. E. Floyd, P. C. Crane, T. N. Woods, B. G. Knapp, G. Rottman, M. Weber, L. C. Puga, and M. T. DeLand, A composite mg ii index spanning from 1978 to 2003, *Space Weather*, 2(10), 2004.
- Waters, J., Microwave limb-sounding of earth’s upper atmosphere, *Atmospheric research*, 23(3), 391–410, 1989.
- Waters, J., Microwave limb sounding, in *Atmospheric Remote Sensing by Microwave Radiometry*, vol. 1, p. 383, 1993.
- Waters, J. W., et al., The earth observing system microwave limb sounder (eos mls) on the aura satellite, *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on*, 44(5), 1075–1092, 2006.
- White, W. B., Response of tropical global ocean temperature to the sun’s quasi-decadal uv radiative forcing of the stratosphere, *Journal of Geophysical Research : Oceans (1978–2012)*, 111(C9), 2006.
- White, W. B., M. D. Dettinger, and D. R. Cayan, Sources of global warming of the upper ocean on decadal period scales, *Journal of Geophysical Research : Oceans (1978–2012)*, 108(C8), 2003.
- Williams, V., J. Austin, and J. Haigh, Model simulations of the impact of the 27-day solar rotation period on stratospheric ozone and temperature, *Advances in Space Research*, 27(12), 1933–1942, 2001.

- Willson, R. C., and A. V. Mordvinov, Secular total solar irradiance trend during solar cycles 21–23, *Geophysical Research Letters*, 30(5), 2003.
- Woods, T., Solar irradiance variability : Comparisons of observations over solar cycles 21-24, in *EGU General Assembly Conference Abstracts*, vol. 14, p. 1520, 2012.
- Zhang, L., Y. Cui, Y. He, H. He, Z. Du, R. Li, and H. Wang, Longitudinal distribution of major solar flares during 1975–2005, *Advances in Space Research*, 40(7), 970–975, 2007.
- Zhou, S., G. J. Rottman, and A. J. Miller, Stratospheric ozone response to short-and intermediate-term variations of solar uv flux, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 102(D7), 9003–9011, 1997.
- Zhou, S., A. J. Miller, and L. L. Hood, A partial correlation analysis of the stratospheric ozone response to 27-day solar uv variations with temperature effect removed, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 105(D4), 4491–4500, 2000.
