Hiérarchisation des déterminants de la composition atmosphérique future en Europe

Vincent Lemaire

▶ **To cite this version:**

Vincent Lemaire. Hiérarchisation des déterminants de la composition atmosphérique future en Europe. Océan, Atmosphère. Université Paris Saclay (COmUE), 2017. Français. NNT : 2017SACLX091 . tel-01775191

HAL Id: tel-01775191
https://pastel.hal.science/tel-01775191

Submitted on 24 Apr 2018

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.

NNT : 2017SACLX091

THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY
PRÉPARÉE À L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Ecole Doctorale SMEMAG n^o 579
Spécialité de doctorat : Météorologie, océanographie et physique de l'environnement
par

M. Vincent Lemaire
vincent.lemaire@polytechnique.edu

Hiérarchisation des déterminants de la composition atmosphérique future en Europe

Thèse soutenue à Polytechnique le 19 décembre 2017, devant le jury composé de :

Nathalie CARRASCO	Professeure à l'Université Versailles St Quentin	Présidente du jury
Virgine MARÉCAL	Directrice de Recherche au CNRS	Rapporteur
Michael GAUSS	Senior Research Scientist at MET Norway	Rapporteur
Gilles FORÊT	Maitre de conférences à l'Université de Créteil	Examinateur
Fabien SOLMON	Physicien-Adjoint de l'Observatoire Midi-Pyrénées	Examinateur
Augustin COLETTE	Chercheur à l'INERIS	coDirecteur de thèse
Laurent MENUT	Directeur de Recherche au CNRS	Directeur de thèse

Table des matières

1 Introduction **11**
1.1 La pollution atmosphérique . . . 11
1.1.1 Les espèces gazeuses . . . 12
1.1.2 Les particules en suspension . . . 14
1.1.3 La pollution en Europe . . . 15
1.1.4 La modélisation de la pollution . . . 18
1.2 Le changement climatique . . . 19
1.2.1 Le changement climatique actuel . . . 19
1.2.2 La modélisation du climat . . . 19
1.2.3 Les différents futurs climatiques . . . 20
1.2.4 La régionalisation du changement climatique . . . 21
1.3 Les interactions entre climat et qualité de l'air . . . 21
1.3.1 L'impact de la pollution sur le changement climatique . . . 22
1.3.2 L'impact du changement climatique sur la qualité de l'air . . . 24
1.4 Objectifs et plan de la thèse . . . 26

2 La qualité de l'air dans le contexte de changement climatique **29**
2.1 Une nouvelle méthode d'exploration d'ensemble de projection climatique pour la qualité de l'air 29
2.1.1 Résumé de l'article . . . 29
2.1.2 Manuscrit de l'article publié . . . 34
2.2 Application du méta-modèle à un épisode de pollution . . . 51
2.2.1 Description de l'épisode de pollution . . . 51
2.2.2 Résultats de l'application du méta-modèle . . . 51
2.3 Conclusions et perspectives . . . 53

3 Impact de la résolution verticale des données climatiques **56**
3.1 Introduction . . . 56
3.1.1 Contexte . . . 56
3.1.2 Simulations climatiques régionales disponibles . . . 57
3.2 Méthodologie d'évaluation de l'erreur liée à la résolution verticale . . . 58
3.2.1 Différentes configurations de niveaux verticaux . . . 58
3.2.2 Périodes simulées . . . 58
3.3 Validation : simulations mensuelles . . . 60
3.3.1 Ozone . . . 60
3.3.2 $PM_{2.5}$ . . . 61
3.3.3 Synthèse . . . 62
3.4 Validation : Simulations décennales . . . 63
3.5 Sensibilité des paramétrisations à la résolution verticale . . . 65
3.5.1 Profils verticaux . . . 65
3.5.2 La diffusivité verticale dans CHIMERE . . . 67
3.5.3 Impact de la diffusivité turbulente dans les nuages . . . 70
3.6 Correction statistique par débiaisage . . . 74
3.7 Conclusion . . . 78

4 Impact relatif des évolutions du climat et des émissions de polluants sur la qualité de l'air **80**
4.1 Introduction . . . 80
4.2 Méthodologie . . . 82
4.2.1 Modèle statistique pour les émissions anthropiques . . . 82
4.2.2 Modèle statistique pour la météorologie . . . 85
4.3 Évaluation des outils statistiques . . . 85
4.3.1 Évaluation du proxy émissions . . . 86
4.3.2 Évaluation du proxy météo . . . 88
4.3.3 Synthèse sur l'évaluation des proxys émissions et météo . . . 93
4.4 Comparaison de l'impact du changement climatique et des réductions d'émissions . . . 94
4.4.1 Phasage temporel des impacts . . . 95
4.4.2 Décomposition par secteurs d'émissions . . . 97
4.4.3 Synthèse et mise en perspective des résultats avec la littérature . . . 102
4.5 Conclusions et perspectives . . . 103

5 Conclusion générale **106**

Annexes **109**

A Figures supplémentaires **109**
A.1 Chapitre 2 . . . 109
A.2 Chapitre 4 . . . 120
A.2.1 Phasage temporel des impacts . . . 120
A.2.2 Décomposition par secteurs d'émissions . . . 120

Remerciement

Un grand merci à toutes les personnes qui m'ont permis de réaliser cette thèse tant par le soutien que par les conseils qu'ils m'ont apportés. Pour des besoins pratiques et à des fins d'équité (vous m'avez tous soutenu !) : les poids et tailles du texte sont attribués aléatoirement !

Abstract

The atmospheric composition is mainly driven by the emission of primary pollutants and precursors and meteorology. Because of its sensitivity to unfavorable weather patterns, air pollution is expected to be sensitive to climate change. That is why the aim of this work is to estimate the effect of climate change over air pollution in Europe at the end of the century. To achieve this, we rely on modeling which allows to cover such timescales.

To reduce uncertainties and quantify the effect of climate change on air quality, ensemble approaches should be applied. However, the computing cost of such methods is substantial. To overcome this issue we developed a statistical method which does not require forcing a chemistry and transport model with a large ensemble of climate projections. The results obtained with this statistical method are in good agreement with full chemistry-transport models when considering long time periods. But we point out the limits of the method when focusing on extreme pollution events. The statistical model can be used to assess the uncertainty of using a comprehensive ensemble of climate forcings in terms of air quality impacts. The statistical approach can also help identifying a subset of climate forcing that should be explored in priority to drive chemistry-transport models.

Such a subset of climate models is however only available at a degraded vertical resolution on existing databases such as EuroCordex. To quantify the error induced when using a meteorological variables only saved for a few vertical levels, a sensitivity study focused on the impact of the vertical resolution of the meteorological data has been perfomed. We emphasized that a minimum of 10 vertical levels and some specific variables were required to study the impact of climate change on air quality to keep the error lower than the climate change signal.

Finally, we use the statistical method to compare the climate change effect and the future emissions reduction impact estimated also with a surrogate model. We exhibit that the magnitude of climate benefit for $PM_{2.5}$ will be comparable to the emissions reductions of the dominant sector in each country studied. These emissions decreases will therefore be reinforced by the climate change impact. On the opposite, for ozone, the climate penalty will jeopardize the emission reductions between 2010 and 2050.

Résumé de la thèse

La composition chimique atmosphérique dépend principalement des émissions de polluants, de leurs précurseurs et de la météorologie. Les stratégies de gestion de la qualité de l'air ambitionnent des réductions substantielles d'émissions à long terme. Mais il est légitime d'évaluer si l'impact du changement climatique pourrait compenser ces efforts.

Afin de répondre à cette problématique, on a recours à la modélisation qui permet de faire des projections à long terme, sous différents scénarios de sensibilité pour isoler les principaux facteurs. Se pose alors le problème des incertitudes dans la modélisation. L'approche privilégié pour les études d'impact du climat est la modélisation ensembliste. Cependant du fait de l'important coût de calcul, on constate qu'aucune étude passée d'impact du climat sur la qualité de l'air ne repose sur un ensemble large de projections climatiques. C'est pourquoi, nous avons développé une méthode statistique alternative, entrainée sur des grands ensembles de simulations, pour caractériser l'impact des émissions et de la météorologie sur la qualité de l'air dans un contexte de changement climatique. Nous avons montré qu'un modèle statistique permettait d'obtenir des réponses sur l'impact du climat sans forcément avoir à réaliser explicitement des modélisations d'ensemble. La méthode développée donne des résultats avec une incertitude faible sur le long terme, même si nous avons montré ses limites lorsqu'il s'agit de traiter des cas de pollution extrêmes.

Afin de quantifier l'erreur induite par les données climatiques des modèles actuellement conservées de manière partielle, nous avons réalisé une étude de sensibilité à la résolution verticale des modèles climatiques régionaux. Nous avons montré qu'un minimum de dix niveaux verticaux, ainsi que des variables supplémentaires à l'existant étaient indispensables si l'on voulait que l'erreur de simulation reste inférieure au signal climatique étudié.

Enfin, nous avons utilisé le modèle statistique pour confronter l'impact du changement climatique aux réductions d'émissions anthropiques attendues à l'avenir. Les résultats ont permis de mettre en évidence que le bénéfice climatique pour les particules fines, $PM_{2.5}$, était du même ordre de grandeur que les baisses réalisées dans le secteur le plus influent de chaque pays étudié. Ces baisses d'émissions vont donc être renforcées par le changement climatique. Au contraire, pour l'ozone, la pénalité climatique va contrebalancer les efforts de réductions d'émissions réalisés entre 2010 et 2050. Pour les pays analysés, on peut estimer la date approximative de l'émergence du signal induit par le changement climatique malgré la réduction des émissions attendue dans la législation actuelle.

1 Introduction

Le changement climatique impacte la qualité de l'air et certains polluants atmosphériques contribuent au changement climatique. Ces deux grands enjeux environnementaux partagent des processus géophysiques. Les politiques de gestion du climat et de la qualité de l'air sont donc liées.

Dans cette thèse, on s'intéresse en particulier à **la quantification de l'impact du changement climatique sur la pollution atmosphérique en Europe**. Cette introduction va donc rappeler les processus à l'origine de la pollution atmosphérique et du changement climatique. Puis, les interactions entre les deux seront exposées avant d'aborder plus en détail le positionnement choisi dans notre travail.

1.1 La pollution atmosphérique

La pollution atmosphérique se définit comme la surabondance de gaz et particules nocives dans l'atmosphère (*Seinfeld and Pandis*, 2012).

Les polluants atmosphériques diffèrent par leur composition chimique (gazeuse ou particulaire), leur nature (primaire ou secondaire) ou encore leurs impacts (sanitaire, environnemental...). Les principaux polluants qui nous préoccupent dans le contexte de la pollution de l'air régionale sont les particules, l'ozone, et les oxydes d'azote. La Figure 1.1 schématise le cycle de vie de ces polluants en quelques étapes clefs comme l'émission ainsi que leur transport et transformation dans l'atmosphère. Plusieurs sources anthropiques (trafic routier, résidentiel, industrie, agriculture) et naturelle (végétation) de polluants ainsi que les processus géophysiques que ces polluants peuvent rencontrer dans l'atmosphère sont représentés. Une fois émis dans l'atmosphère, les polluants vont être affectés par les conditions météorologiques et pourront, par exemple, être advectés par le vent ou lessivés par les précipitations (déposés au sol par la pluie). Ils peuvent aussi être transformés par des réactions chimiques et former des polluants secondaires (photochimie de l'ozone et formation d'aérosols secondaires).

Nous présentons ici quelques polluants principaux, ainsi que leurs sources, mécanismes de formation et transformations dans l'atmosphère. Nous nous intéresserons particulièrement à l'ozone et aux particules fines pour leurs impacts sanitaire, environnemental et climatique ainsi qu'à leurs précurseurs. Enfin nous introduirons les fondamentaux de l'outil principal utilisé dans notre travail de thèse qui est la modélisation de la pollution atmosphérique.

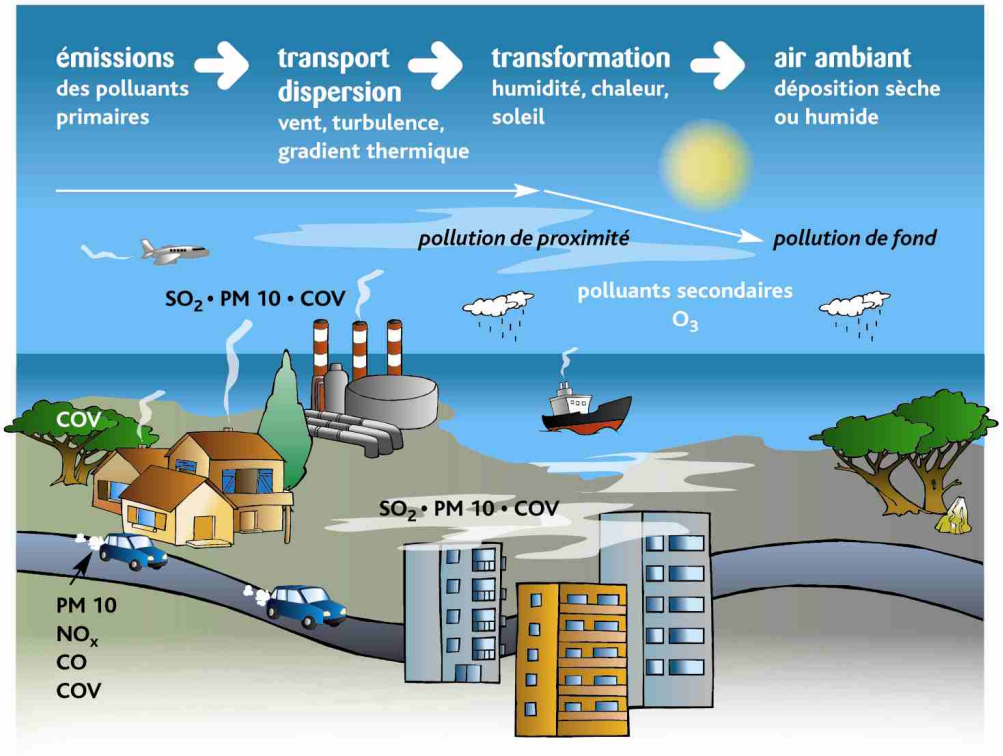


FIGURE 1.1 – *Les principaux polluants à l'origine de la pollution atmosphérique régionale.*

1.1.1 Les espèces gazeuses

Les oxydes d'azote, notés NO_x, regroupent principalement le dioxyde d'azote (NO_2) et le monoxyde d'azote (NO). Ils sont majoritairement émis lors de combustion à haute température, par oxydation de l'azote du combustible ou fixation de l'azote présent dans l'air (*Seinfeld and Pandis*, 2012). Ces polluants, très réactifs, se transforment vite dans l'atmosphère. Leur faible temps de résidence est responsable des concentrations importantes de NO_x près des sources. En Europe, le trafic routier est le principal émetteur de NO_x et l'énergie, le deuxième contributeur (*EEA*, 2016). Les oxydes d'azote sont des précurseurs de l'ozone, ainsi que de certains acides forts (nitrique), responsables des phénomènes de pluies acides. Ils contribuent aussi à la formation d'aérosols secondaires (cf. 1.1.2).

Les composés organiques volatils (COV) regroupent une grande diversité de gaz. Ces gaz, d'origine naturelle ou anthropique, sont tous composés d'au moins un atome de carbone associé à un ou plusieurs des éléments suivants : hydrogène, halogènes, oxygène, soufre, phosphore, silicium ou azote (*Seinfeld and Pandis*, 2012). Ils sont à la fois des précurseurs de l'ozone et des aérosols organiques secondaires. Parmi le vaste ensemble des composés organiques volatils, le méthane (CH_4), COV le plus présent dans l'atmosphère est souvent distingué du reste des COV que l'on appelle alors composés organiques volatils non méthaniques (COVNM). Le méthane est un gaz à effet de serre avec un fort pouvoir radiatif

(capacité de réchauffer l'atmosphère) qui contribue au réchauffement climatique. Il est émis par les activités humaines (élevage, énergies fossiles...) mais aussi par la biosphère (zones humides, océan et termites). Un très grand nombre de COVNM sont émis par des phénomènes de combustion et d'évaporation de solvants et carburants. Le monoxyde de carbone, par exemple, provient de combustion incomplète (gaz, charbon, fioul ou bois). Les principaux secteurs émetteurs anthropiques de COV sont les secteurs résidentiel, transport et industriel. Cependant de nombreux COV sont d'origine biotique et proviennent des forêts comme, par exemple, la famille des terpènes (emissions par les feuilles d'arbre sous l'effet du rayonnement solaire).

L'ozone (noté O_3) est un polluant photochimique secondaire qui se forme dans la troposphère grâce à de nombreux précurseurs tels que les oxydes d'azote (NO_x), les composés organiques volatils (COV) et autres hydrocarbones ainsi que le monoxyde de carbone (CO) (*Seinfeld and Pandis*, 2012).

Dans la troposphère, à l'équilibre photochimique, l'ozone est produit par la recombinaison d'un atome d'oxygène et d'une molécule de dioxygène. L'atome d'oxygène nécessaire est produit par photodissociation du dioxyde d'azote, on notera ici l'importance du rayonnement. Cependant la molécule d'ozone formée peut être détruite rapidement par le NO pour créer du NO_2, c'est le phénomène de titration d'ozone.

Cet équilibre chimique dynamique entre les NO_x et l'O_3 fonctionne tant qu'aucun autre corps chimique n'oxyde le NO en NO_2 sans consommer d'O_3. En atmosphère polluée, l'équilibre est rompu, le NO est oxydé grâce à d'autres composés comme le CO, le CH_4 et les COV et l'ozone peut s'accumuler. On distingue généralement deux régimes non linéaires de formation d'ozone basés sur l'abondance relative des COV et des NO_x (principaux précurseurs de l'O_3) : le régime limité par les COV (High NO_x) et le régime limité par les NO_x (Low NO_x). Le premier régime est représentatif du milieu urbain, l'ozone augmente quand les COV augmentent et diminue lorsque les NO_x augmentent (titration de l'O_3). En milieu rural, loin des sources, le mode de production d'ozone est limité par les NO_x, c'est donc la présence de NO_x qui augmentent les concentrations d'ozone.

Dans certains milieux pauvres en NO_x : des zones éloignées des sources primaires l'ozone est détruit pour produire le radial OH. Ce phénomène se produit par exemple au-dessus des surfaces océaniques.

L'ozone est un enjeu sanitaire (inflammation des voies respiratoires par exemple) (*Lippmann*, 1989; *Kampa and Castanas*, 2008; *Jerrett et al.*, 2009) mais aussi environnemental de par ses effets sur le bâti, la végétation (rendement des cultures) (*Fuhrer et al.*, 1997; *Maas and Grennfelt*, 2016) et le climat (gaz à effet de serre) (*IPCC*, 2013a). Les polluants nécessaires à sa formation sont émis par les activités humaines (NO_x, CO, COV) mais aussi par la végétation (COV, CO, NOx). L'ozone ayant aussi des sources naturelles, on le retrouve dans une atmosphère "non polluée", où il joue un rôle important d'oxydant atmosphérique. Le rayonnement solaire est un élément important car il va moduler l'intensité de la production d'ozone en agissant à la fois comme une source et un puit. De fait, les fortes concentrations en surface apparaissent souvent en période estivale lorsque l'ensoleillement est important et que les conditions climatiques peu dispersives (par exemple situation anticyclonique) favorisent l'accumulation. L'épisode de pollution sera d'autant plus important si la situation anticy-

clonique persiste (*Vautard et al.*, 2005). L'ozone ayant une durée de vie de quelques jours dans les basses couches de l'atmosphère, il peut être transporté loin de sa zone de production. Cette dimension transfrontalière peut être primmordiale pour certains pays et rendre difficile la baisse des niveaux de pollution par des actions nationales, une action coordonnée avec les pays frontaliers devenant dès lors nécessaire.

1.1.2 Les particules en suspension

Les aéorosols atmosphériques sont définis comme des particules de matière solide ou liquide en suspension dans l'atmosphère. Cette appellation regroupe un ensemble hétérogène de composés qui se caractérisent par leur distribution en taille (*Willeke and Whitby*, 1975) et en composition chimique (*Bessagnet et al.*, 2008). Les particules dont le diamètre aérodynamique maximal inférieur est compris entre 2.5 et 10 μm sont dites grossières par opposition aux particules fines dont le diamètre est inférieur à 2.5 μm. Elles peuvent aussi être classées selon leurs sources (naturelles ou anthropiques) ou leur nature (primaire ou secondaire).

Du fait de leur taille réduite, les particules fines pénètrent profondémment dans le système respiratoire et provoquent des maladies respiratoires et cardio-vasculaires. Elles constituent donc un enjeu sanitaire majeur (*Dockery and Pope*, 1994). En plus de leur effet sur la santé, les particules agissent sur le climat. Le signe de cet impact varie selon la composition chimique de l'aérosol (le carbone suie réchauffe l'atmosphère alors que le carbone organique, les sulfates et les poussières telluriques le refroidissent) (*IPCC*, 2013a).

Le chauffage résidentiel et l'industrie sont les principales sources émettrices de particules primaires anthropiques. Le secteur routier est également une source importante de particules fines primaires ($PPM_{2.5}$) par combustion du diesel notamment. L'érosion éolienne, les feux de forêt ou l'émission de pollens et débris végétaux constituent les principales sources primaires naturelles. Notons aussi que certaines particules peuvent également être remises en suspension dans l'atmosphère après avoir été déposées et ce, généralement, sous l'action du trafic routier ou du vent. En plus de ces émissions directes, de nombreuses particules fines (e.g. sulfates, nitrates ou aérosols organiques secondaires) sont formées par des réactions chimiques dans l'atmosphère à partir de précurseurs gazeux (*Seinfeld and Pandis*, 2012).

Le dioxyde de soufre (SO_2) et l'ammoniac (NH_3) sont des précurseurs importants des aérosols inorganiques secondaires. Les émissions naturelles de SO_2 proviennent des volcans alors que les émissions anthropiques sont principalement dues à l'utilisation de combustibles soufrés (charbon, fioul, gazole, etc). Celle-ci ont particulièment baissé depuis 20 ans. L'ammoniac est essentiellement lié aux activités agricoles (rejets organiques de l'élevage, épandage de fertilisants), plus de 90% des émissions d'ammoniac ont pour origine l'agriculture en Europe et seule une petite part des émissions totales est imputable au trafic routier (usage des véhicules équipés de catalyseurs) et aux déchets (dégradation). Les aérosols organiques secondaires sont formés par l'oxydation de composés organiques volatils par différents oxydants de l'atmosphère (comme l'ozone, les radicaux hydroxyle et les nitrates...) dans l'air ou dans la phase aqueuse des nuages. Les précurseurs sont d'origines anthropiques (aromatiques, alcanes...) et biogéniques (isoprène).

1.1.3 La pollution en Europe

Dans le cadre de cette thèse, le travail d'analyse se focalisera sur l'Europe, une région fortement anthropisée et donc sensible à la pollution atmosphérique. Dans cette section, nous présenterons les seuils européens réglementaires, l'évolution des émissions, les concentrations moyennes de ces polluants ainsi que leurs tendances sur ces dernières années.

1.1.3.1 La législation européenne

Les polluants présentés dans la partie 1.1 sont réglementés par des directives européennes qui sont ensuite transposées par chaque pays membre. L'OMS propose des valeurs guides alors que l'Europe prescrit des valeurs limites à ne pas dépasser qui varient selon le polluant. Ces valeurs peuvent s'appuyer sur des maximums journaliers pour traduire une exposition aiguë ou une exposition chronique en portant sur une moyenne annuelle et un nombre de jour à ne pas dépasser par exemple, comme cela est présenté dans le Tableau 1.1.

Polluant	Seuils d'information (moyenne)			Alerte
	An	Jour	Heure	
O_3			180 $\mu g/m^3$ (sur 8h)	240 $\mu g/m^3$
NO_2	40 $\mu g/m^3$		200 $\mu g/m^3$	400 $\mu g/m^3$ (sur 3h)
SO_2		125 $\mu g/m^3$	350 $\mu g/m^3$	500 $\mu g/m^3$ (sur 3h)
CO			10 000 $\mu g/m^3$	
PM_{10}	40 $\mu g/m^3$	50 $\mu g/m^3$ (35 jours/an)		
$PM_{2.5}$		25 $\mu g/m^3$		

TABLE 1.1 – *La réglementation Européenne en matière de qualité de l'air selon la directive Européenne (2008/50/CE)*

Afin de se conformer à la législation et d'améliorer la qualité de l'air, de nombreuses politiques de gestion agissent à la source. Elles imposent des réductions d'émissions de polluants aux divers secteurs émetteurs. Les normes EURO qui imposent des seuils d'émissions critiques en sortie d'échappement aux voitures à ne pas dépasser sont l'un des exemples les plus connus.

1.1.3.2 Les émissions de polluants en Europe

Les émissions de polluants peuvent être divisées en deux catégories distinctes : les émissions naturelles et les émissions anthropiques, imputables aux activités humaines. Parmi les émissions naturelles on distingue les sources biotiques (végétation), d'autres sources comme la production de particules sous forme d'embruns, de poussières volcaniques ou désertiques. Concernant les sources anthropiques, de nombreux secteurs d'activité humaine tels que les activités industrielles, les transports (voitures, avions), les activités domestiques (chauffage en particulier), l'agriculture, la sylviculture sont considérés. Chaque secteur d'émissions a une influence variable selon le polluant étudié. Les évolutions des émissions anthropiques

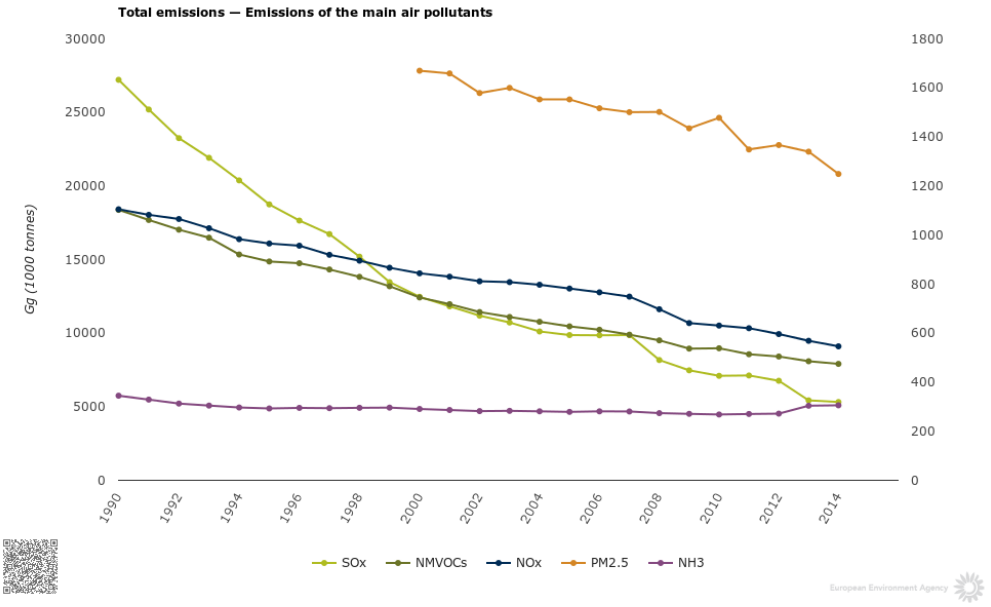


FIGURE 1.2 – *Evolution des émissions des principaux polluants atmosphériques, d'après European Environment Agency (c256acfef744411983e3f94d502f6aab)*

(totales et par secteur d'activités) à l'échelle de l'Europe (*EEA*, 2016) sont abordées dans cette section.

Ces émissions ont globalement diminué sur la période 2000-2014 (Figure 1.2) avec des disparités selon le polluant ou encore le secteur considéré. La plus large baisse est de 69% pour les SO_x par opposition à la plus faible 8% pour l'ammoniac. En détaillant l'analyse par secteur, on s'aperçoit que seules les émissions liées à l'agriculture ont peu évolué. Les émissions liées au transport ont diminué de 30 à 80% selon le type de polluants depuis les années 2000. Une baisse marquée des émissions de polluants est notable pour le secteur industriel et celui de la production d'énergie.

La baisse des émissions a-t-elle conduit à une diminution des concentrations des principaux polluants atmosphériques en Europe ? La section suivante va décrire les concentrations moyennes et les tendances des principaux polluants.

1.1.3.3 Les concentrations de polluants actuelles et leur évolution

Les concentrations de polluants en Europe sont mesurées par différents réseaux et collectés dans la base de données *AirBase* gérée par l'Agence Européenne de l'Environnement (EEA) via son centre pour l'étude de la pollution de l'air et l'atténuation du changement climatique. Elle donne accès à des séries temporelles et quelques statistiques associées pour de multiples polluants. Les données proviennent des réseaux de mesures de chaque pays membre (e.g réseau ATMO en France) et couvrent l'ensemble de l'Europe comme illustré sur la Figure 1.3. Chaque année un rapport est élaboré par l'EEA où les sources, les concentrations et les

évolutions sont présentées.

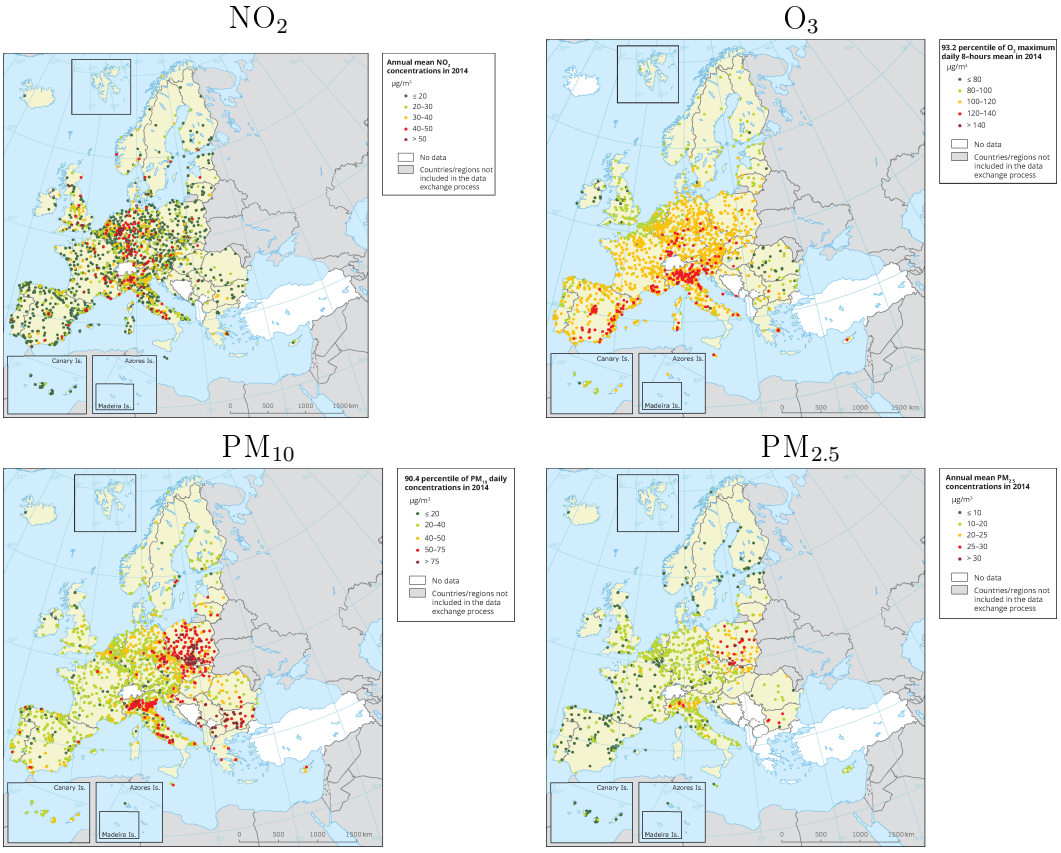


FIGURE 1.3 – *Concentrations observées en Europe aux différentes stations de mesure pour le dioxyde d'azote en haut à gauche, les maximas d'ozone à droite et panneau du bas, les PM_{10} et $PM_{2.5}$ d'après EEA (2016).*

L'évolution des concentrations en Europe dépend fortement du polluant étudié. Ici, seuls les résultats pour les PM_{10}, $PM_{2.5}$, l'ozone et le dioxyde d'azote seront présentés. En 2014, des dépassements ont été constatés pour chaque polluants en Europe (28 pays membres). Si ces résultats étaient calculés selon les recommandations de l'OMS, qui sont plus strictes que les normes européennes, alors les dépassements seraient encore plus nombreux. Les polluants les plus problématiques en termes de dépassement sont les particules : dans 21 pays la limite a été dépassée pour les PM_{10} contre seulement 4 pour les $PM_{2.5}$ en 2014 (*EEA*, 2016). Les dépassements pour les particules, Figure 1.3, sont situés autour des grandes agglomérations (comme Paris), de l'Europe de l'Est et du Benelux (zone densément peuplée) ainsi que de la Vallée du Pô dans le nord de l'Italie (fréquence des phénomènes de stagnation).

Les fortes concentrations d'ozone se situent dans les zones du pourtour méditerranéen (fort ensoleillement) alors que le NO_2 se retrouve dans les zones urbanisées. Concernant l'ozone, 16 pays ont dépassé la limite journalière soit environ 11% des stations européennes contre environ 12% pour le NO_2. Toutefois les tendances sont à la baisse pour chaque pol-

luant, l'EEA note une diminution des concentrations de particules pour 75% des stations par exemple. Lorsque l'on considère l'ozone, les résultats sont plus nuancés. La baisse des concentrations constatée pour les stations rurales reflète celle des précurseurs (section 1.1.3.2). De plus, les maximas d'ozone diminuent alors que l'ozone moyen reste constant, ce qui traduit une baisse des pics de pollution mais une augmentation des niveaux de fond. Finalement, les concentrations de polluants ont tendance à diminuer même si les efforts doivent se poursuivre.

1.1.4 La modélisation de la pollution

La modélisation de la qualité de l'air est un outil permettant de poursuivre divers objectifs allant de la prévision quotidienne à l'étude de l'évolution des concentrations à long terme. A partir des émissions de polluants et de la météorologie le modèle de chimie transport va représenter l'évolution des polluants (transformations chimiques, dépôts...) ainsi que leur transport pour un domaine donné.

La modélisation de la qualité de l'air peut se diviser en trois catégories qui ont des objectifs distincts : la prévision, l'étude de scénario (ou projection) et l'analyse. L'analyse consiste à combiner des données de modèles et des observations afin d'obtenir la meilleure représentativité d'épisodes passés (*Beauchamp et al.*, 2015). La prévision de la qualité de l'air est un outil permettant d'estimer l'évolution pour une courte échéance (J+1 à J+2), la qualité de l'air d'un pays comme la France (système PREV'AIR, (*Rouïl et al.*, 2009)) ou d'un continent comme l'Europe (*Copernicus Atmospheric Monitoring Services* (*Marécal et al.*, 2015)). Enfin l'étude de scénarios prospectifs permet d'évaluer des panels de réduction d'émissions ou même d'étudier l'influence de facteurs tels que le changement climatique sur la qualité de l'air (*Colette et al.*, 2013).

Deux types d'incertitude se distinguent en modélisation de la pollution atmosphérique : l'incertitude du modèle ou incertitude structurelle et celle des forçages du modèle (météorologie et émissions).

De manière générale, la performance du modèle à évaluer la pollution (à travers les mécanismes physico-chimiques implémentés dans le code) (*Menut et al.*, 2013), est est évaluée par comparaison avec des observations (mesures de concentration de polluant aux stations). Afin de la réduire, la mobilisation d'un ensemble de modèles de chimie transport peut être mise en œuvre (*Zyryanov et al.*, 2012). Une plus fine résolution du modèle peut permettre de mieux représenter certains phénomènes mais ne permet pas nécessairement d'améliorer la qualité des prévisions du modèle (*Valari and Menut*, 2008).

Indépendamment de la qualité du modèle et des paramétrisations utilisées, les incertitudes sur les données d'entrées comme les émissions (spatialisation, justesse de l'estimation) et la météorologie jouent un rôle important. Les cadastres d'émissions par nature incertains (quantité non mesurable) et la météorologie, elle même modélisée, sont soumis à des incertitudes qui peuvent être estimées par le biais de la modélisation inverse (*Menut*, 2003).

Par ailleurs, à partir de réalisations issues d'un modèle de chimie transport, des méta-modèles peuvent être conçus pour étudier l'influence des réductions d'émissions sur la qualité de l'air. Parmi l'ensemble des méta-modèles, on peut citer (i) les matrices sources-récepteurs (SRM) établies avec le modèle EMEP (*Simpson et al.*, 2012) pour alimenter l'optimisation

effectuée avec GAINS (*Amann et al.*, 2011) dans le cadre de la Convention sur la Pollution Transfrontière qui associent à une variation des émissions une variation des concentrations à l'echelle d'un pays. en sont un bon exemple ; (ii) l'outil SHERPA (Screening for High Emission Reduction Potential on Air) qui permet de calculer sur l'Europe et pour une fine résolution (environ 7km) l'influence de réductions d'émissions du pays à la région pour différents polluants (*Thunis et al.*; *Clappier et al.*, 2015).

1.2 Le changement climatique

Dans cette section nous présenterons d'abord le changement climatique à l'échelle du globe puis les différents futurs possibles et enfin nous discuterons la spécificité de l'Europe.

1.2.1 Le changement climatique actuel

Depuis l'ère industrielle, les concentrations atmosphériques de gaz à effet de serre (GES) imputables aux activités humaines ont largement augmenté (de 70% entre 1970 et 2004). Les experts affirment donc avec un degré de confiance très élevé que les activités humaines depuis 1750 ont mené au changement climatique actuel. Il se manifeste par une hausse des températures, une élévation du niveau de la mer ainsi qu'un recul de l'étendue des zones couvertes de neige (*IPCC*, 2013b). La température n'est donc pas la seule variable météorologique impactée par le changement climatique. Enfin, la fréquence de certains phénomènes, tels que les vagues de chaleur, les fortes précipitations et les élévations extrêmes du niveau des mers dans le monde s'est probablement accrue (*Pachauri and Reisinger*, 2007).

1.2.2 La modélisation du climat

Le système climatique est créé par les interactions et les évolutions de l'atmosphère, des océans, des calottes glaciaires, de la biosphère... Afin de représenter au mieux ces interactions, des modèles numériques représentant ces différentes composantes (atmosphère, océans...) sont couplés : c'est ce que l'on appelle les modèles du système Terre. Ce type de modélisation permet d'explorer un large panel de climats futurs mais aussi d'explorer les climats passés.

En modélisation du climat, trois types d'incertitudes sont distingués : le scénario employé (politiques de gestions...), la réponse du modèle (aptitude du modèle à simuler le climat) et la variabilité interne (évolution naturelle du climat sans forçage supplémentaire) (*Deser et al.*, 2012). *Hawkins and Sutton* (2009) ont développé une méthode qui permet de découpler l'incertitude globale selon ces trois facteurs et de regarder leur évolutions respectives dans le temps. La variabilité interne et l'incertitude du modèle sont les sources d'incertitudes majoritaires pour les prochaines dizaines d'années. Cependant plus on s'éloigne dans le temps et plus l'incertitude liée au scénario prend de l'ampleur. De plus ils montrent que l'importance des facteurs varie selon le lieu considéré.

1.2.3 Les différents futurs climatiques

Différents futurs climatiques sont établis en se basant sur de nombreuses hypothèses et paramètres. La croissance démographique, les développements économiques et sociaux, ainsi que les choix technologiques font partie des principaux paramètres pris en compte dans la conception de ces scénarii prospectifs. Anciennement appelés *Special Report on Emissions Scenarios* (SRES pour le 4^{ieme} rapport de l'IPCC) et exprimés en quantité de CO_2 émis dans l'atmosphère, ces scénarii expriment désormais l'évolution du forcage radiatif total au sommet de l'atmosphère pour l'année 2100 par rappport à l'année 1750 (en W/m2) et se nomment *Representative Concentration Pathways* (RCP). La famille de scénarios RCP, Figure 1.4, couvre un large panel de futurs possibles. Elle comprend un scénario de mitigation conduisant à un forçage très faible (RCP2.6), deux scénarios de stabilisation (RCP4.5 et RCP6), et un scénario représentatif de très fortes émissions de gaz à effet de serre (RCP8.5) (*van Vuuren et al.*, 2011). Les impacts varient de facon non négligeables en terme de hausse des températures ou de changements dans les régimes de précipitations selon le scénario étudié, la période et l'endroit considérés.

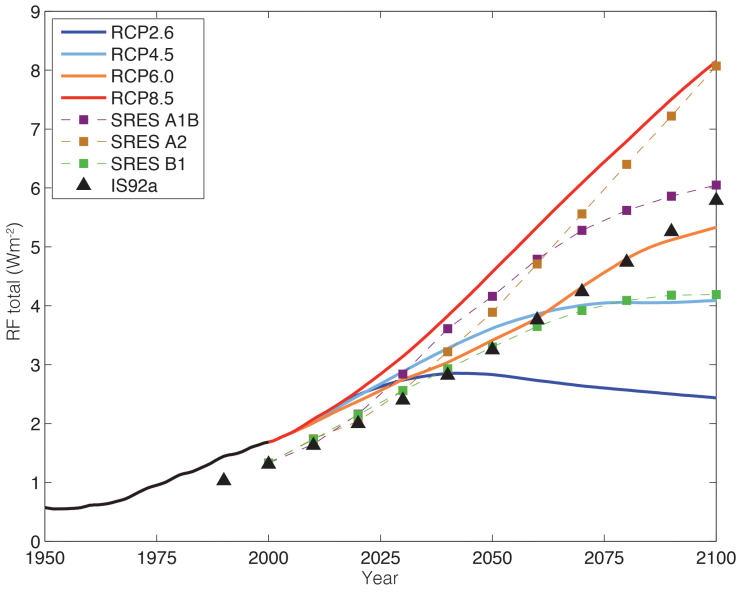


FIGURE 1.4 – *Les différents futurs climatiques en termes de forçage radiatif au sommet de l'atmosphère (W/m2), d'après (IPCC, 2013a).*

La force des RCP réside dans le fait qu'ils ne représentent qu'un forçage radiatif net au sommet de l'atmosphère et que plusieurs trajectoires socio-économiques peuvent mener à un même RCP (*Riahi et al.*, 2017). Ces trajectoires, nommées SSP *Shared Socio-economic Pathways* (*Rao et al.*, 2017), correspondent à différents scénario d'émissions et sont construites en evaluant les politiques publiques actuelles et à venir, ainsi qu'en tenant compte de la démographie (*Klimont et al.*, 2013). Dans le domaine de la qualité de l'air, deux futurs sont

généralement distingués : *Current Legislation Emission* (CLE) et *Maximum Feasible Reduction* (MFR). Le scénario CLE représente un futur qui suit les tendances des dernières années avec une baisse des émissions. Le scénario MFR représente une trajectoire avec des politiques de gestions ambitieuses où les émissions chutent drastiquement.

Ce travail de thèse se focalisera sur le scénario RCP8.5 et ses effets sur l'Europe (*Riahi et al.*, 2011) afin d'avoir un signal majorant lié au changement climatique. Plus en détail, ce scénario décrit un monde où l'absence de politique de gestion du changement climatique règne (i.e. pas de réduction des émissions de gaz à effet de serre). La très forte population (estimée à 12 milliards en 2100) induit une demande croissante en énergie et nourriture qui conduirait à un forçage radiatif global de 8.5 $W.m^{-2}$. Ce forçage mènerait à une augmentation des températures comprises entre 3.7°C et 4.8°C à l'échelle du globe. Cependant, les effets du changement climatique étant spatialement et temporellement variables, il est intéressant de pouvoir descendre d'échelle en passant d'une vision globale à une vision plus fine, à l'échelle d'un continent par exemple.

1.2.4 La régionalisation du changement climatique

Pour étudier les impacts du climat, il est parfois nécessaire d'avoir des informations sur une fine échelle. Ainsi, dans la lignée des travaux de l'IPCC, de nombreux projets se sont succédés afin de mieux comprendre le changement climatique à l'echelle régionale, PRUDENCE (*Christensen et al.*, 2007), ENSEMBLE (*Van der Linden and Mitchell*, 2009) et enfin CORDEX (*Giorgi and Gutowski*, 2015). Ces différentes études se concentrent sur les impacts régionaux du climat pour de nombreuses régions dont l'Europe et quelques futurs climatiques (RCP2.6, RCP4.5 et RCP8.5). Un ensemble de modèles de climat global est raffiné dynamiquement (i.e. au sens d'un zoom) par des modèles de climat régional formant un nouvel ensemble de données avec une échelle spatiale plus fine.

Les projections régionales issues du programme EURO-CORDEX sont employées dans le cadre de cette thèse et décrites brièvement ci-après. *Jacob et al.* (2014), qui utilise l'ensemble de projections climatiques régionales EURO-CORDEX, pointe dans son article un réchauffement significatif entre la période dite historique et le futur projeté pour le RCP8.5 (futur sans politiques ambitieuses d'atténuation du changement climatique). En plus d'être statistiquement significatif, ce changement est simulé par tous les modèles de l'ensemble et donc qualifié de robuste. En revanche, pour les projections de précipitations, les résultats sont plus incertains, c'est le cas pour la France, où les différents modèles de climat ne sont pas en accord.

1.3 Les interactions entre climat et qualité de l'air

Certains polluants contribuent au changement climatique et le changement climatique impacte la qualité de l'air. En effet, les processus géophysiques qui les gouvernent et leurs politiques de gestion les lient fortement (*Alapaty et al.*, 2012). Toutefois ces deux problématiques agissent à des échelles spatio-temporelles différentes : la pollution atmosphérique est

un phénomème à haute fréquence temporelle (horaire à annuelle) avec une étendue spatiale souvent locale ou régionale (*Kulmala et al.*, 2009) alors que le climat est un phénomème à basse fréquence temporelle (annuelle à millénaire) à l'échelle du globe.

Parmi les principaux gaz à effet de serre la vapeur d'eau, principal contributeur naturel, le dioxyde de carbone et le méthane dont la surabondance est provoquée par les activités humaines sont souvent cités. Ces gaz, qui ne sont pas directement nocifs pour l'homme, ne sont pas qualifiés de polluants. Toutefois de nombreuses espèces comme les particules et l'ozone sont à la fois des polluants et des gaz à effet de serre. La Figure 1.5 regroupent des polluants et les classent selon leur temps de résidence dans l'atmosphère et leur étendue spatiale. L'influence de chaque composé varie selon sa durée de vie et son pouvoir radiatif. Les polluants, comme l'ozone, qui ont une durée de vie moyenne et une échelle locale à regionale portent la dénomination de SLCP (*Short-Lived Climate Pollutant*). Mais pour le comprendre, il faut aussi prendre en compte leur pouvoir radiatif qui est présenté dans la partie 1.3.1.

Mais qu'en est-il de l'influence du changement climatique sur ces polluants ? Dans son article, *Alapaty et al.* (2012), dresse un état des lieux de la modélisation des interactions entre qualité de l'air et climat. Il met en évidence des questions scientifiques importantes telles que : quels changements dans la capacité oxydante de l'atmosphère à cause du changement climatique ? Est-ce que le changement climatique affectera la fréquence, l'intensité et la nature des extrêmes ? Est-ce qu'il affectera les niveaux moyens de pollution ainsi que les émissions biogéniques ? Quels changement pour les températures et comment cela va-t-il impacter la hauteur de la couche limite et donc les concentrations de polluants dans la couche limite ? Parmi ces différentes questions, cette thèse traite de l'impact du changement climatique sur les niveaux moyens de pollution atmosphérique en Europe. L'impact du climat sur la qualité de l'air sera introduit dans la partie 1.3.2 et developpé tout au long du manuscrit.

1.3.1 L'impact de la pollution sur le changement climatique

Certains polluants (regroupé dans la Figure 1.6) jouent un rôle important dans le bilan radiatif terrestre selon l'IPCC (*IPCC*, 2013a). Leur action peut être directe (augmentation du bilan radiatif de l'atmosphère par exemple) ou indirecte (augmentation de la formation des nuages). La Figure 1.6 regroupe le pouvoir radiatif (i.e. capacité de réchauffer ou refroidir l'atmosphère) et l'incertitude associée des principaux polluants et gaz à effets de serre. Le forçage anthropique total conduit à un réchauffement de l'atmosphère de l'ordre de 2.3 $W.m^{-2}$ par rapport à l'influence naturelle (i.e. éruptions volcaniques et rayonnement solaire) comprise entre 0 et 0.5 $W.m^{-2}$ en 2011 par rapport à 1750. Ce forçage lié aux activités humaines est décliné par espèce. Parmi les plus grands contributeurs, le dioxyde de carbone ainsi que les autres WMGHG (*Well Mixed Greenhouse Gases*) comme le méthane dominent. Leur important pouvoir radiatif (avec de plus une forte confiance dans ses résultats) provient de leur stabilité dans l'atmosphère. En effet, plus un composé est stable, plus sa durée de vie augmente et plus son action perdurera. A contratio, certaines influences comme celle des contrails (nuages provoqués par le passage d'un avion), ou le pouvoir de réflexion du sol (albedo) sont bien moindre et surtout bien moins connues (taux de confiance faible).

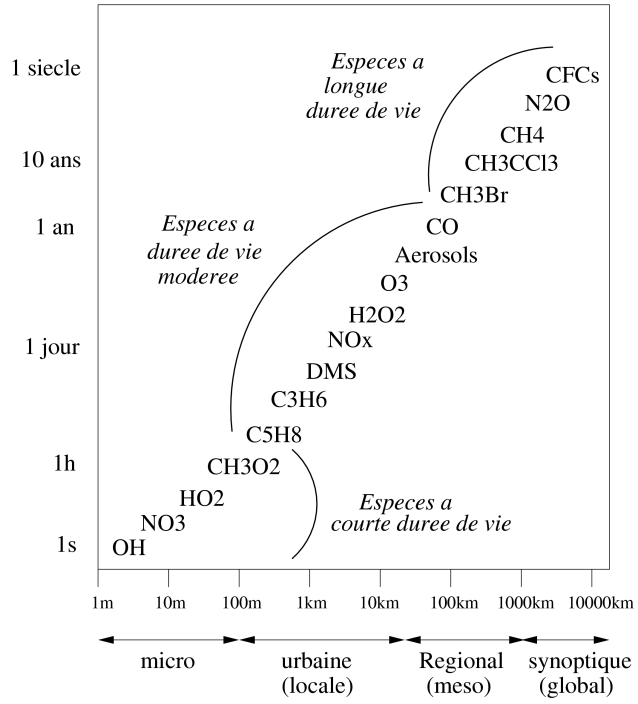


FIGURE 1.5 – *Classement des polluants en fonction de leur durée de résidence dans l'atmosphère et donc de leur étendue spatiale, d'après Seinfeld and Pandis (2012).*

Parmi les gaz à effet de serre qui sont aussi des polluants, l'ozone et les particules se distinguent. L'ozone troposphérique induit un réchauffement de l'atmosphère de par sa capacité à absorber le rayonnement. Son pouvoir radiatif est supérieur à celui du CO_2 mais son temps de résidence dans l'atmosphère plus faible (quelques jours, semaines seulement Figure 1.5) ainsi que son abondance moindre, font qu'il pèse moins sur le bilan radiatif global terrestre. L'appauvrissement par les hydrocarbures halogénés anthropiques de l'ozone stratosphérique, aussi surnommé "bon ozone" (celui qui nous protège du rayonnement UV), induit une baisse du pouvoir radiatif. Concernant les aérosols, les incertitudes sont plus grandes. L'impact des aérosols est lié à de multiples processus qui peuvent être classés en deux catégories : les interactions aérosols-rayonnement (réflexion ou absorption) et les interactions aérosols-nuages (noyaux de condensation). Si les particules sont considérées dans leur globalité, ils tendent à refroidir l'atmosphère. Cependant le type d'aérosols est un paramètre important. En effet, de par leur grande diversité des effets antagonistes apparaissent : le carbone suie absorbe le rayonnement et réchauffe l'atmosphère alors que les poussières telluriques, les sulfates ou le carbone organique réfléchissent une partie du rayonnement et refroidissent l'atmosphère. En plus de ces effets directs, des effets indirects s'ajoutent. Les aérosols participent à la formation des nuages en servant de noyaux de nucléation, or s'il y a plus d'aérosols alors la probabilité de former des nuages augmente et cela pourrait refroidir l'atmosphère. Nous remarquons cependant que ces deux phénomènes sont encore liés à de fortes incertitudes et à un degré de confiance moyen voire faible.

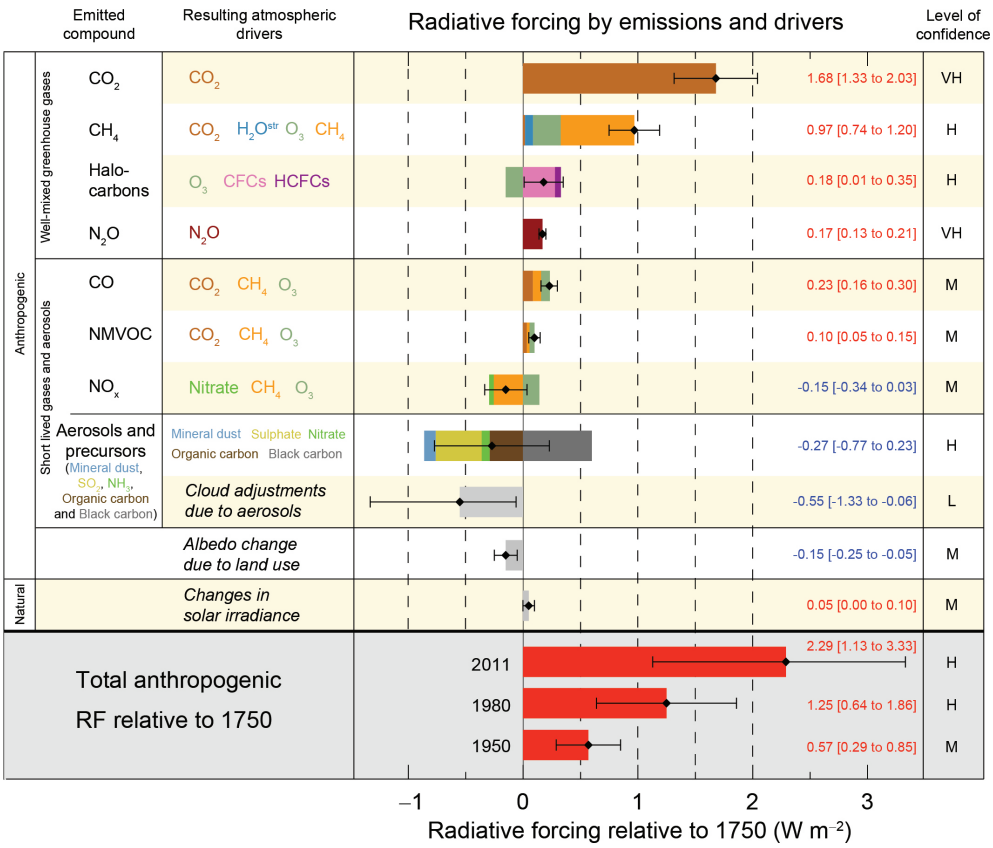


FIGURE 1.6 – *Représentation de l'influence des gaz et des particules sur le bilan radiatif terrestre d'après IPCC (2013a)*

En étudiant uniquement l'impact de la pollution sur le changement climatique, seul un des aspects du problème est considéré. La prise en compte de l'impact du climat sur la qualité de l'air et des rétroactions possibles entre pollution et climat est primordial. Dans la partie suivante, l'influence du climat sur la qualité de l'air est donc abordée.

1.3.2 L'impact du changement climatique sur la qualité de l'air

La pollution atmosphérique résulte de fortes émissions de polluants (et de leurs précurseurs) et de conditions météorologiques défavorables (stagnation par exemple). L'évolution du climat va entraîner des modifications météorologiques : changement dans les régimes de précipitations, de circulation atmosphérique. Cela va affecter le transport, les émissions et la chimie atmosphérique ce qui se répercutera sur la qualité de l'air. L'exemple de l'impact des vagues de chaleur sur la pollution à l'ozone est souvent cité afin d'illustrer cet effet (*Vautard et al.*, 2005). Afin de s'assurer que les stratégies de gestion de la qualité de l'air conçues aujourd'hui demeurent opérantes à long terme, il est important d'étudier l'effet du changement climatique sur la qualité de l'air.

Jacob and Winner (2009) proposent une revue des études évaluant l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air. L'influence des principales variables météorologiques (température, stagnation, précipitation) sur l'ozone et les particules sont regroupés dans le Tableau 1.2 ci-dessous.

Variable	Ozone	PM
Température	++	-
Episode de stagnation	++	++
Vitesse du vent	-	-
Hauteur de la couche limite	=	- -
Humidité	=	+
Couverture nuageuse	-	-
Précipitation	=	- -

TABLE 1.2 – *Lien entre différentes variables météorologiques de surface et qualité de l'air. Les impacts des variables sur les polluants sont résumés par (++) régulièrement positif, (+) couramment positif, (=) faible ou variable, (-) couramment négatif et (- -) régulièrement négatif d'après Jacob and Winner (2009).*

L'ensemble de ces relations sont issues d'études de sensibilité. Ce type d'étude correspond à l'analyse de la réponse du système à une perturbation incrémentale d'une variable météorologique d'entrée, indépendamment des autres, dans un modèle de chimie-transport. Elles permettent de mieux identifier les processus déterminants les concentrations des polluants. D'après le Tableau 1.2, une augmentation de la température ou de la stagnation traduit généralement une hausse de l'ozone. Certaines variables comme le vent ou la couverture nuageuse auraient tendance à diminuer les concentrations d'ozone (respectivement le phénomène de dispersion et celui d'atténuation du rayonnement). A contrario les précipitations ont peu d'influence sur l'ozone (peu sensible au dépôt humide). Concernant les aérosols, les variables principales changent sauf la stagnation qui est toujours propice à l'apparition de fortes concentrations. A l'inverse, la hauteur de couche limite et les précipitations sont des variables clefs dans la diminution des concentrations via la dilution et le dépôt humide, respectivement. *Megaritis et al.* (2014) montre aussi que les concentrations de $PM_{2.5}$ diminuent avec une hausse de la température. De plus, ils soulignent que leurs concentrations sont plus sensibles à une variation de température qu'aux autres facteurs tels que le vent ou la hauteur de couche limite (alors que pour (*Jacob and Winner*, 2009), la hauteur de la couche limite et les précipitations dominent) par exemple.

Ces études de sensibilité apportent des informations intéressantes sur les processus clefs mais le changement climatique va modifier simultanément plusieurs paramètres. Comme les processus de formations des polluants et l'influence des conditions climatiques sont non linéaires, l'utilisation de projections climatiques régionales en entrée d'un modèle de chimie transport est requise pour mieux cerner l'impact du changement climatique sur la pollution. De nombreuses études ont employées une chaine de modélisation du climat et de la qualité de l'air afin d'évaluer l'impact du climat sur la pollution atmosphérique. Il s'agit ici de forcer un

modèle de qualité de l'air avec des champs météorologiques issus de projections climatiques. En mobilisant ce type de technique, *Colette et al.* (2013, 2015); *Meleux et al.* (2007); *Huszar et al.* (2011); *Katragkou et al.* (2011); *Jiménez-Guerrero et al.* (2012); *Manders et al.* (2012); *Juda-Rezler et al.* (2012); *Langner et al.* (2012a,b); *Varotsos et al.* (2013); *Lacressonnière et al.* (2014); *Lacressonnière et al.* (2016); *Watson et al.* (2016); *Fortems-Cheiney et al.* (2017) trouvent une augmentation des concentrations d'ozone, à l'échelle de l'Europe, plus ou moins importante selon le modèle de climat ce qui prouve une certaine robustesse. Concernant les particules fines, les résultats sont plus incertains. *Manders et al.* (2012); *Lacressonnière et al.* (2016); *Lacressonnière et al.* (2017) pointent une pénalité du climat (i.e. augmentation des concentrations liée au changement climatique) sur les particules alors que *Huszar et al.* (2011); *Juda-Rezler et al.* (2012); *Colette et al.* (2013); *Lecœur et al.* (2014) identifient un bénéfice (i.e. diminution des concentrations de $PM_{2.5}$ à l'échelle de l'Europe grâce à l'évolution du climat). Cependant ces études sont en général réalisées avec une unique source de données climatiques (ou deux) alors qu'en modélisation, la mobilisation d'ensemble peut réduire ces incertitudes. L'incertitude climatique n'est donc pas pleinement couverte. *Lacressonnière et al.* (2016); *Lacressonnière et al.* (2017), dans ses études impliquant trois modèles de chimie transport différents (mais chacun étant forcé par un seul modèle de climat), illustrent bien ces incertitudes sur le signe de l'impact du changement climatique sur les particules fines. En effet, en ne regardant que l'impact du climat, les trois modèles ne présentent peu ou pas d'accord sur le bénéfice ou la pénalité climatique pour les concentrations futures de particules. C'est pourquoi on s'est attaché dans cette thèse à mieux prendre en compte l'incertitude pour quantifier l'impact du climat sur la qualité de l'air.

1.4 Objectifs et plan de la thèse

Nous avons présenté dans cette introduction dans quelle mesure la qualité de l'air contribue au changement climatique et le changement climatique impacte la pollution atmosphérique. Dans le cadre de cette thèse on s'intéresse à l'évolution de la qualité de l'air à long terme. Dans cette perspective, nous avons choisi de nous focaliser sur l'impact du changement climatique et de l'évolution des émissions de polluants sur la qualité de l'air plutôt que sur l'impact de certains polluants sur le climat.

Afin de répondre à cette problématique, la modélisation permet de considérer des longues échelles de temps telles que celles qui nous intéressent. S'il existe aujourd'hui un corpus important d'études à ce sujet, on peut regretter que les incertitudes n'aient pas été explorées de manière systématique. On trouve un certain nombre d'articles où sont mis en œuvre des modèles de chimie transport forcés par des modèles de climat. Si ces études reposent sur une diversité appréciable de forçages climatiques, ceux-ci sont associés à des modèles de chimie-transport tout aussi diverses. De telle sorte qu'il demeure difficile de conclure quant aux incertitudes spécifiques aux projections climatique en termes d'impact sur la qualité de l'air. La mise en place de modélisations climatiques d'ensemble avec un unique modèle de qualité de l'air permettrait de quantifier les incertitudes associées à l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air. Cependant du fait de l'important coût de calcul et des

difficultés à obtenir des modélisations fines pour tous ces modèles de climat, la mise en œuvre de cette technique est complexe. Au cours de cette thèse, nous allons donc mettre en œuvre **des méta-modèles de qualité de l'air constituant une méthode alternative à la mise en place d'ensemble pour caractériser l'impact des émissions et de la météorologie sur la qualité de l'air dans un contexte de changement climatique**.

Pour hiérarchiser les différents processus impactant la pollution, l'étude sera structurée afin de répondre aux questions suivantes :

- **Comment quantifier les incertitudes relatives à l'impact du changement climatique sur la pollution atmosphérique régionale ?** Une nouvelle méthode est développée et présentée dans le chapitre 2. Cette méthode est basée sur l'utilisation de modèles statistiques linéaires et GAM (Generalized Additive Models) calibrés sur différents jeux de simulations de projections climatiques pour la météorologie et les concentrations chimiques atmosphériques correspondantes simulées avec un modèle de qualité de l'air. La méthode est appliquée à l'ozone et aux particules fines en Europe. En l'utilisant de manière exploratoire, le modèle statistique permet d'identifier les principaux facteurs météorologiques. Lorsqu'on l'utilise de manière prédictive, cette méthode permet d'étudier un ensemble de projections climatiques sans avoir recours à un modèle de chimie transport afin de qualifier l'impact du climat. On pourra alors aussi sélectionner un sous-ensemble de modèles régionaux qui devraient être utilisé en priorité pour explorer de futures projections déterministes.
- **Quelle erreur est induite par l'utilisation d'une météorologie dégradée en amont d'un modèle de chimie transport ?** Sachant que les modèles climatiques régionaux sont disponibles sous des formes plus ou moins dégradées en termes de résolution verticale, une étude de sensibilité est présentée dans le chapitre 3. Il s'agira en particulier d'estimer l'erreur induite par l'utilisation de données climatiques disponibles à une résolution verticale dégradée. On pourra alors conclure si l'emploi des projections régionales EURO-CORDEX comme forçage du modèle CHIMERE est réalisable et ne génére pas des erreurs de modélisation supérieures à la variabilité du changement climatique.
- **Peut-on quantifier l'impact relatif des émissions et du changement climatique sur les concentrations de polluants ?** Le chapitre 4, s'appuie sur la méthode développée dans le chapitre 2 en ce qui concerne l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air. Il sera mis en perspective avec l'impact induit par l'évolution des émissions de polluants et de leur précurseur, aussi estimé avec un méta-modèle reconstruit à partir de relations source-récepteur. L'influence des conditions aux limites ne sera pas mise en perspective avec les autres.

Les conclusions et perspectives sont présentées dans le chapitre 5.

2 La qualité de l'air dans le contexte de changement climatique

Pour quantifier l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air, l'approche privilégiée consiste à réaliser des **simulations déterministes** avec des modèles de climat et de chimie-transport régionaux. On peut alors réaliser des modélisations de qualité de l'air en utilisant alternativement des champs météorologiques d'entrée représentatifs du climat actuel ou futur. Ces études sont devenues répandues depuis une dizaine d'années. Mais on constate qu'à cause du coût de calcul et de stockage, aucun des travaux publiés ne repose sur un réel ensemble de forçage climatiques qui permettrait de bien comprendre les incertitudes.

Ce chapitre présente le **développement d'une méthode statistique**, utilisant comme ensemble d'apprentissage des simulations régionales couvrant plusieurs décennies réalisées avec les modèles IPSL/WRF pour la météorologie et CHIMERE pour la chimie-transport. Utilisé en mode descriptif, le méta-modèle permet d'identifier les variables météorologiques qui influent le plus sur les valeurs de concentrations en surface. Si on l'utilise en mode prédictif à partir d'un ensemble de projections climatiques, le modèle statistique offre une **quantification de l'impact du changement climatique sur la pollution atmosphérique et des incertitudes associées**.

Le développement et la validation de cette nouvelle approche sont présentés dans la section 2.1 où l'on montrera aussi dans quelle mesure ce méta-modèle peut être utilisé pour évaluer l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air en moyenne de long terme. Afin de voir si la méthode peut aussi être appliquée à des extrêmes, son application à un épisode de pollution observé dans le Nord de la France pendant le mois de Décembre 2016 est présenté dans la section 2.2.

2.1 Une nouvelle méthode d'exploration d'ensemble de projection climatique pour la qualité de l'air

Cette section reprend l'article *"Using statistical models to explore ensemble uncertainty in climate impact studies : the example of air pollution in Europe"*, publié en 2016 dans Atmos.Chem.Phys. Un résumé long est proposé, puis le manuscrit de l'article publié est reproduit.

2.1.1 Résumé de l'article

La composition chimique atmosphérique dépend des émissions de polluants (primaires et précurseurs des polluants secondaires), de la météorologie et de la chimie atmosphérique.

Dans le cadre de cette étude, **on se focalise sur l'impact de changement climatique sur les concentrations de polluants atmosphériques**.

On se concentre ici sur l'Europe, zone fortement anthropisée et sensible à la pollution atmosphérique, qui sera divisée en 8 régions : les Iles Britanniques (BI), la Péninsule Ibérique (IP), la France (FR), l'Europe Centrale (ME), la Scandinavie (SC), l'Italie du Nord (NI), la Méditerranée (MD) et l'Europe de l'Est (EA). Ces régions sont présentées sur la Figure 2.1. Les polluants ciblés sont les plus préoccupants en terme d'impact environnemental et sanitaire, à savoir, l'ozone et les particules fines ($PM_{2.5}$).

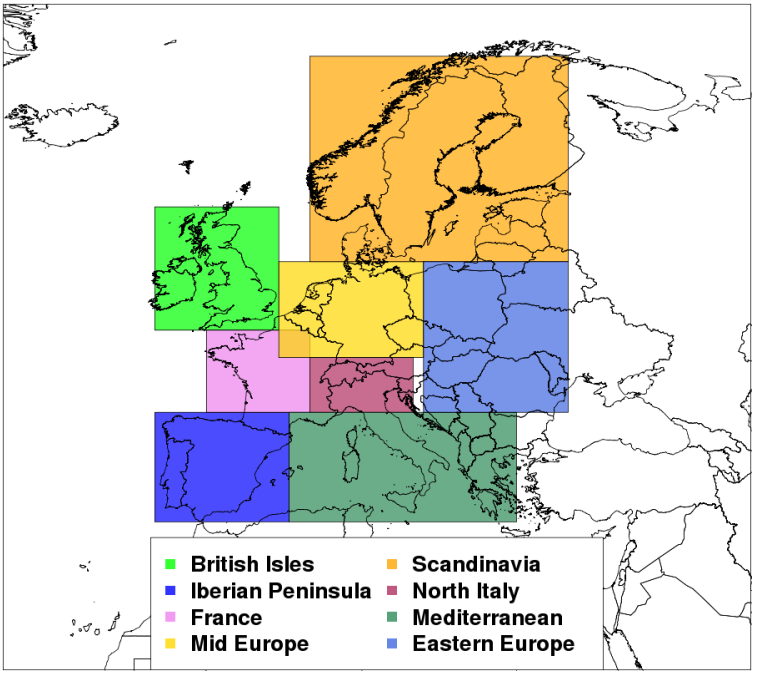


FIGURE 2.1 – *Carte d'Europe avec les régions définies pour présenter les résultats moyennés spatialement. Ces zones reprennent les choix faits dans le projet Européen PRUDENCE.*

Le modèle statistique est construit sur un ensemble d'apprentissage (1976-2005) et testé sur un ensemble de validation (2071-2100) qui ont été réalisés avec un système de modélisation régionale du climat (IPSL/WRF) et de la qualité de l'air (CHIMERE). Ce système de modélisation comprend une hiérarchie de modèles de climat et chimie couvrant l'échelle globale à continentale et permettant de produire des projections à long terme sur l'Europe. Afin de quantifier uniquement l'effet du changement climatique, les émissions de polluants restent inchangées dans cette étude (2010 année de référence).

Plus généralement le modèle de chimie transport CHIMERE (développé par le CNRS et l'INERIS) permet de calculer à partir de données de météorologie et de flux d'émissions des champs tridimensionnels horaires de concentrations de polluants dans l'atmopshère (*Menut et al.*, 2013). Le modèle CHIMERE est équipé d'un schéma chimique comprenant plus d'une centaine de réaction et permet de modéliser la formation et l'évolution des gaz tels que

l'ozone ainsi que des particules atmosphériques. Les aérosols dans CHIMERE sont constitués d'espèces primaires émises directement par les activités humaines, d'espèces secondaires formées dans l'atmosphère telles que les sulfate, nitrate, ammonium et espèces organiques secondaires mais également naturelle comme les sels marins (contenant du Cl). Plus d'une centaine de composés gazeux sont modélisés dont l'ozone, les oxydes d'azote, le dioxyde de soufre et les particules.

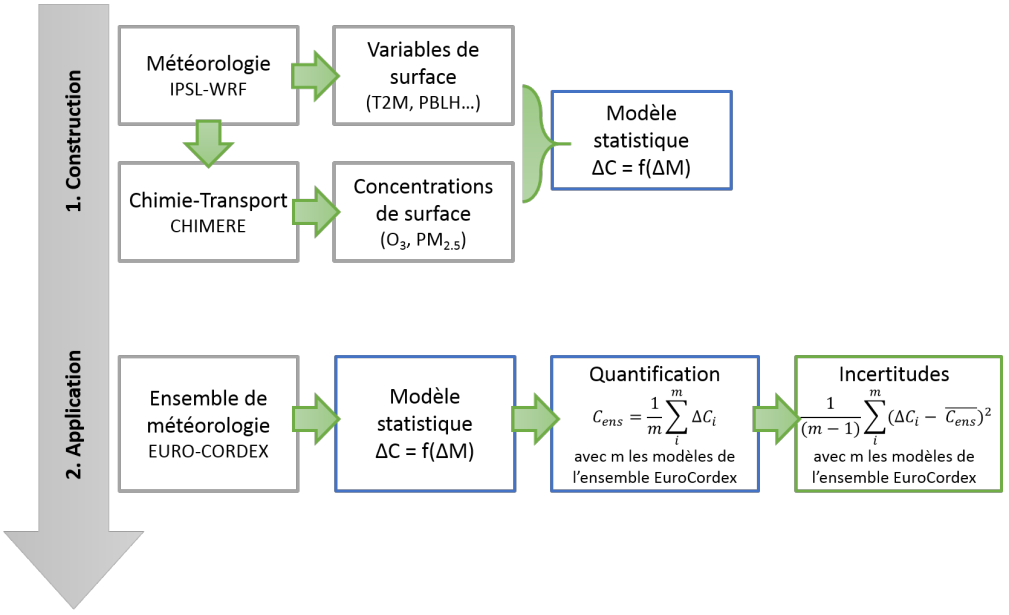


FIGURE 2.2 – *Schéma logique reprenant les différentes étapes (construction et application) de la méthode statistique présentée.*

On effectue d'abord une analyse des corrélations entre les principales variables météorologiques (température, précipitations, hauteur de couche limite...) et l'ozone ou les $PM_{2.5}$ dans l'ensemble d'apprentissage. Puis des modèles statistiques (modèles additifs généralisés, GAM) sont construits afin de prédire les concentrations de polluant à partir des deux variables météorologiques dominantes. Cette méthodologie est présentée sur la Figure 2.2.

Les modèles additifs généralisés ont été inventés par Trevor Hastie et Robert Tibshirani en 1986 (*Hastie and Tibshirani*, 2004). Un modèle additif généralisé représente une extension du modèle linéaire généralisé (GLM) (*Wood*, 2006). Contrairement aux GLM (et aux autres modèles linéaires), le lien entre les prédicteurs et la variable (i.e. X et Y) à expliquer peut être non linéaire équation 2.1. Le GAM est un outil flexible mais lors de sa détermination, il faut être prudent afin d'éviter le sur-apprentissage (i.e. que le modéle devienne trop sensible aux données d'entrées et perde ses capacités predictives pour de nouvelles données).

D'un point de vue mathématique, le GAM est une technique de modélisation additive où l'impact des variables prédictives est capturé par des fonctions de lissage (*smooth function*) qui selon la forme des données peuvent être non-linéaires. La structure d'un GAM peut

s'écrire de la façon suivante :

$$g(E(Y|X_1, X_2, ..., X_p)) = \alpha + f_1(X_1) + f_2(X_2) + ... + f_p(X_p) \tag{2.1}$$

avec Y la variable à expliquer, E(Y) l'espérance mathématique, g(Y) la fonction de lien qui lie E(Y) aux prédicteurs X_1, X_2, ..., X_p. Les termes f_1, f_2, ..., f_p représentent des fonctions de lissage non paramétrique appliquées aux prédicteurs. Cela signifie que la forme des fonctions est entièrement déterminées par les données par opposition aux fonctions paramétriques qui sont définies par quelques paramètres. Cela permet donc une estimation plus flexible des modèles sans connaissance particulière sur leurs formes. Dans notre cas, les f_i sont des splines cubiques, les prédicteurs sont les deux variables météorologiques dominantes (moyenne journalière sur les 30 ans de l'historique) et la fonction de lien est la fonction identité (distribution des valeurs assumées gausiennes).

Par la suite, ces modèles statistiques sont testés afin de juger de leur habilité à reproduire les concentrations (ensemble d'apprentissage) et à les prédire (ensemble de validation). On pourra aussi chercher à situer des projections climatiques dans l'espace des paramètres météorologiques les plus importants pour la qualité de l'air. Pour ce faire, les GAM seront utilisées pour construire des isoplèthes de concentration auxquelles on ajoutera les projections de chaque modèle de climat régional. L'analyse de ces isoplèthes nous conduira à estimer la robustesse des impacts du changement climatique sur la qualité de l'air en Europe et à identifier les modèles de climat à utiliser en priorité dans d'éventuelles futures simulations deterministes, Figure 2.3. C'est pourquoi on a parlé ici d'une nouvelle méthode d'explorations d'ensemble.

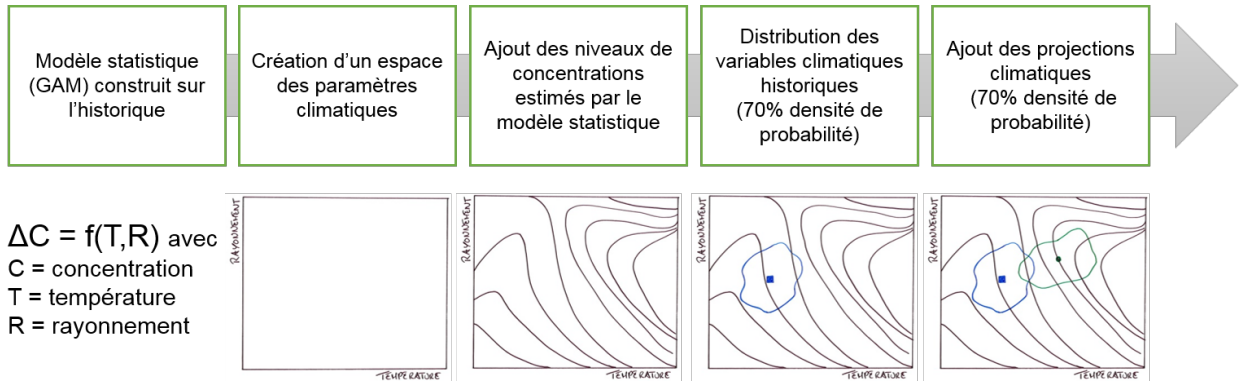


FIGURE 2.3 – *Illustration de la mise en place de la construction du modèle statistique.*

La méthode a été appliquée à un ensemble de modèles climatiques régionaux issus du programme EURO-CORDEX pour le scénario RCP8.5 - sans politique d'atténuations - et la fin du siècle (2071-2100). Les principaux facteurs météorologiques identifiés par les modèles statistiques sont (i) pour les $PM_{2.5}$: la hauteur de couche limite et la température et (ii) pour l'ozone : la température et le rayonnement solaire. Les régions sélectionnées, celles pour lesquelles le pouvoir prédictif du modèle est jugé satisfaisant, sont l'Europe de l'Est,

l'Europe Centrale et l'Italie du Nord pour les particules fines. Concernant l'ozone, les régions sélectionnées sont l'Europe de l'Est, la France, la Péninsule Ibérique, l'Europe Centrale et l'Italie du Nord.

Un bénéfice climatique est identifié pour les $PM_{2.5}$ avec une moyenne d'ensemble (écart type) de 1,08 (± 0,21) $\mu g.m^{-3}$, -1,03 (± 0,32) $\mu g.m^{-3}$ et -0,83 (± 0,14) $\mu g.m^{-3}$ pour respectivement les régions EA, ME and NI. C'est l'augmentation de température qui fait baisser les concentrations de $PM_{2.5}$ (en faisant évoluer l'équilibre gaz/particule). Si la hauteur de couche limite est un facteur important pour la variabilité, elle évolue peu dans un climat futur et a donc peu d'impact. On note que les précipitations ne sont pas identifiées comme un facteur essentiel. Cela est peut-être dû à un biais de la méthode. En effet, même si le GAM semble être en mesure de capturer l'influence de la pluie sur les concentrations de particules, appliquer une transformation "log" à la pluie aurait certainement permis une meilleure prise en compte de celle-ci. On sait que ce n'est pas tant la quantité de pluie que la fréquence qui impacte le plus la pollution aux particules à travers le processus de dépôt humide. Pour les régions sélectionnées, la pénalité climatique pour l'ozone est confirmée : 10,51 (± 3,06) $\mu g.m^{-3}$, 11,70 (± 3,63) $\mu g.m^{-3}$, 11,53 (± 1,55) $\mu g.m^{-3}$, 9,86 (± 4,41) $\mu g.m^{-3}$, 4,82 (± 1,79) $\mu g.m^{-3}$ pour respectivement EA, FR, IP, ME and NI.

Une méthode statistique permettant l'évaluation de l'impact du climat sur la qualité de l'air a été mise en place et testée. Elle a permis de confirmer la pénalité climatique pour l'ozone (*Colette et al.*, 2015), ce qui est en accord avec la littérature et d'identifier un bénéfice climatique pour les $PM_{2.5}$ qui avait aussi été mis en avant par le passé (*Lecœur et al.*, 2014).

La principale force de cette approche est l'emploi du récent ensemble de projections climatiques EURO-CORDEX alors que les travaux relatifs à l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air, publiés dans la littérature, couvrent partiellement l'incertitude des projections climatiques (généralement un à deux modèles de climat pour forcer un modèle de chimie transport). En proposant d'utiliser un méta-modèle de qualité de l'air, il devient possible de prendre en compte des ensembles de projections, même si le modèle utilisé est légèrement dégradé par rapport à un modèle de chimie transport complet. Ainsi, les résultats devront, in fine, être comparés à des projections explicites reposant sur l'emploi d'un modèle de chimie transport. Mais cela pourra aussi être facilité grâce au méta-modèle qui permettra de cibler en priorité un sous-ensemble de forçages climatique représentatif de l'ensemble EuroCordex spécifiquement pour la thématique de la qualité de l'air en Europe.

2.1.2 Manuscrit de l'article publié

Atmos. Chem. Phys., 16, 2559–2574, 2016
www.atmos-chem-phys.net/16/2559/2016/
doi:10.5194/acp-16-2559-2016
© Author(s) 2016. CC Attribution 3.0 License.

Atmospheric Chemistry and Physics Open Access EGU

Using statistical models to explore ensemble uncertainty in climate impact studies: the example of air pollution in Europe

Vincent E. P. Lemaire[1], Augustin Colette[1], and Laurent Menut[2]

[1]Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques (INERIS), Verneuil en Halatte, France
[2]Laboratoire de Météorologie Dynamique, UMR CNRS8539, Ecole Polytechnique, Ecole Normale Supérieure, Université P.M. Curie, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Palaiseau, France

Correspondence to: Vincent E. P. Lemaire (vincent.lemaire-etudiant@ineris.fr)

Received: 29 July 2015 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 21 October 2015
Revised: 11 February 2016 – Accepted: 22 February 2016 – Published: 2 March 2016

Abstract. Because of its sensitivity to unfavorable weather patterns, air pollution is sensitive to climate change so that, in the future, a climate penalty could jeopardize the expected efficiency of air pollution mitigation measures. A common method to assess the impact of climate on air quality consists in implementing chemistry-transport models forced by climate projections. However, the computing cost of such methods requires optimizing ensemble exploration techniques.

By using a training data set from a deterministic projection of climate and air quality over Europe, we identified the main meteorological drivers of air quality for eight regions in Europe and developed statistical models that could be used to predict air pollutant concentrations. The evolution of the key climate variables driving either particulate or gaseous pollution allows selecting the members of the EuroCordex ensemble of regional climate projections that should be used in priority for future air quality projections (CanESM2/RCA4; CNRM-CM5-LR/RCA4 and CSIRO-Mk3-6-0/RCA4 and MPI-ESM-LR/CCLM following the EuroCordex terminology).

After having tested the validity of the statistical model in predictive mode, we can provide ranges of uncertainty attributed to the spread of the regional climate projection ensemble by the end of the century (2071–2100) for the RCP8.5.

In the three regions where the statistical model of the impact of climate change on $PM_{2.5}$ offers satisfactory performances, we find a climate benefit (a decrease of $PM_{2.5}$ concentrations under future climate) of -1.08 (± 0.21), -1.03 (± 0.32), -0.83 (± 0.14) $\mu g\,m^{-3}$, for respectively Eastern Europe, Mid-Europe and Northern Italy. In the British-Irish Isles, Scandinavia, France, the Iberian Peninsula and the Mediterranean, the statistical model is not considered skillful enough to draw any conclusion for $PM_{2.5}$.

In Eastern Europe, France, the Iberian Peninsula, Mid-Europe and Northern Italy, the statistical model of the impact of climate change on ozone was considered satisfactory and it confirms the climate penalty bearing upon ozone of 10.51 (± 3.06), 11.70 (± 3.63), 11.53 (± 1.55), 9.86 (± 4.41), 4.82 (± 1.79) $\mu g\,m^{-3}$, respectively. In the British-Irish Isles, Scandinavia and the Mediterranean, the skill of the statistical model was not considered robust enough to draw any conclusion for ozone pollution.

1 Introduction

The main drivers of air pollution are (i) emission of primary pollutants and precursors of secondary pollutants, (ii) long-range transport, (iii) atmospheric chemistry and (iv) meteorology (Jacob and Winner, 2009). We can thus anticipate that air quality is sensitive to climate change taking as example the link between heat waves and large-scale ozone episodes (Vautard et al., 2005). But in addition to the direct impact of climate change on air pollution through the change in frequency and severity of synoptic conditions conducive to the accumulation of air pollutants we must also note that climate can have an impact on anthropogenic and biogenic emission of pollutants and precursors (Langner et al., 2012b) as well as on changes in the global background of pollution, and therefore long-range transport (Young et al., 2013). There is therefore a concern that in the future, climate change could jeopar-

Published by Copernicus Publications on behalf of the European Geosciences Union.

dize the expected efficiency of pollution mitigation measures, even if the available studies indicate that if projected emission reductions are achieved they should exceed the magnitude of the climate penalty (Colette et al., 2013; Hedegaard et al., 2013).

The most widespread technique used to assess the impact of climate change on air quality consists in implementing regional climate projections in Chemistry Transport Models (CTM) (Jacob and Winner, 2009). The computational cost of such technique is substantial given that it involves multi-annual global climate simulations, dynamical downscaling through regional climate simulations and ultimately CTM simulations. Besides the computational cost, it also raises technical difficulties in collecting, transferring, and managing large amounts of model data. Unlike many climate impact studies, CTM projections require Regional Climate Model fields in three dimensions and at high temporal frequency, whereas many regional climate modelling groups only store a few vertical levels in compliance with the CORDEX data archiving protocols. Altogether, these difficulties led to the use of a single source of climate projections in the majority of future air quality projections (Meleux et al., 2007; Katragkou et al., 2011; Jiménez-Guerrero et al., 2012; Langner et al., 2012b; Colette et al., 2013, 2015; Hedegaard et al., 2013; Varotsos et al., 2013) or two at most in published studies (Huszar et al., 2011; Juda-Rezler et al., 2012; Langner et al., 2012a; Manders et al., 2012). There are examples where more than two climate forcings are used, but then they are implemented with different CTMs, so that the uncertainties in the spread of RCM and CTMs is aggregated, thereby offering a poor understanding of the climate uncertainty. In addition, it should be noted that the choice of the climate driver is generally a matter of opportunity rather than an informed choice. These studies capture trends and variability but their coverage of uncertainty is not satisfactory in the climate change context. This unsatisfactory handling of uncertainties is well illustrated by the divergence in the very sign of the impact of climate change on particulate matter (e.g. Lecœur et al., 2014, find a climate benefit for $PM_{2.5}$ in Europe while Manders et al., 2012, suggest the opposite). Thus the lack of multi-model approach in air quality projections is a serious caveat that needs to be tackled in order to comply with best practices in the field of climate impact research, where ensemble approaches is state of the art.

Hence, in order to assess the climate uncertainties on surface ozone and particulate matter over Europe in a changing climate, we developed an alternative method which does not require forcing a CTM with an ensemble of climate models. It consists in developing a statistical model fitted to a deterministic CTM simulation forced by a single RCM that can be subsequently applied to a larger ensemble of regional climate projections. This method allows selecting the members of the RCM ensemble that offer the widest range in terms of air quality response, somehow the "air quality sensitivity to climate change projections". These selected members should be used in priority in future air quality projections. A byproduct of our statistical air quality projections is that we explore an unprecedented range of climate uncertainty compared to the published literature that relies, at best, on two distinct climate forcings. The confidence we can have in these statistical projections is of course limited by the skill of the statistical model. Our approach of using a simplified air quality impact model but with a larger range of climate forcing can therefore be considered complementary with the more complex CTMs used with a limited number of climate forcings. The use of such a methodology is inspired from earlier work in the field of hydrology, where Vano and Lettenmaier (2014) estimated future stream-flow by using a sensitivity-based approach which could be applied to generate ensemble simulations. Such a hybrid statistical and deterministic approach has also been used in the past in the field of air quality, but mostly for near-term and local forecasting, relying on statistical models of various complexity (i.e. Land Use Regression, Neural Network, Nonlinear regression, Generalized Additive Models etc.) (Prybutok et al., 2000; Schlink et al., 2006; Slini et al., 2006). The most relevant example in the context of future air quality projection is that of Lecœur et al. (2014), who used the technique of wind regime analogues, although they did not apply their approach to an ensemble of climate projections.

This paper deals with all the steps needed to build the proxy of ensemble. First (Sect. 2) we present the methods and input data: the design of the statistical model of the air quality response to meteorological drivers is presented as well as the deterministic modelling framework used to create our training data set. Section 3 focuses on results. The deterministic air quality projections are presented for ozone peaks and $PM_{2.5}$ in Sect. 3.1. The selected statistical models for each region are evaluated in Sect. 3.2 for ozone, $PM_{2.5}$ and each sub-constituent of the particulate matter mix. The relevance of the statistical method to evaluate climate uncertainties and optimize the exploration of the ensemble of climate projections is discussed in Sect. 4.

2 Methodology

2.1 Design

We consider ozone and $PM_{2.5}$ as the main pollutants of interest for both purposes: public health (Dockery and Pope, 1994; Jerrett et al., 2009) and climate interactions (IPCC, 2013). For both of them, we investigated the best correlation that can be found for various European subregions using the following meteorological variables as predictants: near-surface temperature (T_{2m}), daily precipitation, incoming short-wave radiation, planetary boundary layer (PBL) depth, surface wind (U_{10m}) and specific humidity.

The choice of these meteorological variables is based on an analysis of the literature on the chemical and physical processes linking air pollution and meteorology. For $PM_{2.5}$, turbulent mixing, often related to the depth of the planetary boundary layer, dominates (McGrath-Spangler et al., 2015). A decrease of the PBL depth lead to either (i) an increase of the concentration of pollutants because of the lower mixing volume (Jiménez-Guerrero et al., 2012) or (ii) a decrease of their concentrations because of their faster dry deposition to surface receptors (Bessagnet et al., 2010). The wind plays also multiple roles for $PM_{2.5}$. High wind speed favours the dilution of particulate matter (Jacob and Winner, 2009) but enhances sea-salt and dust mobilization (Lecœur and Seigneur, 2013). Precipitation is often reported as a major sink of $PM_{2.5}$ through wet scavenging (Jacob and Winner, 2009). Water vapour participates in aerosol formation during nucleation processes. Moreover, it can have an impact on the rates of certain chemical reactions, similarly to temperature. The overall impact of temperature on $PM_{2.5}$ is difficult to isolate because of the mix of components contributing to $PM_{2.5}$ (organic, inorganic, dust, sea-salt…) and possible compensating effects. For instance, according to Jacob and Winner (2009), a temperature rise has opposite effects for sulphate and nitrate (respectively an increase and a decrease of concentrations). But for the overall $PM_{2.5}$ mass, an increase in temperature will decrease the concentration as a result of higher volatility and subsequent higher aerosol to gas phase conversion (Megaritis et al., 2014).

As far as ozone is concerned, temperature is expected to play a major role as it catalyses atmospheric chemistry (Doherty et al., 2013). Moreover increasing temperature and solar radiation enhance isoprene emission which is a biogenic precursor of ozone (Langner et al., 2012b; Colette et al., 2013). Finally changing the amount of incoming short-wave radiation will play a role on ozone photochemistry, either by enhancing its photolysis by the hydroxyl radical in the presence of water vapour and short-wave radiation or by enhancing its production in the presence of photolysed nitrogen dioxide (Doherty et al., 2013). The impact of the PBL depth on ozone varies with the meteorological conditions. Increasing the depth of the PBL dilutes ozone concentrations, but it may also favour the dilution of nitrogen oxides close to the sources, therefore leading to an increase in ozone concentrations in NO_x saturated areas (Jacob and Winner, 2009). The amount of water vapour in the atmosphere mostly drives the abundance of the hydroxyl radical (OH). OH is involved in ozone destruction through several processes (i.e. photolysis, HNO_3 production) (Varotsos et al., 2013). It is also involved in ozone production via the formation of NO_2 and radicals (Seinfeld and Pandis, 2008).

Starting from the above list of meteorological predictants, we aim to develop a statistical model of ozone and particulate matter for each of the eight European climatic regions defined in the PRUDENCE project (Christensen and Christensen, 2007). These regions are: British-Irish Isles (BI), Iberian Peninsula (IP), France (FR), Mid-Europe (ME), Scandinavia (SC), Northern Italy (NI – referred to as the Alps in Climate studies but chiefly influenced by the polluted Po-Valley in the air quality context), Mediterranean (MD) and Eastern Europe (EA). For each of these regions, a spatial average of predictants (meteorological variables) and pollutant concentrations values is taken. The statistical model is based on daily averages for all meteorological and air pollutant concentrations except ozone for which the daily maximum of 8 h running means is used. The seasonality is removed by subtracting the average seasonal cycle over the historical period. It should be noted that focusing on aggregated quantities greatly improves the skill of the statistical model that would struggle in capture higher temporal frequency and spatial resolution. An analogy is presented in Thunis et al. (2015) who demonstrated that annual mean ozone and particulate matter responses to incremental emission changes were much more linear than previously thought.

For each region and each pollutant, we first select the two most discriminating predictants by testing all the possible couple of meteorological variable and selecting those that reach the highest correlation. In a second stage we design the actual statistical model that consists of a Generalized Additive Model based on the two most discriminating perdictants (Wood, 2006).

It is to facilitate the geophysical interpretation that we use two meteorological variables instead of a linear combination of multiple variables (i.e. prior principal component analysis axes). Limiting their number to two also allows remaining in a 2-D physical parameter space that supports the discussion as will be illustrated below.

2.2 Training and validation data sets

The data sets used to fit and test the statistical models are produced by the regional climate and air quality modelling framework presented in Colette et al. (2013). By using deterministic climate and chemistry models from the global to the regional scale, they could produce long-term air quality projections over Europe. The Earth System Model (ESM) which drives these simulations is the IPSL-CM5A-MR (Dufresne et al., 2013). The global data used in this study were produced for the Coupled Model Intercomparison Project Phase 5 initiative (CMIP5) (Taylor et al., 2012; Young et al., 2013). Then the climate data obtained by the ESM are dynamically downscaled with the regional climate model WRF (Skamarock et al., 2008). The spatial resolution is 0.44° over Europe (Colette et al., 2013). These simulations were part of the low-resolution simulations performed within the framework of the European-Coordinated Regional Climate Downscaling Experiment program (EURO-CORDEX) (Jacob et al., 2014). Whereas higher spatial resolution simulations are available in the EuroCordex ensemble, the 0.44 resolution was considered appropriate for air quality projections in agreement with other publications (Meleux et al.,

2007; Langner et al., 2012a, b; Manders et al., 2012; Colette et al., 2013; Hedegaard et al., 2013; Watson et al., 2015), and also because higher RCM resolution are not specifically performed to improve the climate features that are most sensitive for air quality purposes (temperature, solar radiation, stagnation events, triggering of low-intensity precipitation events etc.). Finally the regional climate fields are used to drive the CTM CHIMERE (Menut et al., 2013), for the projection of air quality under changing climate. Since we are only interested in the effect of climate change, pollutant emissions remain constant at their level of 2010, as prescribed in the ECLIPSE-V4a data set (Klimont et al., 2013). Similarly, chemical boundary conditions prescribed with the INCA model (Hauglustaine et al., 2014) as well as the land-use are also kept constant.

The Chemistry and Transport Model CHIMERE has been used in numerous studies: daily operational forecast (Rouïl et al., 2009), emission scenario evaluation (Cuvelier et al., 2007), evaluation in extreme events (Vautard et al., 2007), long-term studies (Colette et al., 2011, 2013; Wilson et al., 2012) and inter-comparisons models and ensembles (Solazzo et al., 2012a, b).

The model performances depend on the setup but general features include a good representation of ozone daily maxima and an overestimation of night-time concentrations, leading to a small positive bias in average ozone (van Loon et al., 2007). Concerning particulate matter, similarly to most state-of-the-art CTMs, the CHIMERE model presents a systematic negative bias (Bessagnet et al., 2014). Regarding more specifically its implementation in the context of a future climate, evaluations of the CHIMERE model are presented in Colette et al. (2013, 2015) and also Watson et al. (2015) and Lacressonniere et al. (2016).

The training data set used to build the statistical models consists of the historical air quality simulations (1976 to 2005), while projections of air quality under a future climate (RCP8.5 2071–2100) will be used for testing purposes.

In order to evaluate the uncertainty related to climate change, the statistical models should be skillful for both pollutant concentrations over the historical period (training period) and in predictive mode. Alternative RCM forcing of the CHIMERE CTM could be used to test the approach. Unfortunately, such alternatives are not available at this stage. The statistical ensemble exploration technique presented here will ultimately allow selecting the RCM that should be used in priority to cover the range of uncertainties in air quality and climate projections. When such simulations become available, we will be able to further test the skill of the statistical model. However, so far, the only validation that could be included here was to rely on a future time period as a validation data set. The underlying hypothesis is that the historical range of meteorological parameters used to train the model will be exceeded in the future, therefore offering an appropriate testing data set. The results of this validation are presented in Sect. 3.2.

2.3 Projection data set

To evaluate the uncertainty related to the climate forcing, and identify the RCM that should be used in priority for future air quality projections, the statistical model of air quality is used in predictive mode using the regional climate projections performed in the framework of the EURO-CORDEX experiment (Jacob et al., 2014). The combinations of global and regional climate models used here are the following: CanESM2/RCA4; CSIRO-Mk3-6-0/RCA4; CNRM-CM5-LR/RCA4; EC-EARTH/RACMO2; EC-EARTH/RC4; GFDL-ESM2M/RCA4; IPSL-CM5A-MR/RCA4; IPSL-CM5A-MR/WRF; MIROC5/RCA4; MPI-ESM-LR/RCA4; MPI-ESM-LR/CCLM; NorESM1-M/RCA4 (see Jacob et al., 2014, for details on the model nomenclature).

The performances of the global models used to drive the regional projections have been evaluated in Jury (2012) and Cattiaux et al. (2013). In the general EuroCordex evaluation, Kotlarski et al. (2014) finds a good reproduction of the spatial temperature variability even if the models exhibit an underestimation of temperature during the winter in the north Eastern Europe. In addition to this general feature, the specificity of the WRF-IPSL-INERIS member is an overestimation of winter temperatures in the southeast. In terms of precipitations, most of the models exhibit a pronounced wet bias over most subdomains.

When focusing on WRF members of the EuroCordex ensemble, Katragkou et al. (2015) points out that the IPSL-INERIS member offers one of the best balance between precipitation and temperature skills. Both studies are limited to the evaluation of RCM used with perfect boundary conditions (ERA-Interim forcing) and no published study has yet evaluated the various global and/or regional combinations. It should also be noted that the ensemble is poorly balanced in terms of GCM/RCM combinations (see the larger weight of the RCA regional model which raise important question regarding the representativeness of the ensemble).

3 Development and validation of the statistical model

In this part we studied the end (2071–2100) of the century, for one scenario (RCP8.5) which is an energy-intensive scenario (van Vuuren et al., 2011). This 30-year period is chosen to be representative regardless of the inter-annual variability (Langner et al., 2012a). We focus on the RCP8.5 and the end of the century on purpose to reach a strong climate signal.

3.1 Air quality projections

3.1.1 Fine particulate matter

Figure 1a shows the 30 years average $PM_{2.5}$ concentrations over the historical period (1976 to 2005). Higher concentrations are modelled over European pollution hotspots: the Benelux, the Po Valley, Eastern Europe and large cities. A

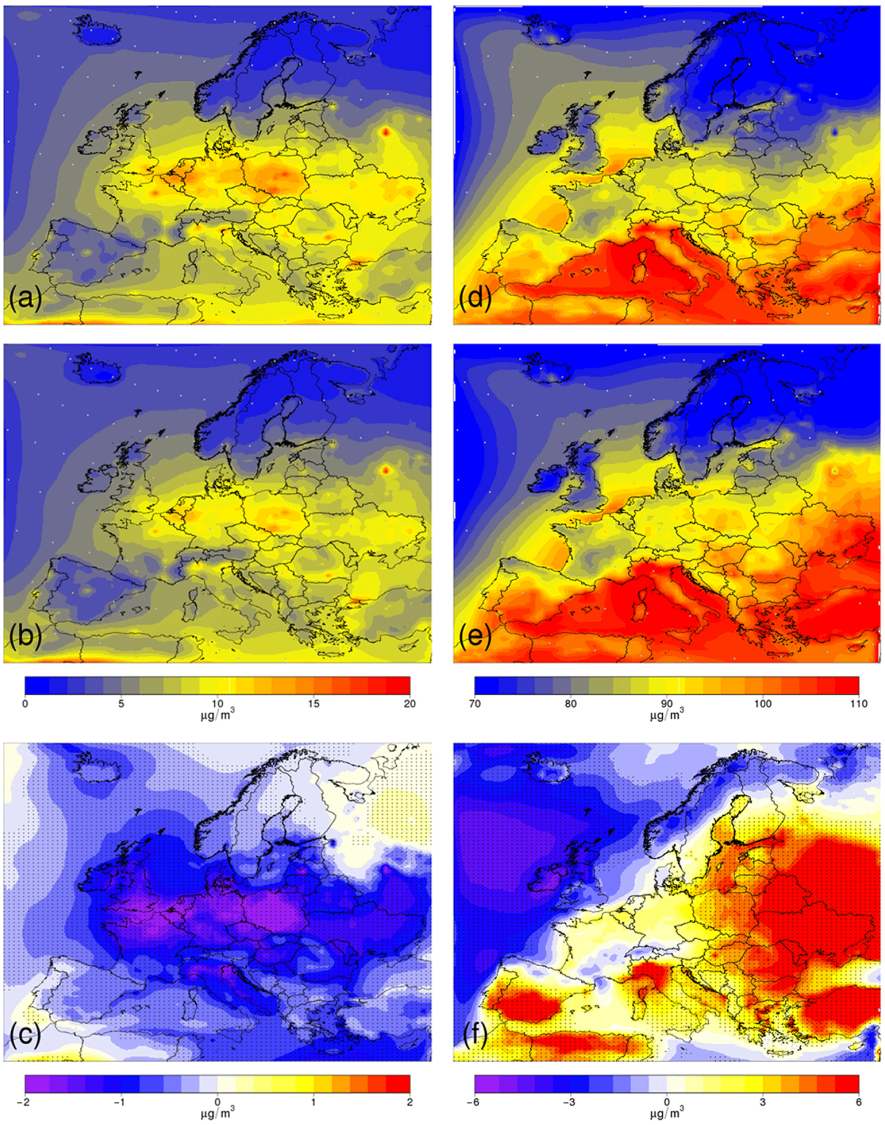


Figure 1. The left column represents daily average $PM_{2.5}$ concentrations for the historical (1976–2005) **(a)**, the end of the century (RCP8.5 – 2071–2100) **(b)** and the difference between the future and the historical **(c)**. The statistical significance of this difference is evaluated by a *t* test and represented by a black point. The right column presents the same figure for daily maximum ozone projections. For both pollutants, the CTM CHIMERE has been used to predict the concentration (Sect. 2.2).

similar pattern is found in the future (RCP8.5 – average over the period 2071–2100) albeit with lower concentrations (Fig. 1b). The difference (future minus historical) is given in Fig. 1c where the statistical significance of the changes was represented by black points at each grid points and evaluated by a Student t-test with Welch variant at the 95 % confidence level based on annual mean. The decrease is statistically significant over most of the domain.

Overall, we identify a climate benefit on particulate matter pollution similarly to Colette et al. (2013) and Lecœur et al. (2014) but in opposition to Manders et al. (2012). Hedegaard et al. (2013) find a decrease in high latitude and an increase in low latitude. The role of future precipitation projections and more efficient wet scavenging has often been pointed out to explain such a future evolution of particulate matter (Jacob and Winner, 2009). However, the lack of robustness in precipitation evolution over major European particulate pollution hotspots in regional climate models (Jacob et al., 2014) challenges the confidence we can have in single

model air quality and climate projection, supporting again the need for ensemble approaches.

3.1.2 Ozone peaks

Figure 1d represents the summer (JJA) average ozone daily maximum concentrations over the historical period (1976 to 2005). A north–south gradient appears with lower concentration in the north and higher concentration fields over the Mediterranean Sea. Figure 1e corresponds to the summer average ozone projection of the RCP8.5 at the end of the century (2071–2100) predicted by the model suite presented in Sect. 2.2. A similar pattern is found, with higher concentrations in the southern part of the domain (Fig. 1e). The map of the difference (RCP8.5 – actual), Fig. 1f, indicates an increase of ozone concentrations over Eastern Europe, Mediterranean land surfaces, and North Africa and a decrease over British-Irish Isles and Scandinavia. Most of the changes are statistically significant except over Western Europe. This concentration rise is frequently associated to an increase of temperature in the literature (Meleux et al., 2007; Katragkou et al., 2011), see Sect. 2.1 above for a review of physical and chemical processes underlying this association.

Following Langner et al. (2012b), Manders et al. (2012), Colette et al. (2013, 2015) these results confirm the fact that climate change constitutes a penalty for surface ozone in Europe.

3.2 Statistical models

Here we introduce the statistical models trained over the historical period and their evaluation over the future testing period. First we discuss the impact of key meteorological processes on pollutants concentration on the basis of the model correlation and put our results in perspective with the key driving factors reported in the literature. Then we evaluate the performance of statistical models over the future period in order to discard regions and pollutants where the skill of the statistical model is too small to draw robust conclusions on the uncertainties of projections.

3.2.1 Fine particulate matter

The skill and predictors for generalized additive models fitted for each region are given in Table 1. The depth of the planetary boundary layer is identified as the major meteorological driver for $PM_{2.5}$ which is a different finding compared to Megaritis et al. (2014) who reported a smaller impact for the PBL depth. Near-surface temperature is often selected as second predictor. The wind is pointed out as a relevant predictor twice but only for coastal regions (respectively BI and MD) where sea-salt is important. Last, precipitation is selected only once and as 2nd variable for the Iberian Peninsula (IP). It could be partly due to our choice of statistical model whereas a logical regression would have been more efficient given that PM correlations are sensitive to the presence and/or absence of precipitation rather than their intensity. It is difficult to assess objectively whether the larger role of temperature than precipitation in our findings is an artifact related to the design of the statistical model. The importance of precipitation in the impact of climate change on particulate pollution is often speculated in the literature, with little quantitative evidence. The statistical model used here offers an objective quantification of that role. It should be added that the importance of temperature is well supported by the volatilization process for Secondary Inorganic Aerosol and Secondary Organic Aerosol. Moreover in the CTM CHIMERE, the volatile species in the gas and aerosol phases are assumed to be in chemical equilibrium. This thermodynamic equilibrium, computed by ISORROPIA (Fountoukis and Nenes, 2007), is driven by temperature and humidity and conditions the concentration of several aerosol species (ammonium, sodium, sulphate, nitrate and so on). This feature could explain the major role of temperature. It is also supported by the pattern of projected $PM_{2.5}$ change, which is spatially correlated with present-day $PM_{2.5}$ concentration. This spatial correlation suggests an impact of a uniform driver which points towards temperature rather than precipitation change that exhibits a strong north-south gradient in Europe.

Then the predictive skill of these models is tested over the period 2071–2100 by computing the Normalized Root Mean Squared Error (NRMSE) between the statistically predicted $PM_{2.5}$ (concentrations estimated with the statistical models), and the results of the deterministic regional air quality and climate modelling suite presented in Sect. 2.2 for 2071–2100. The NRMSE is defined as the root mean square error between statistically predicted and deterministically modelled concentrations changes aggregated by region and at daily temporal frequency, normalized by the standard deviation of the deterministic model. It allows describing the predictive power of a model, if the NRMSE is lower or equal to 1 then the model is a better predictor of the data than the data mean (Thunis et al., 2012).

Figure 2 shows, for each region, the scatter between R^2 over the historical period and the NRMSE in predictive mode for the RCP8.5 at the end of the century. We expect regions where the correlation over the historical period is low to be poorly captured by the statistical model in the future. The fact that the good correlation for EA and ME are associated with an NRMSE around 0.6 in the future indicates either that the main meteorological drivers in the future will remain within their range of validity or that extrapolation is a viable approximation. This feature gives confidence in using statistical models for these regions in predictive mode. For the NI region, the NRMSE is acceptable (below 0.8) even if the R^2 is low.

Considering that the model skill was satisfactory for the EA, ME and NI regions, we decided to focus on these regions for the uncertainty assessment in the remainder of this paper. The fine particulate matter concentrations have been poorly

Table 1. Statistical models per region that explain the average $PM_{2.5}$ concentrations during 1976–2005.

$PM_{2.5}$			
Regions	R^2	Meteorological variable 1	Meteorological variable 2
BI	0.327	PBL-height	Surface wind
IP	0.228	PBL-height	Specific humidity
FR	0.343	PBL-height	Near-surface temperature
ME	0.613	PBL-height	Near-surface temperature
SC	0.206	Specific humidity	Incoming short-wave radiation
NI	0.403	PBL-height	Near-surface temperature
MD	0.194	PBL-height	Surface wind
EA	0.595	PBL-height	Near-surface temperature

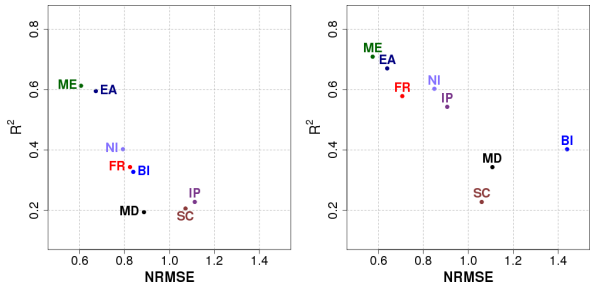


Figure 2. Statistical model evaluation for $PM_{2.5}$ (left) and ozone (right). The x axis represents the Normalized Mean Square Error applied to the delta (future minus historical) of the generalized additive model and CHIMERE. The y axis represents the R^2 of the statistical model (training period).

captured for the region BI, SC, FR, IP and MD. The associated bad NRMSE are explained by the poor performances of model over the historical. They are thus excluded from the uncertainty assessment.

3.2.2 Particulate matter composition

Because total $PM_{2.5}$ is constituted by a mix of various aerosol species, there is a risk of compensation of opposite factors in the statistical model. In order to assess that risk, we developed such models for each individual PM constituent in the chemistry-transport model. The performances of these statistical models in terms of correlation for the historical (training) period or in predictive mode for the future period (testing) are presented in Fig. 3.

For all regions, the statistical models are not able to capture the variability of mineral dust. This is because the design of the statistical model is exclusively local (i.e. average concentrations over a given region are related to average meteorological variables over the same region), whereas most of the mineral dust over any European region is advected from the boundaries of the domain, in North Africa. It should be noted however, that except for the regions IP and MD, the dust represents only a small fraction of the PM concentrations (Fig. 4). That could explain why the statistical model for $PM_{2.5}$ performs poorly over IP and MD, but it will not undermine the confidence we can have in concluding about the robustness of the $PM_{2.5}$ model for the region selected above: ME, EA and NI.

All over Europe, primary particulate matter (PPM) is one of the smallest particulate matter fractions. Their variability is well captured by the statistical model for all regions except SC. But because of their small abundance in that region, they should have a limited impact on the $PM_{2.5}$ model performance.

The sea salts are well reproduced by the statistical model for all regions except NI and EA. These two regions have no maritime area, therefore sea-salt concentrations are lower and exclusively due to advection which, as a non-local factor, is not well captured by the statistical model.

Ammonium (NH_4^+) aerosols are satisfactorily captured by the statistical models for five regions out of eight including those selected for the overall $PM_{2.5}$ model (ME, EA, and NI).

The organic aerosol fraction (ORG) is well reproduced over the historical period and the predictive skill is satisfactory (NRMSE around 0.7) for ME, EA, and NI.

The statistical models are efficient to reproduce the nitrate (NO_3^-) concentrations over the historical period for ME, EA, AL, MD, FR, and BI regions but the predictive skills are only considered satisfactory for ME, EA, FR and NI, where nitrate constitutes a large fraction of $PM_{2.5}$.

Sulphate aerosols (SO_4^{2-}) are well represented by the statistical models for BI, EA, and ME. The performances are low in the NI region, but sulphates constitute one of the smallest particulate matter fractions for that region.

This analysis of the skill of statistical models for each compound of the particulate matter mix confirms that there is no compensation of opposite factors in the selection of skillful models for total $PM_{2.5}$ proposed in Sect. 3.2.1. The only cases were one of the particulate matter compound was not well captured by a statistical model, could be attributed to a low, and often non-local contribution of the relevant particulate matter constituent for the considered regions. We conclude that the selection of ME, EA, and NI as regions where

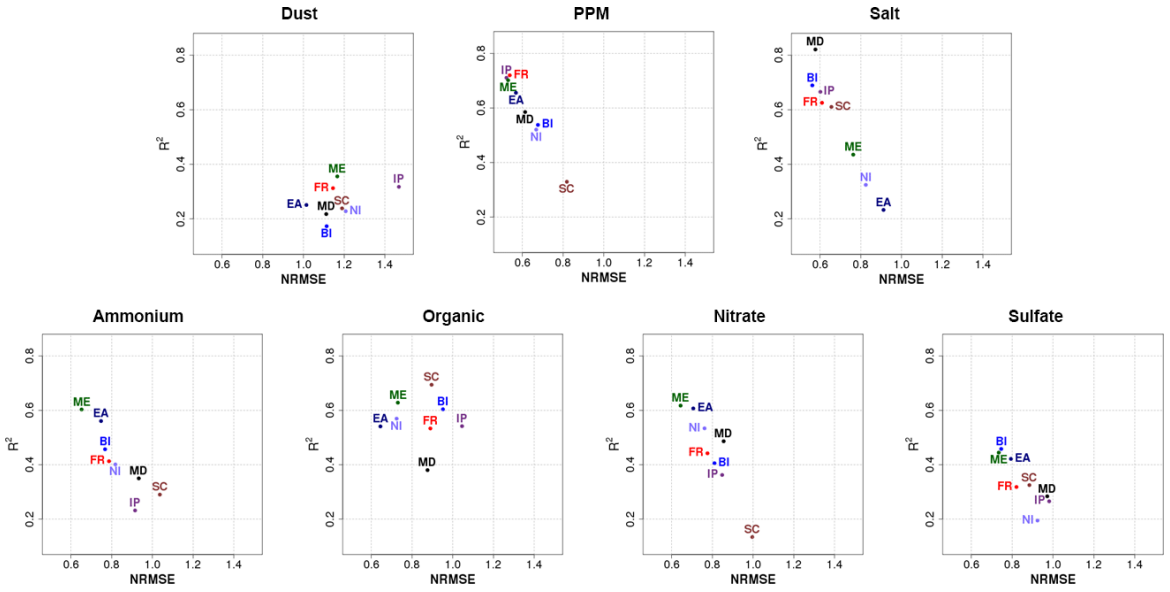


Figure 3. Statistical model evaluation for each particulate matter constituent (from left to right: Dust, Primary Particulate Matter, Sea-salt, Ammonium, Organic fraction, Nitrate, Sulphate). The x axis represents the Normalized Mean Square Error applied to the delta (future minus historical) of either the generalized additive model or CHIMERE. The y axis represents the R^2 of the statistical model (training period).

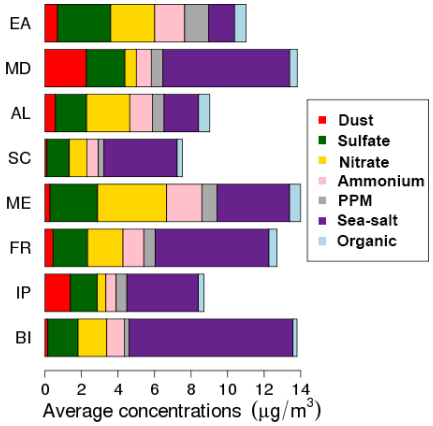


Figure 4. Average particulate matter composition for the historical period per region.

it is possible to build a statistical model of $PM_{2.5}$ variability using Generalized Additive Models based on meteorological predictants would hold if the model had been built for each constituent of the particulate matter mix.

3.2.3 Ozone peaks

For summertime ozone peaks, as expected, near-surface temperature and incoming short-wave radiation are identified as the two main meteorological drivers for most regions (Table 2). Concerning the region EA, the drivers which give the best results are near-surface temperature and specific humidity. Nevertheless, when using specific humidity as second predictor, the statistical model is overfitted and has a low predictive skill (NRMSE = 0.9). Thus the use of short-wave radiation as second predictor appears much more robust (NRMSE = 0.6) even if the R^2 is lower. The skill of the statistical model is very low over the British-Irish Isles and Scandinavia. This is because ozone pollution in these regions is largely influenced by non-local contributions (long-range transport of air pollution). The poor performances of the statistical model over the Mediterranean region are more surprising. The lower variability of temperature and incoming short-wave radiation in this region compared to other parts of Europe (standard deviation of 12.5 °C and 150 W m^{-2} for MD; from 15 to 20 °C and from 220 to 300 W m^{-2} for the other regions) makes them less relevant as statistical predictants of ozone concentrations.

We conclude that the generalized additive models that can be considered efficient enough in terms of correlation to capture the ozone variability over the historical period are those of the following regions: EA, FR, IP, ME and NI.

This selection is further supported by investigating the predictive skill of the models assessed by computing their NRMSE against deterministic CTM simulations available for a future period. The regions mentioned above where the correlation of the statistical model is low (BI, SC and MD) also exhibit a large NRMSE (Fig. 2). So that, only the regions EA, FR, IP, ME and NI are selected for the remainder of this paper.

Table 2. Statistical models per region that explain the daily maximum summer ozone levels during 1976–2005.

Ozone max			
Regions	R^2	Meteorological variable 1	Meteorological variable 2
BI	0.402	Incoming short-wave radiation	Specific humidity
IP	0.543	Near-surface temperature	Incoming short-wave radiation
FR	0.579	Near-surface temperature	Incoming short-wave radiation
ME	0.709	Near-surface temperature	Incoming short-wave radiation
SC	0.228	Near-surface temperature	PBL-height
NI	0.603	Incoming short-wave radiation	Near-surface temperature
MD	0.343	Near-surface temperature	Surface wind
EA	0.671	Near-surface temperature	Incoming short-wave radiation

4 Exploring the ensemble of climate projections with the statistical model

The statistical models introduced in Sect. 2, developed in Sect. 3 and tested in Sect. 3.2 are applied here to the ensemble of regional climate projections presented in Sect. 2.3 to develop a proxy of ensemble of air quality and climate projections for each selected region. This proxy of ensemble will be used to identify the subset of regional climate projections that should be used in priority in the deterministic modelling suite, but it can also give an indication on the robustness of the climate impact on air quality where the skill of the statistical model is considered satisfactory.

4.1 Fine particulate matter

In order to assess qualitatively the robustness of the evolution of regional climate variables having an impact on air quality, we first design a 2-D parameter space where the isopleths of statistically predicted pollutant concentrations are displayed (background of Fig. 5). Then the distributions of historical and future meteorological variables as extracted from the regional climate projections are added to this parameter space. For each Regional Climate Projection, we show the average of the two driving meteorological variables as well as the 70th percentile of their 2-D-density plot, i.e. the truncation at the 70th quantile of their bi-histogram which means that 70 % of the simulated days lies within the contour. Both historical and future climate projections (here for the RCP8.5 scenario and the 2071–2100 period) are displayed on the parameter space. The climate projections are all centred on the IPSL-CM5A-MR/WRF member so that only the distribution of the latter is shown for the historical period.

As pointed out in Table 1, the main meteorological drivers are the depth of the PBL and near-surface temperature for the example of $PM_{2.5}$ over Eastern Europe region displayed in Fig. 5. The statistically modelled isopleths in the background of the figure show that $PM_{2.5}$ concentration decrease when the depth of the PBL increases (x axis), or when temperatures increase (y axis). The interactions captured by the GAM exhibit the strong influence of high vertical stability events (with low surface temperature and PBL depth) in increasing $PM_{2.5}$ concentrations. On the contrary, for high temperature ranges, the depth of the PBL becomes a less discriminating factor. The comparison of historical and future distributions shows that both meteorological drivers evolve significantly in statistical terms (Student t test with Welch variant at the 95 % confidence level based on annual mean). However, even though the PBL depth constitutes the most important meteorological driver for $PM_{2.5}$, it does not evolve notably compared to the surface temperature in the future (Fig. 5). Thus the largest increase of the secondary driver (surface temperature) leads to a decrease of $PM_{2.5}$ concentrations. The largest and the smallest $PM_{2.5}$ concentrations decrease are found for CSIRO-Mk3-6-0/RCA4 and MPI-ESM-LR/CCLM, respectively. But the overall spread of RCMs in terms of both the evolution of PBL depth and temperature is limited, suggesting that this climate benefit on particulate pollution is a robust feature. Those isopleths present the same characteristics for ME and NI regions (Figs. S1, S4 in the Supplement). The qualitative evolution represented in Fig. 5 is further quantified by applying the GAM to the future meteorological variables in the regional climate projections. These results are represented by the probability density functions of the predicted concentrations of each GCM/RCM couple minus the estimated values for the historical simulation (e.g. 2071–2100 vs. 1976–2005, Fig. 6). For EA and ME, the longer tail of the probability density function of MPI-ESM-LR/CCLM compared to the average of the models reflects that stronger pollution episodes will occur in the future even if the mean of the concentrations is lower than the average of the ensemble (Fig. 6 for EA and Fig. S2 for ME).

Besides the distribution, the ensemble mean and standard deviation of the estimated projected change in $PM_{2.5}$ concentrations has been quantified (Table 3). All the selected regions depict a significant decrease of the $PM_{2.5}$ concentrations across the multi-model proxy ensemble indicating that according to the GAM model, the climate benefit on particulate matter is a robust feature in these regions. The magnitude of the decrease depends on the region, its ensemble mean ($\pm$ standard deviation) is -1.08 (± 0.21), -1.03

Table 3. Predicted concentrations evolution of summertime ozone and $PM_{2.5}$ (expressed in $\mu g\,m^{-3}$) per selected regions and per model. The ensemble mean and standard deviation are also calculated.

RCP8.5 2071–2100	Delta (future – historical)							
	Ozone max					$PM_{2.5}$		
GCM/RCM\Regions	EA	FR	IP	ME	NI	EA	ME	NI
CNRM-CM5-LR/RCA4	8.00	6.96	9.75	4.82	3.69	−0.77	−0.82	−0.71
CSIRO-Mk3-6−0/RCA4	11.26	16.03	13.30	14.15	5.81	−1.39	−1.72	−1.06
CanESM2/RCA4	17.97	19.03	15.07	21.20	7.46	−1.29	−1.56	−1.03
EC-EARTH/RACMO2	7.77	11.37	10.79	8.55	6.77	−1.16	−0.98	−0.77
EC-EARTH/RCA4	10.88	14.43	11.45	12.11	5.15	−0.92	−0.92	−0.75
GFDL-ESM2M/RCA4	7.26	7.79	10.28	5.85	4.54	−1.04	−0.90	−0.70
IPSL-CM5A-MR/RCA4	13.76	13.46	12.88	11.02	4.43	−1.28	−1.12	−1.04
IPSL-CM5A-MR/WRF	10.11	6.05	9.08	5.19	0.01	−1.32	−1.30	−0.86
MIROC5/RCA4	12.30	11.29	11.61	9.62	3.85	−1.16	−0.86	−0.85
MPI-ESM-LR/CCLM	6.40	9.63	11.03	6.01	5.58	−0.81	−0.58	−0.62
MPI-ESM-LR/RCA4	9.56	11.75	11.51	9.64	5.54	−1.02	−0.79	−0.83
NorESM1-M/RCA4	10.88	12.60	11.58	10.12	5.02	−0.79	−0.88	−0.76
Ensemble Mean	10.51	11.70	11.53	9.86	4.82	−1.08	−1.03	−0.83
Ensemble Standard Deviation	3.06	3.63	1.55	4.41	1.79	0.21	0.32	0.14

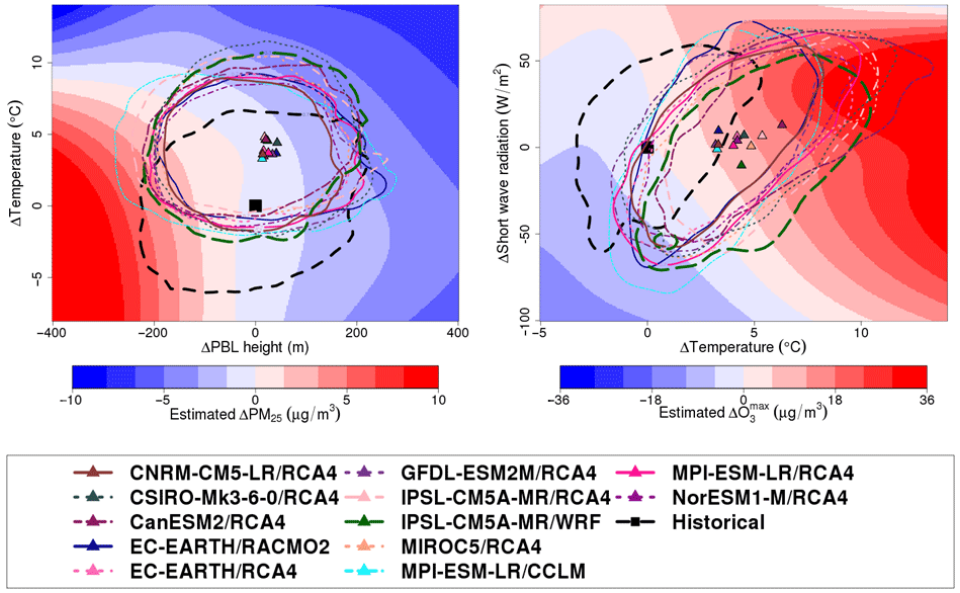


Figure 5. The left figure presents the proxy of ensemble projections for daily average de-seasonalized $PM_{2.5}$ concentrations in Eastern Europe. The right figure represents the proxy for daily maximum de-seasonalized summer ozone for Eastern Europe. For both figures, the shaded background represents the evolution of pollutants estimated by the statistical models. The contours are representing the regional climate projections and the triangles their mean. The black dashed contour represents the historical – IPSL-CM5A-MR/WRF – and the square its mean.

(± 0.32), $-0.83 \pm (0.14)\,\mu g\,m^{-3}$, for respectively EA, ME and NI (Table 3).

In order to explain the differences in the response of individual RCM in the ensemble, we need to explore the historical meteorological variables probability density functions (PDF, Fig. 7) and to compare them with the evolution of IPSL-CM5A-MR/WRF (Fig. 7). The comparison of the historical distribution for the temperature reflects the stronger extremes of IPSL-CM5A-MR/WRF (e.g. colder than the others when it is cold). It is only for the NI region that IPSL-CM5A-MR/WRF lies in the mean of the ensemble. Concerning the PBL depth, the values are similar to the aver-

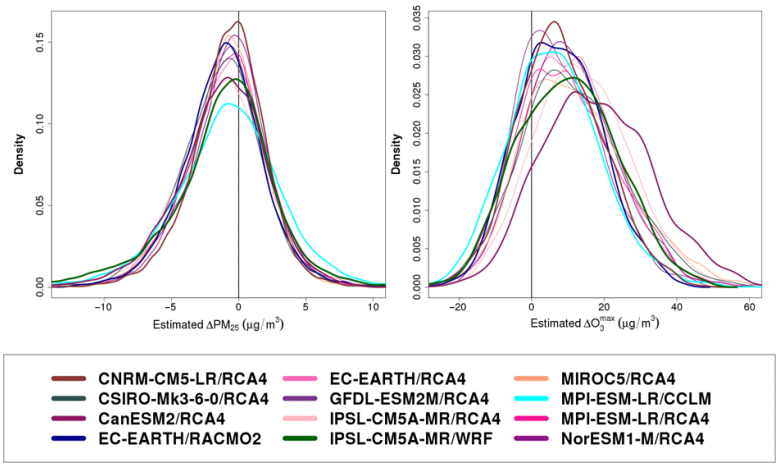


Figure 6. The left figure represents, for each regional climate model the probability density function (PDF) of the concentrations estimated with the generalized additive model at the end of the century minus the estimated concentrations of the historical period for daily average de-seasonalized $PM_{2.5}$ concentrations in Eastern Europe. The right figure presents the results for daily maximum de-seasonalized summer ozone for Eastern Europe.

age of the ensemble for ME even if MPI-ESM-LR/RCA4 and EC-EARTH/RACMO2 present the largest values. IPSL-CM5A-MR/WRF has a thinner boundary layer for NI and a deeper than the average for EA but the differences are limited Fig. 7).

It is for CSIRO-Mk3-6-0/RCA4 that we find the most important decrease of $PM_{2.5}$ for the selected regions (Table 3). This is related to a larger temperature rise compared to the other models and a larger boundary layer height increase compared to the other member of the ensemble for these regions Fig. 5). CanESM2/RCA4 and CSIRO-Mk3-6-0/RCA4 exhibit the same features for the ME region.

MPI-ESM-LR/CCLM presents the smallest decrease of $PM_{2.5}$ for each of the selected regions (e.g. over ME is almost 3 times smaller than the largest decrease) except EA where CNRM-CM5-LR/RCA4 presents a smaller decrease ($-0.77\,\mu g\,m^{-3}$ vs. $-0.81\,\mu g\,m^{-3}$). As already mentioned above, the particular tails of the statistically modelled $PM_{2.5}$ distributions for EA and ME indicate a larger contribution of large pollution episodes in the future for that RCM. But the historical distributions exhibit a larger boundary layer than the average models of the ensemble and a similar temperature. Thus, the low $PM_{2.5}$ concentration decrease is explained by the limited average evolution of the meteorological drivers as shown in Fig. 5.

Overall we conclude that a climate benefit is identified for the $PM_{2.5}$ for each of the selected regions. To the extent that the statistical model is skillful, as demonstrated in Sect. 3.2.1, this result is robust across the range of available climate forcings since the whole ensemble of regional climate projection present consistent features. The regional climate models that exhibit the largest and smallest responses are CanESM2/RCA4; CSIRO-Mk3-6-0/RCA4 and MPI-ESM-LR/CCLM, which should therefore be considered a priority for further evaluation using explicit deterministic projections involving full-frame regional climate and chemistry models.

4.2 Ozone peaks

For most of the selected regions (FR, IP, ME and NI), the main drivers are the same (i.e. near-surface temperature and short-wave radiation). The isopleth in the background of Fig. 5 show that temperature and short-wave radiation have a similar impact on ozone peaks, except in the larger range of short-wave radiation anomalies, where temperature becomes less discriminating. All the isopleths (Fig. 5 for EA and Figs. S1, S4 and S7 for ME, NI, FR and IP) exhibit an increase in the distribution of temperatures because the projected future is warmer than the historical period. According to the ozone peak concentrations predicted by the GAM (displayed in the background of Fig. 5) these increases will lead to more ozone episodes. This trend appears for the entire models ensemble so that we can conclude with confidence that the climate penalty bearing upon ozone is a robust feature even if the specific distribution of some of the models stand out (CanESM2/RCA4; CNRM-CM5-LR/RCA4; CSIRO-Mk3-6-0/RCA4; IPSL-CM5A-MR/WRF).

The ozone increase of the ensemble reaches $+10.51$ (± 3.06), $+11.70$ (± 3.63), $+11.53$ (± 1.55), $+9.86$ (± 4.41), $+4.82$ (± 1.79) $\mu g\,m^{-3}$ for EA, FR, IP, ME and NI (Table 3). These values confirm the statistically significant climate penalty (the mean is at least two times larger than the standard deviation). However, as already mentioned for Fig. 5, we find minor differences among the models. The meteorological distributions are marginally different between

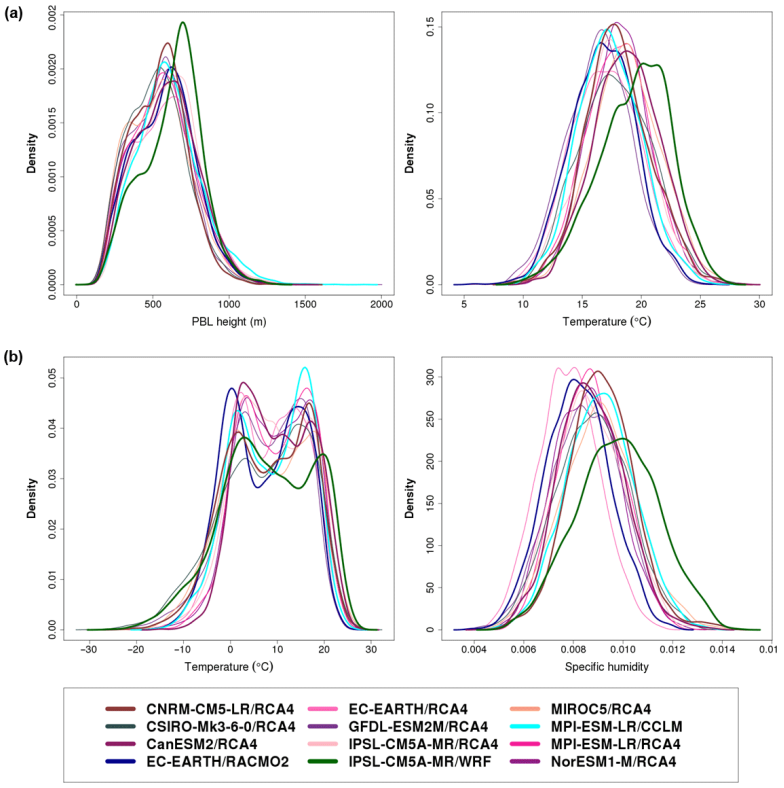


Figure 7. The first column of the panel represents the historical distribution of the meteorological variables identified by our statistical models as the two major drivers (**a** PBL Height; **b** near-surface temperature) for $PM_{2.5}$ in Eastern Europe. The second column represents the historical JJA distribution of the two main drivers for summer ozone (**a** near-surface temperature; **b** incoming short-wave radiation).

the models of the ensemble: the summertime temperature predicted by IPSL-CM5A-MR/WRF has stronger extremes than the other models. Moreover, it is warmer than the ensemble in EA. Concerning incoming short-wave radiation, IPSL-CM5A-MR/WRF lies in the average (Figs. S3, S6, S9) except for the region EA where the amount of incoming radiation is the highest among the ensemble (Fig. 7). Note that, only EC-EARTH/RACMO2 and MPI-ESM-LR/RCA4 exhibits lower values (around half of the average for MPI-ESM-LR/CCLM). The lower amount of summertime incoming short-wave radiation for the couple MPI-ESM-LR/CCLM is relevant for all the selected regions.

The magnitude of the ozone rise differs between the models and the regions. Note that CanESM2/RCA4 exhibits the largest difference (i.e. around 1.5 times the ensemble mean) followed by CSIRO-Mk3-6-0/RCA4 for each selected regions. This is explained by the larger temperature increase during summertime which is the major driver, as identified by the statistical models, of ozone concentration. Note that the value is skyrocketing for the region ME, 5 times the value of IPSL-CM5A-MR/WRF which shows one of the lowest increases. CNRM-CM5-LR/RCA4 presents the lowest increase.

On the contrary, the lower increase of the summer temperature and sometimes a decrease of the incoming short-wave radiation amount (e.g. IPSL-CM5A-MR/WRF in NI) lead to lower ozone concentration changes for IPSL-CM5A-MR/WRF and CNRM-CM5-LR/RCA4 for FR, IP, ME and NI (Table 3). Note the specific evolution for the region NI, where the IPSL-CM5A-MR/WRF model yields almost no increase of the ozone concentration compared to the other models while on the map of the differences in the deterministic model (Fig. 1f), the evolution was statistically significant. This absence of evolution reflects the limitation of the statistical models.

In Fig. S5, we can point out an outstanding pattern of the MPI-ESM-LR/CCLM distribution for the NI region with particularly large tails. The ozone rise would be more pronounced for the upper quantile which depicts more extreme ozone pollution episodes (note that this was also the case for that model in terms of $PM_{2.5}$ pollution).

Overall the climate penalty is confirmed even if some regional climate models stand out of the distribution, such as CanESM2/RCA4; CNRM-CM5-LR/RCA4 and CSIRO-Mk3-6-0/RCA4 which should therefore be considered for further deterministic projections.

5 Conclusions

An alternative technique to assess the robustness of projections of the impact of climate change on air quality has been introduced. Using a training data set consisting of long-term deterministic regional climate and air quality projections, we could build statistical models of the response of ozone and particulate pollution to the main meteorological drivers for several regions of Europe. Applying such statistical models to an ensemble of regional climate projections leads to the development of an ensemble of proxy projections of air quality under various future climate forcings. The assessment of the spread of the ensemble of proxy projections allows inferring the robustness of the impact of climate change, as well as selecting a subset of climate models to be used in priority for future explicit air quality projections, therefore proposing an optimized exploration of the ensemble.

The main meteorological drivers that were identified are (i) for $PM_{2.5}$: the boundary layer depth and the near-surface temperature and (ii) for ozone: the near-surface temperature and the incoming short-wave radiation. The skill of the statistical models depends on the regions of Europe and the pollutant.

For $PM_{2.5}$ and the regions Eastern Europe (EA) and Mid-Europe (ME), a generalized additive model captures about 60 % of the variance and 40 % for Northern Italy. But for the British-Irish Isles (BI) and Scandinavia (SC), where air pollution is largely driven by long-range transport, such a local approach is not able to reproduce the variability of pollutant concentrations.

The ozone concentrations are well reproduced by the statistical model for the following regions: Eastern Europe (EA), France (FR), Iberian Peninsula (IP), Mid-Europe (ME) and Northern Italy (NI). The meteorological variables are not discriminating enough for the Mediterranean region. For the regions where the performances of the statistical model were considered satisfactory, a proxy of the future pollutant concentrations could be estimated (i.e. **(i)**. EA, ME, and NI; **(ii)**. EA, FR, IP, ME and NI).

An overall climate benefit for $PM_{2.5}$ was found in the proxy ensemble of climate and air quality projections. The ensemble mean change is -1.08 (± 0.21), -1.03 (± 0.32), $-0.83 \pm (0.14)\,\mu g\,m^{-3}$, for EA, ME and NI, respectively. This beneficial impact of climate change for particulate matter pollution is in agreement with the deterministic projections of Huszar et al. (2011), Juda-Rezler et al. (2012) and Colette et al. (2013) but in opposition to Manders et al. (2012). These differences could be partly explained by the different time windows (i.e. 2060–2041 vs. 2100–2071), climate scenario (i.e. A1B which is similar to RCP6.0 vs. RCP8.5), and pollutant (i.e. PM_{10} vs. $PM_{2.5}$). This impact of climate change on particulate pollution should be put in perspective with the magnitude of the change that is expected from the current air quality legislation. Such a comparison was performed by Colette et al. (2013) who found (on average over Europe) a climate benefit by the middle of the century of the order of 0–1 $\mu g\,m^{-3}$, therefore in line with our estimate but also much lower than the expected reduction of 7–8 $\mu g\,m^{-3}$ that they attributed to air quality policies.

For all the selected regions a robust climate penalty on ozone was identified: $+10.51$ (± 3.06), $+11.70$ (± 3.63), $+11.53$ (± 1.55), $+9.86$ (± 4.41), $+4.82$ (± 1.79) $\mu g\,m^{-3}$ for EA, FR, IP, ME, and NI, respectively. This finding is in line with previous studies (Meleux et al., 2007; Huszar et al., 2011; Katragkou et al., 2011; Jiménez-Guerrero et al., 2012; Juda-Rezler et al., 2012; Langner et al., 2012a, b; Colette et al., 2013, 2015; Hedegaard et al., 2013; Varotsos et al., 2013). It should be noted that when comparing the impact of climate change and emission reduction strategies, Colette et al. (2013) found a climate penalty of the order of 2–3 $\mu g\,m^{-3}$ (which is broadly consistent with our results given that they focused on the middle of the century) that could be compensated with the expected magnitude of the reduction of 5–10 $\mu g\,m^{-3}$ brought about by air quality policies.

The major strength of our approach is to account for the climate uncertainty in the recent EuroCordex ensemble of regional climate projections, whereas all the published literature relied on a very limited subset of RCM forcing (at best two for a given chemistry-transport modelling study). We therefore propose an unprecedented view in the robustness of the impact of climate change on air quality across an ensemble of climate forcing. However, this achievement is limited by the quality of the underlying statistical model that does not capture all the variance of the air quality response to climate change. These results should thus be ultimately compared with further deterministic projections using a range of climate forcings. Then, our approach can yield precious information in pointing out which regional climate models should be investigated in priority, therefore proposing a smart exploration of the ensemble of projections. The following models: CanESM2/RCA4; CNRM-CM5-LR/RCA4 and CSIRO-Mk3-6-0/RCA4 and MPI-ESM-LR/CCLM, have been identified as the climate models that should be used in priority for future air quality.

Finally, we should add that the method applied here for air quality projection also opens the way for other climate impact studies, where quantifying uncertainties using low computational demand is desirable.

The Supplement related to this article is available online at doi:10.5194/acp-16-2559-2016-supplement.

Acknowledgements. The climate and air quality projections used in the present study were produced as part of the European Union's Seventh Framework Programme (FP7/2007–2013) under grant agreement no. 282687 (ATOPICA) and computing resources of the TGCC/CCRT/CEA.

Edited by: J. Brandt

References

Bessagnet, B., Seigneur, C., and Menut, L.: Impact of dry deposition of semi-volatile organic compounds on secondary organic aerosols, Atmos. Environ., 44, 1781–1787, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.01.027, 2010.

Bessagnet, B., Colette, A., Meleux, F., Rouïl, L., Ung, A., Favez, O., Cuvelier, C., Thunis, P., Tsyro, S., Stern, R., Manders, A., Kranenburg, R., Aulinger, A., Bieser, J., Mircea, M., Briganti, G., Cappelletti, A., Calori, G., Finardi, S., Silibello, C., Ciarelli, G., Aksoyoglu, S., Prévôt, A., Pay, M.-T., Baldasano, J. M., García Vivanco, M., Garrido, J. L., Palomino, I., Martín, F., Pirovano, G., Roberts, P., Gonzalez, L., White, L., Menut, L., Dupont, J.-C., Carnevale, C., and Pederzoli, A.: The EURODELTA III exercise – Model evaluation with observations issued from the 2009 EMEP intensive period and standard measurements in Feb/Mar 2009, available at: http://emep.int/publ/reports/2014/MSCW_technical_1_2014.pdf (last access: 1 March 2016), 2014.

Cattiaux, J., Douville, H., and Peings, Y.: European temperatures in CMIP5: origins of present-day biases and future uncertainties, Clim. Dynam., 41, 2889–2907, doi:10.1007/s00382-013-1731-y, 2013.

Christensen, J. and Christensen, O.: A summary of the PRUDENCE model projections of changes in European climate by the end of this century, Climatic Change, 81, 7–30, doi:10.1007/s10584-006-9210-7, 2007.

Colette, A., Granier, C., Hodnebrog, Ø., Jakobs, H., Maurizi, A., Nyiri, A., Bessagnet, B., D'Angiola, A., D'Isidoro, M., Gauss, M., Meleux, F., Memmesheimer, M., Mieville, A., Rouïl, L., Russo, F., Solberg, S., Stordal, F., and Tampieri, F.: Air quality trends in Europe over the past decade: a first multi-model assessment, Atmos. Chem. Phys., 11, 11657–11678, doi:10.5194/acp-11-11657-2011, 2011.

Colette, A., Bessagnet, B., Vautard, R., Szopa, S., Rao, S., Schucht, S., Klimont, Z., Menut, L., Clain, G., Meleux, F., Curci, G., and Rouïl, L.: European atmosphere in 2050, a regional air quality and climate perspective under CMIP5 scenarios, Atmos. Chem. Phys., 13, 7451–7471, doi:10.5194/acp-13-7451-2013, 2013.

Colette, A., Andersson, C., Baklanov, A., Bessagnet, B., Brandt, J., Christensen, J., Doherty, R., Engardt, M., Geels, C., Giannakopoulos, C., Hedegaard, G., Katragkou, E., Langner, J., Lei, H., Manders, A., Melas, D., Meleux, F., Rouil, L., Sofiev, M., Soares, J., Stevenson, D., Tombrou-Tzella, M., Varotsos, K., and Young, P.: Is the ozone climate penalty robust in Europe?, Environ. Res. Lett., 10, 084015, doi:10.1088/1748-9326/10/8/084015, 2015.

Cuvelier, C., Thunis, P., Vautard, R., Amann, M., Bessagnet, B., Bedogni, M., Berkowicz, R., Brandt, J., Brocheton, F., Builtjes, P., Carnavale, C., Coppalle, A., Denby, B., Douros, J., Graf, A., Hellmuth, O., Hodzic, A., Honoré, C., Jonson, J., Kerschbaumer, A., de Leeuw, F., Minguzzi, E., Moussiopoulos, N., Pertot, C., Peuch, V. H., Pirovano, G., Rouil, L., Sauter, F., Schaap, M., Stern, R., Tarrason, L., Vignati, E., Volta, M., White, L., Wind, P., and Zuber, A.: CityDelta: A model intercomparison study to explore the impact of emission reductions in European cities in 2010, Atmos. Environ., 41, 189–207, 2007.

Dockery, D. W. and Pope, C. A.: Acute Respiratory Effects of Particulate Air Pollution, Annu. Rev. Publ. Health, 15, 107–132, doi:10.1146/annurev.pu.15.050194.000543, 1994.

Doherty, R. M., Wild, O., Shindell, D. T., Zeng, G., MacKenzie, I. A., Collins, W. J., Fiore, A. M., Stevenson, D. S., Dentener, F. J., Schultz, M. G., Hess, P., Derwent, R. G., and Keating, T. J.: Impacts of climate change on surface ozone and intercontinental ozone pollution: A multi-model study, J. Geophys. Res.-Atmos., 118, 3744–3763, doi:10.1002/jgrd.50266, 2013.

Dufresne, J. L., Foujols, M. A., Denvil, S., Caubel, A., Marti, O., Aumont, O., Balkanski, Y., Bekki, S., Bellenger, H., Benshila, R., Bony, S., Bopp, L., Braconnot, P., Brockmann, P., Cadule, P., Cheruy, F., Codron, F., Cozic, A., Cugnet, D., de Noblet, N., Duvel, J. P., Ethé, C., Fairhead, L., Fichefet, T., Flavoni, S., Friedlingstein, P., Grandpeix, J. Y., Guez, L., Guilyardi, E., Hauglustaine, D., Hourdin, F., Idelkadi, A., Ghattas, J., Joussaume, S., Kageyama, M., Krinner, G., Labetoulle, S., Lahellec, A., Lefebvre, M. P., Lefevre, F., Levy, C., Li, Z. X., Lloyd, J., Lott, F., Madec, G., Mancip, M., Marchand, M., Masson, S., Meurdesoif, Y., Mignot, J., Musat, I., Parouty, S., Polcher, J., Rio, C., Schulz, M., Swingedouw, D., Szopa, S., Talandier, C., Terray, P., Viovy, N., and Vuichard, N.: Climate change projections using the IPSL-CM5 Earth System Model: from CMIP3 to CMIP5, Clim. Dynam., 40, 2123–2165, doi:10.1007/s00382-012-1636-1, 2013.

Fountoukis, C. and Nenes, A.: ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K^+–Ca^{2+}–Mg^{2+}–NH_4^+–Na^+–SO_4^{2-}–NO^{3-}–Cl^-–H_2O aerosols, Atmos. Chem. Phys., 7, 4639–4659, doi:10.5194/acp-7-4639-2007, 2007.

Hauglustaine, D. A., Balkanski, Y., and Schulz, M.: A global model simulation of present and future nitrate aerosols and their direct radiative forcing of climate, Atmos. Chem. Phys., 14, 11031–11063, doi:10.5194/acp-14-11031-2014, 2014.

Hedegaard, G. B., Christensen, J. H., and Brandt, J.: The relative importance of impacts from climate change vs. emissions change on air pollution levels in the 21st century, Atmos. Chem. Phys., 13, 3569–3585, doi:10.5194/acp-13-3569-2013, 2013.

Huszar, P., Juda-Rezler, K., Halenka, T., Chervenkov, H., Syrakov, D., Krüger, B., Zanis, P., Melas, D., Katragkou, E., Reizer, M., Trapp, W., and Belda, M.: Effects of climate change on ozone and particulate matter over Central and Eastern Europe, Clim. Res., 50, 51–68, doi:10.3354/cr01036, 2011.

IPCC: Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp., 2013.

Jacob, D., Petersen, J., Eggert, B., Alias, A., Christensen, O., Bouwer, L., Braun, A., Colette, A., Déqué, M., Georgievski, G., Georgopoulou, E., Gobiet, A., Menut, L., Nikulin, G., Haensler, A., Hempelmann, N., Jones, C., Keuler, K., Kovats, S., Kröner, N., Kotlarski, S., Kriegsmann, A., Martin, E., van Meijgaard, E., Moseley, C., Pfeifer, S., Preuschmann, S., Radermacher, C., Radtke, K., Rechid, D., Rounsevell, M., Samuelsson, P., Somot, S., Soussana, J.-F., Teichmann, C., Valentini, R., Vautard, R., Weber, B., and Yiou, P.: EURO-CORDEX: new high-resolution

climate change projections for European impact research, Reg. Environ. Change, 14, 563–578, doi:10.1007/s10113-013-0499-2, 2014.

Jacob, D. J. and Winner, D. A.: Effect of climate change on air quality, Atmos. Environ., 43, 51–63, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.09.051, 2009.

Jerrett, M., Burnett, R. T., Pope, C. A., Ito, K., Thurston, G., Krewski, D., Shi, Y., Calle, E., and Thun, M.: Long-Term Ozone Exposure and Mortality, New Engl. J. Med., 360, 1085–1095, doi:10.1056/NEJMoa0803894, 2009.

Jiménez-Guerrero, P., Montávez, J. P., Gómez-Navarro, J. J., Jerez, S., and Lorente-Plazas, R.: Impacts of climate change on ground level gas-phase pollutants and aerosols in the Iberian Peninsula for the late XXI century, Atmos. Environ., 55, 483–495, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.02.048, 2012.

Juda-Rezler, K., Reizer, M., Huszar, P., Krüger, B. C., Zanis, P., Syrakov, D., Katragkou, E., Trapp, W., Melas, D., and Chervenkov, H.: Modelling the effects of climate change on air quality over Central and Eastern Europe: concept, evaluation and projections, Clim. Res., 53, 179–203, 2012.

Jury, M.: Evaluation of Global Climate Models as Regional Climate Model Drivers, Wegener Center for Climate and Global Change, University of Graz, 2012.

Katragkou, E., Zanis, P., Kioutsioukis, I., Tegoulias, I., Melas, D., Krüger, B. C., and Coppola, E.: Future climate change impacts on summer surface ozone from regional climate-air quality simulations over Europe, J. Geophys. Res.-Atmos., 116, D22307, doi:10.1029/2011JD015899, 2011.

Katragkou, E., García-Díez, M., Vautard, R., Sobolowski, S., Zanis, P., Alexandri, G., Cardoso, R. M., Colette, A., Fernandez, J., Gobiet, A., Goergen, K., Karacostas, T., Knist, S., Mayer, S., Soares, P. M. M., Pytharoulis, I., Tegoulias, I., Tsikerdekis, A., and Jacob, D.: Regional climate hindcast simulations within EURO-CORDEX: evaluation of a WRF multi-physics ensemble, Geosci. Model Dev., 8, 603–618, doi:10.5194/gmd-8-603-2015, 2015.

Klimont, Z., Kupiainen, K., Heyes, C., Cofala, J., Rafaj, P., Höglund-Isaksson, L., Borken, J., Schöpp, W., Winiwarter, W., Purohit, P., Bertok, I., and Sander R.: ECLIPSE V4a: Global emission data set developed with the GAINS model for the period 2005 to 2050 Key features and principal data sources International Institute for Applied Systems Analysis (IIASA), Schlossplatz, 1, 2361, 2013.

Kotlarski, S., Keuler, K., Christensen, O. B., Colette, A., Déqué, M., Gobiet, A., Goergen, K., Jacob, D., Lüthi, D., van Meijgaard, E., Nikulin, G., Schär, C., Teichmann, C., Vautard, R., Warrach-Sagi, K., and Wulfmeyer, V.: Regional climate modeling on European scales: a joint standard evaluation of the EURO-CORDEX RCM ensemble, Geosci. Model Dev., 7, 1297–1333, doi:10.5194/gmd-7-1297-2014, 2014.

Lacressonnière, G., Foret, G., Beekmann, M., Siour, G., Engardt, M., Gauss, M., Watson, L., Andersson, C., Colette, A., Josse, B., Marécal, V., Nyiri, A., and Vautard, R.: Impacts of regional climate change on air quality projections and associated uncertainties, Climatic Change, 1–16, doi:10.1007/s10584-016-1619-z, 2016.

Langner, J., Engardt, M., and Andersson, C.: European summer surface ozone 1990–2100, Atmos. Chem. Phys., 12, 10097–10105, doi:10.5194/acp-12-10097-2012, 2012a.

Langner, J., Engardt, M., Baklanov, A., Christensen, J. H., Gauss, M., Geels, C., Hedegaard, G. B., Nuterman, R., Simpson, D., Soares, J., Sofiev, M., Wind, P., and Zakey, A.: A multi-model study of impacts of climate change on surface ozone in Europe, Atmos. Chem. Phys., 12, 10423–10440, doi:10.5194/acp-12-10423-2012, 2012b.

Lecœur, È. and Seigneur, C.: Dynamic evaluation of a multi-year model simulation of particulate matter concentrations over Europe, Atmos. Chem. Phys., 13, 4319–4337, doi:10.5194/acp-13-4319-2013, 2013.

Lecœur, È., Seigneur, C., Pagé, C., and Terray, L.: A statistical method to estimate $PM_{2.5}$ concentrations from meteorology and its application to the effect of climate change, J. Geophys. Res.-Atmos., 119, 3537–3585, doi:10.1002/2013JD021172, 2014.

Manders, A. M. M., van Meijgaard, E., Mues, A. C., Kranenburg, R., van Ulft, L. H., and Schaap, M.: The impact of differences in large-scale circulation output from climate models on the regional modeling of ozone and PM, Atmos. Chem. Phys., 12, 9441–9458, doi:10.5194/acp-12-9441-2012, 2012.

McGrath-Spangler, E. L., Molod, A., Ott, L. E., and Pawson, S.: Impact of planetary boundary layer turbulence on model climate and tracer transport, Atmos. Chem. Phys., 15, 7269–7286, doi:10.5194/acp-15-7269-2015, 2015.

Megaritis, A. G., Fountoukis, C., Charalampidis, P. E., Denier van der Gon, H. A. C., Pilinis, C., and Pandis, S. N.: Linking climate and air quality over Europe: effects of meteorology on $PM_{2.5}$ concentrations, Atmos. Chem. Phys., 14, 10283–10298, doi:10.5194/acp-14-10283-2014, 2014.

Meleux, F., Solmon, F., and Giorgi, F.: Increase in summer European ozone amounts due to climate change, Atmos. Environ., 41, 7577–7587, 2007.

Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J.-L., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., and Vivanco, M. G.: CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling, Geosci. Model Dev., 6, 981–1028, doi:10.5194/gmd-6-981-2013, 2013.

Prybutok, V. R., Yi, J., and Mitchell, D.: Comparison of neural network models with ARIMA and regression models for prediction of Houston's daily maximum ozone concentrations, Eur. J. Oper. Res., 122, 31–40, doi:10.1016/S0377-2217(99)00069-7, 2000.

Rouïl, L., Honore, C., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Malherbe, L., Meleux, F., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J. M., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V. H., and Poisson, N.: PREV'AIR An Operational Forecasting and Mapping System for Air Quality in Europe, B. Am. Meteorol. Soc., 90, 73–83, doi:10.1175/2008bams2390.1, 2009.

Schlink, U., Herbarth, O., Richter, M., Dorling, S., Nunnari, G., Cawley, G., and Pelikan, E.: Statistical models to assess the health effects and to forecast ground-level ozone, Environ. Model. Softw., 21, 547–558, doi:10.1016/j.envsoft.2004.12.002, 2006.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N.: Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change, ISBN: 1118591364, 2008.

Skamarock, W. C., Klemp, J. B., Dudhia, J., Gill, D. O., Barker, D. M., Duda, M. G., Huang, X. Y., Wang, W., and Powers, J. G.: A

Description of the Advanced Research WRF Version 3, NCAR, Boulder, Colorado, USA, 2008.

Slini, T., Kaprara, A., Karatzas, K., and Moussiopoulos, N.: PM_{10} forecasting for Thessaloniki, Greece, Environ. Model. Softw., 21, 559–565, doi:10.1016/j.envsoft.2004.06.011, 2006.

Solazzo, E., Bianconi, R., Pirovano, G., Matthias, V., Vautard, R., Moran, M. D., Wyat Appel, K., Bessagnet, B., Brandt, J., Christensen, J. H., Chemel, C., Coll, I., Ferreira, J., Forkel, R., Francis, X. V., Grell, G., Grossi, P., Hansen, A. B., Miranda, A. I., Nopmongcol, U., Prank, M., Sartelet, K. N., Schaap, M., Silver, J. D., Sokhi, R. S., Vira, J., Werhahn, J., Wolke, R., Yarwood, G., Zhang, J., Rao, S. T., and Galmarini, S.: Operational model evaluation for particulate matter in Europe and North America in the context of AQMEII, Atmos. Environ., 53, 75–92, 2012a.

Solazzo, E., Bianconi, R., Vautard, R., Appel, K. W., Moran, M. D., Hogrefe, C., Bessagnet, B., Brandt, J. r., Christensen, J. H., Chemel, C., Coll, I., Denier van der Gon, H., Ferreira, J., Forkel, R., Francis, X. V., Grell, G., Grossi, P., Hansen, A. B., Jericevic, A., Kraljevic, L., Miranda, A. I., Nopmongcol, U., Pirovano, G., Prank, M., Riccio, A., Sartelet, K. N., Schaap, M., Silver, J. D., Sokhi, R. S., Vira, J., Werhahn, J., Wolke, R., Yarwood, G., Zhang, J., Rao, S. T., and Galmarini, S.: Model evaluation and ensemble modelling of surface-level ozone in Europe and North America in the context of AQMEII, Atmos. Environ., 53, 60–74, 2012b.

Taylor, K. E., Stouffer, R. J., and Meehl, G. A.: An Overview of CMIP5 and the Experiment Design, B. Am. Meteorol. Soc., 93, 485–498, 2012.

Thunis, P., Pederzoli, A., and Pernigotti, D.: Performance criteria to evaluate air quality modeling applications, Atmos. Environ., 59, 476–482, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.05.043, 2012.

Thunis, P., Clappier, A., Pisoni, E., and Degraeuwe, B.: Quantification of non-linearities as a function of time averaging in regional air quality modeling applications, Atmos. Environ., 103, 263–275, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.12.057, 2015.

van Loon, M., Vautard, R., Schaap, M., Bergström, R., Bessagnet, B., Brandt, J., Builtjes, P. J. H., Christensen, J. H., Cuvelier, C., Graff, A., Jonson, J. E., Krol, M., Langner, J., Roberts, P., Rouil, L., Stern, R., Tarrasón, L., Thunis, P., Vignati, E., White, L., and Wind, P.: Evaluation of long-term ozone simulations from seven regional air quality models and their ensemble, Atmos. Environ., 41, 2083–2097, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.10.073, 2007.

van Vuuren, D., Edmonds, J., Kainuma, M., Riahi, K., Thomson, A., Hibbard, K., Hurtt, G., Kram, T., Krey, V., Lamarque, J.-F., Masui, T., Meinshausen, M., Nakicenovic, N., Smith, S., and Rose, S.: The representative concentration pathways: an overview, Climatic Change, 109, 5–31, doi:10.1007/s10584-011-0148-z, 2011.

Vano, J. and Lettenmaier, D.: A sensitivity-based approach to evaluating future changes in Colorado River discharge, Climatic Change, 122, 621–634, doi:10.1007/s10584-013-1023-x, 2014.

Varotsos, K. V., Giannakopoulos, C., and Tombrou, M.: Assessment of the Impacts of Climate Change on European Ozone Levels, Water Air Soil Poll., 224, 1–13, 2013.

Vautard, R., Honoré, C., Beekmann, M., and Rouil, L.: Simulation of ozone during the August 2003 heat wave and emission control scenarios, Atmos. Environ., 39, 2957–2967, 2005.

Vautard, R., Maidi, M., Menut, L., Beekmann, M., and Colette, A.: Boundary layer photochemistry simulated with a two-stream convection scheme, Atmos. Environ., 41, 8275–8287, 2007.

Watson, L., Lacressonnière, G., Gauss, M., Engardt, M., Andersson, C., Josse, B., Marécal, V., Nyiri, A., Sobolowski, S., Siour, G., and Vautard, R.: The impact of meteorological forcings on gas phase air pollutants over Europe, Atmos. Environ., 119, 240–257, doi:10.1016/j.atmosenv.2015.07.037, 2015.

Wilson, R. C., Fleming, Z. L., Monks, P. S., Clain, G., Henne, S., Konovalov, I. B., Szopa, S., and Menut, L.: Have primary emission reduction measures reduced ozone across Europe? An analysis of European rural background ozone trends 1996–2005, Atmos. Chem. Phys., 12, 437–454, doi:10.5194/acp-12-437-2012, 2012.

Wood, S. N.: Generalized additive models: an introduction with R, ISBN: 1584884746, 2006.

Young, P. J., Archibald, A. T., Bowman, K. W., Lamarque, J.-F., Naik, V., Stevenson, D. S., Tilmes, S., Voulgarakis, A., Wild, O., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Cionni, I., Collins, W. J., Dalsøren, S. B., Doherty, R. M., Eyring, V., Faluvegi, G., Horowitz, L. W., Josse, B., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Plummer, D. A., Righi, M., Rumbold, S. T., Skeie, R. B., Shindell, D. T., Strode, S. A., Sudo, K., Szopa, S., and Zeng, G.: Preindustrial to end 21st century projections of tropospheric ozone from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP), Atmos. Chem. Phys., 13, 2063–2090, doi:10.5194/acp-13-2063-2013, 2013.

2.2 Application du méta-modèle à un épisode de pollution

La méthode statistique développée et présentée dans la partie précédente va être appliquée à l'épisode de pollution observé en France en Décembre 2016. Le but est de **déterminer si cette méthode, conçue à l'origine pour l'évolution de la pollution de fond, est applicable à des situations de pollution extrêmes**.

Il deviendrait alors possible d'évaluer si nos conclusions relatives au bénéfice que représente le changement climatique pour les particules fines en moyenne annuelle s'appliquent aussi aux épisodes de pollution intense.

L'application d'un modèle statistique serait aussi utile dans le cadre d'études d'attribution du changement climatique. Comme on l'a vu pour Décembre 2016, lorsque survient un phénomène climatique rare (ici une stagnation anticyclonique persistente), la question de l'attribution au changement climatique est souvent posée. Cette question a d'ailleurs été reprise par *Vautard et al.* (2017), pour l'épisode de décembre 2016. De longues séries de simulations climatiques sont requises pour de telles études, et il n'est pas envisageable de les coupler avec des modèles de chimie-transport. *Vautard et al.* (2017) construisent un indicateur basé sur la vitesse du vent de surface, mais il est légitime de tester notre méta-modèle dans ce contexte.

Nous décrivons tout d'abord l'épisode de pollution puis nous discuterons les résultats de l'application de la méthode et donnerons quelques perspectives.

2.2.1 Description de l'épisode de pollution

En décembre 2016, un épisode de pollution particulaire d'une grande ampleur a touché la France et particulièrement la région parisienne (Figure 2.4). Sous l'effet de conditions météorologiques peu dispersives (froid, peu de vent et situation anticyclonique stable) et d'émissions de polluants, les concentrations moyennes journalières de PM_{10} ont atteint 146 $\mu g.m^{-3}$ le 08/12/2016, d'après les mesures Airparif. Les cartographies Prev'AIR de la Figure 2.4 montrent que l'épisode était loin d'être confiné à l'agglomération de Paris.

2.2.2 Résultats de l'application du méta-modèle

Pour appliquer le méta-modèle décrit dans (*Lemaire et al.*, 2016) à la région Nord et pour les PM2.5, quelques modifications ont été apportées : un modèle additif généralisé multivarié (pas de limitation à deux variables météorologiques) est construit sur l'ensemble des mois de décembre de l'historique (1976-2005) sur des données journalières qui ne sont plus désaisonnalisées. Les valeurs des concentrations en particules fines sont moyennées sur le Nord de la France, le Bénélux et la région Parisienne avec un sous-domaine de 1 - 8°Ouest et 48 - 53°Nord Figure 2.5.

La Figure 2.6 (panneau de gauche) présente l'évolution des distributions des concentrations pour trois périodes (début, milieu et fin du siècle), estimées par le modèle GAM et CHIMERE. Notre période de référence représente l'ensemble des mois de décembre de 1976

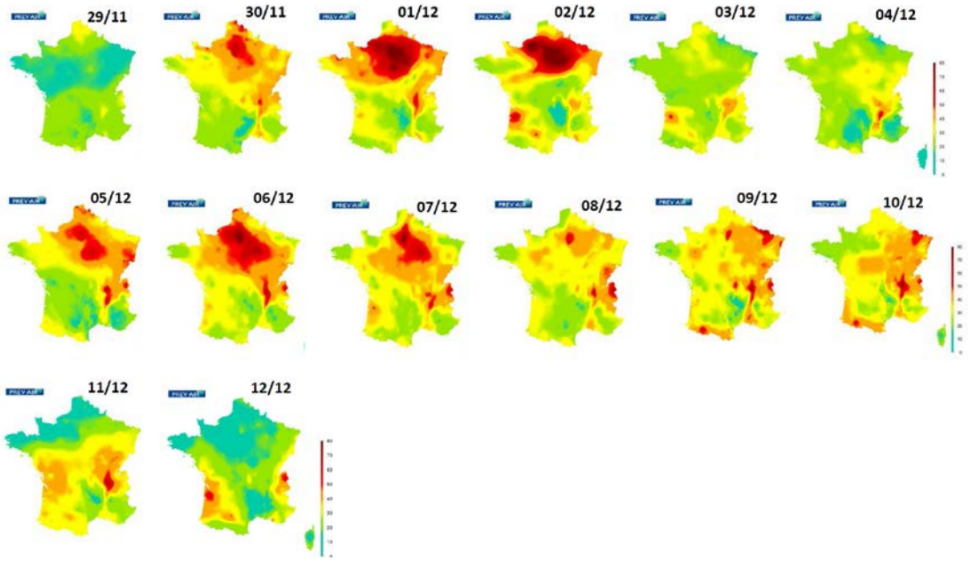


FIGURE 2.4 – *L'épisode de pollution simulé par la plate-forme de prévision Prev'Air. Chaque carte représente les moyennes journalières de concentrations de surface de PM_{10}. Ces cartes sont des "cartes analysées" c'est à dire reposant sur une fusion des données de mesures de surface et d'une simulation avec le modèle CHIMERE (Favez and Amodeo, 2016).*

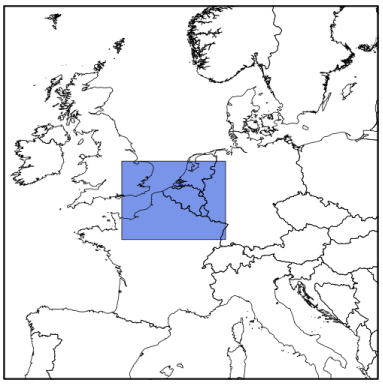


FIGURE 2.5 – *Représentation de la nouvelle région de travail.*

à 2005 et nos deux périodes futures comprennent les mois de décembre de 2041 à 2070 et de 2071 à 2100 d'un futur sans atténuation du changement climatique (RCP8.5). La Figure 2.6 montre que le modèle statistique représente la même tendance moyenne que le modèle CHIMERE avec une baisse des concentrations de particules fines par rapport à l'historique. On s'aperçoit aussi que le fait d'aggréger les données à l'échelle de la région lisse le signal : peu de points extrêmes pour le modèle CHIMERE et encore moins pour le modèle statistique.

La Figure 2.6 illustre bien la faiblesse de l'approche en termes de représentation des extrêmes. En l'état, le modèle statistique semble bien plus adapté pour décrire des tendances

moyennes que des extrêmes. Cela nous conforte dans l'idée que l'indicateur est peu adapté à ce genre d'application et dans le fait qu'il faudrait s'appuyer sur d'autres outils statistiques pour travailler sur les extrêmes.

Afin d'améliorer les performances du méta-modèle et pour éviter d'aggréger l'information à l'échelle de la région, nous avons réalisé un maillage de GAM (en chaque point du domaine, un nouveau modèle est développé), panneau de droite sur la Figure 2.6. On remarque que lorsque les données ne sont plus agrégées, le modèle CHIMERE présente plus d'extrêmes de pollution avec une majorité d'extrême pour le début et le milieu du siècle. Cette évolution des extrêmes diffère de l'évolution moyenne où un bénéfice climatique est identifié dès le milieu du siècle.

Le méta-modèle reproduit bien la distribution des concentrations ainsi que l'évolution future des concentrations du modèle CHIMERE. Le maillage de GAM capture relativement bien les fortes concentrations de particules fines même s'il sous-estime un peu les pics de pollution. Comme pour le modèle CHIMERE, on observe une diminution des pics de pollution à la fin du siècle. L'impact de la température sur la volatilité (passage particule vers gaz) pourrait expliquer ce phénomène. En effet une hausse plus marquée des températures est attendue pour la fin du siécle avec sur une température moyenne de $+2\,^{\circ}$C par rapport à celle du milieu du siècle sur le domaine.

Finalement, les bonnes performances du maillage de GAM sont liées à la fois à la résolution plus fine (descente d'échelle) et à l'utilisation de GAM mensuel (construction sur l'hiver uniquement). Il est difficile d'attribuer uniquement à l'utilisation d'une résolution horizontale plus fine les meilleurs performances du méta-modèle. D'ailleurs, dans le chapitre 4, on utilisera aussi un maillage de modèle qui sera moins performant que les modèles par régions car plus local (pas de prise en compte de l'influence des voisins). En conclusion, on observe qu'en développant plus spécifiquement le modèle, on peut alors appliquer la méthode aux épisodes de pollution. Cette méthode a l'avantage de prendre en compte la vitesse des vents ainsi que d'autres variables météorologiques clefs comme la hauteur de couche limite, la température ou les précipitations alors que *Vautard et al.* (2017) se limitent à la vitesse des vents pour constuire leur indicateur.

2.3 Conclusions et perspectives

L'objectif de ce chapitre était de quantifier les incertitudes relatives à l'impact du climat sur deux polluants préoccupants de par leur impact sanitaire et environnemental à savoir l'ozone et les particules fines. Pour répondre à cette problématique, une nouvelle méthode statistique a été élaborée. En s'appuyant sur un ensemble d'apprentissage constitué de simulations régionales de climat et qualité de l'air, des modèles statistiques expliquant les variations des concentrations d'ozone et de particules fines en fonction des principales variables météorologiques ont été construits pour quelques régions européennes. Une fois validés, ils sont appliqués à l'ensemble de projections climatiques régionales EURO-CORDEX et permettent de construire un proxy d'ensemble de projections. A partir de l'évolution des variables météorologiques clefs, conclure sur l'impact du changement climatique sur la

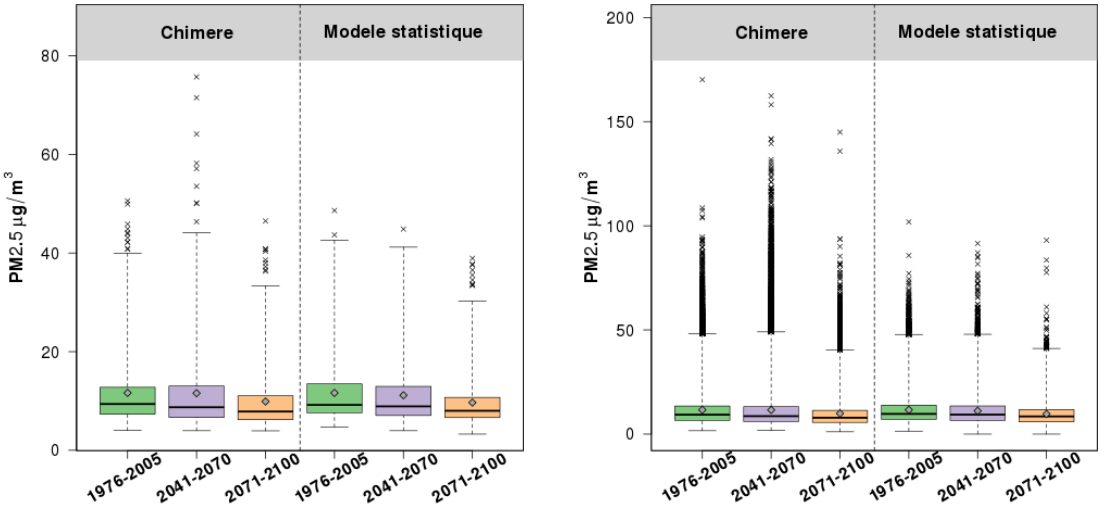


FIGURE 2.6 – *À gauche, comparaison des distributions des concentrations estimées par le modèle de chimie transport CHIMERE et le modèle statistique (GAM) sur la région Nord/Bénélux pour trois périodes comprenant les mois de décembre de : 1976-2005, 2041-2071 et 2071-2100 respectivement début, milieu et fin du siècle d'un futur sans attenuation du changement climatique. À droite, comparaison des distributions des concentrations estimées par le modèle de chimie transport CHIMERE et le maillage de modèle statistique (GAM). Chaque distribution est représentée par un boxplot avec les points extrèmes en forme de croix. La moyenne apparaît sous forme de losange afin de la comparer à la médiane (barre horizontale du milieu du boxplot).*

pollution atmosphérique est alors possible. De plus, la méthode permet de sélectionner un sous-ensemble de modèle de climat à évaluer en priorité.

L'application de la méthode (section 2.1) a permis la mise en évidence d'une pénalité climatique pour l'ozone et d'identifier un bénéfice climatique pour les $PM_{2.5}$. Cependant lorsque la méthode a été testée sur le récent épisode de pollution en France (section 2.2), les limites de cette approche sont clairement apparues. En effet, la méthode est adaptée pour décrire des tendances moyennes et non représenter des extrêmes. Cependant, en adaptant la méthode, il devient alors possible d'étudier les extrêmes de pollution.

Finalement la principale force de cette approche réside dans l'emploi du récent ensemble de projections climatiques EURO-CORDEX qui permet une meilleure prise en compte des incertitudes climatiques comparés aux travaux relatifs à l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air, publiés dans la littérature. Cependant ce gain de précision sur les incertitudes climatiques n'est possible qu'en substituant le modèle de chimie transport par un méta-modèle moins précis (i.e. GAM). Ainsi, les résultats devraient être comparés à des projections explicites réalisées avec le sous-ensemble de modèles sélectionnées. Afin de compléter et valider cette approche, la faisabilité de l'utilisation du sous-ensemble de modèle de climat sélectionné par région va être explorée

dans le chapitre suivant.

3 Impact de la résolution verticale des données climatiques sur la modélisation de la qualité de l'air

3.1 Introduction

3.1.1 Contexte

L'approche statistique construite précédemment a permis de disposer d'un outil quantifiant l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air, ainsi que l'incertitude associée. La réponse est obtenue sur des régions aggrégées et sur de longues périodes. L'avantage est donc de disposer d'un outil rapide en temps de calcul pour obtenir une réponse au premier ordre sur cet impact. L'étude a aussi permis de hierarchiser l'influence sur la qualité de l'air des différents modèles de climat régionaux existants actuellement.

Si l'approche proposée est rapide et globalement efficace, elle conserve néamoins quelques points faibles : les variables de calages utilisées ne sont que des variables de surface et le modèle n'a été calibré statistiquement qu'avec une seule réalisation de simulation de climat régional (les modèles IPSL/WRF et CHIMERE) et le modèle statistique n'explique pas toute la variabilité des concentrations de polluants.

Une autre approche possible revient donc à **simuler de manière déterministe des périodes futures avec différentes combinaisons de modèles de climat régionaux**. On disposera alors d'une simulation d'ensemble, permettant de couvrir, à partir d'outils non-linéaires, toutes les réponses possibles sur l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air. Le principal problème de cette approche est qu'elle est **extrèmement coûteuse en temps de calcul et en stockage de données**.

A l'heure actuelle, les projections de climat régional qui font référence sont les simulations sur l'Europe du projet EURO-CORDEX (*Jacob et al.*, 2014). Ce jeu de simulations est la continuité de projets précédents comme PRUDENCE (*Christensen and Christensen*, 2007; *Christensen et al.*, 2007) et ENSEMBLES (*Van der Linden and Mitchell*, 2009) et fait partie du projet CORDEX (*Giorgi and Gutowski*, 2015). A partir de ces données climatiques, il est possible de générer différentes simulations avec le modèle de chimie-transport mis en œuvre dans cette thèse, CHIMERE. Afin d'éviter de multiplier les simulations, on pourra d'ailleurs cibler en priorité les modèles de climat permettant de couvrir au mieux l'incertitude en exploitant l'information de notre modèle statistique. Celui-ci permet en effet d'identifier rapidement au premier ordre quel modèle de climat induit une réponse haute, basse ou médiane en termes de qualité de l'air et donc de proposer une exploration intelligente de l'ensemble de simulations climatiques. On aura alors une réponse probablement plus réaliste, les données utilisées étant tri-dimensionnelles et non uniquement surfaciques. On aura de plus un nouvel

ensemble de résultats climat/chimie que l'on pourrait aussi analyser statistiquement pour évaluer la robustesse de l'approche statistique développée dans *Lemaire et al.* (2016).

3.1.2 Simulations climatiques régionales disponibles

Les résultats du chapitre précédent ont permis d'explorer les simulations climatiques régionales d'une douzaine de modèles. Comme la réalisation de simulations climatiques régionales avec douze forcages météorologiques reste aujourd'hui difficilement envisageable en termes de ressources de calcul, nous avons utilisé les résultats du modèle statistique pour réduire cet ensemble de modèles à quatre modèles différents en recherchant à optimiser l'exploration de l'ensemble. Ces modèles retenus sont listés dans le Tableau 3.1.

Ce tableau présente aussi le nombre de niveaux verticaux qui ont été mis à disposition par les modélisateurs ayant réalisé les simulations : pour des raisons techniques liées aux stockage et transfert de gros volumes de données, les **projections climatiques sont généralement disponibles sur un nombre réduits de niveaux verticaux**. Il faut aussi noter que les archives EuroCordex sont principalement utilisées pour des études de diagnostic climatique qui se satisfont d'une information sur un nombre réduit de niveaux verticaux. La plupart des études d'impact peuvent aussi être conduites à partir de données climatiques uniquement surfacique. Finalement l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air fait certainement partie des champs d'étude les plus exigeants en terme de résolution spatiale et temporelle des données climatiques d'entrées.

La question se pose donc de savoir dans quelle mesure l'utilisation de variables météorologiques disponible à une résolution verticale dégradée va impacter les résultats de simulations de chimie-transport que l'on souhaite faire. Dans l'étude statistique réalisée dans le chapitre 2, les simulations IPSL/WRF disposaient de 16 niveaux verticaux entre la surface et 500hPa pour forcer le modèle de chimie-transport CHIMERE dont le niveau le plus élevé était situé à 500hPa.

Modèle de climat (GCM/RCM)	Niveaux verticaux disponibles (en pression)
IPSL-CM5A-MR/WRF	Surface + 15 niveaux de 1000 à 500 hPa
MPI-ESM-LR/CCLM	Surface + 850, 500 hPa
CanESM2/RCA4	Surface + 975, 952, 850, 700, 600, 500 hPa
CSIRO-Mk3-6-0/RCA4	Surface + 975, 952, 850, 700, 600, 500 hPa
CNRM-CM5-LR/RCA4	Surface + 975, 952, 850, 700, 600, 500 hPa

TABLE 3.1 – *Liste des modèles de climat, identifiés dans le chapitre 2, ainsi que les niveaux verticaux disponibles dans l'archive EuroCordex (en niveaux de pression constante).*

L'étude présentée dans ce chapitre cherche donc à répondre à la question : **en n'utilisant que 3 ou 7 niveaux verticaux au lieu des 16 niveaux exploités pour les simulations IPSL/WRF/CHIMERE, quelle peut-être l'erreur de modélisation que l'on ajoute et qui risque de biaiser les résultats de quantification de l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air ?** Cette question est d'intérêt pour les études à venir

sur ce type de modélisation car elle peut remettre en cause la pertinence de mettre en œuvre des simulations aussi coûteuses. Il est cependant légitime d'espérer que l'utilisation de données de forçage météorologiques dégradées sur la verticale aura un impact limité puisque la turbulence verticale est en grande partie contrainte par des variables de surface dans le modèle CHIMERE.

En complément de cette question, on cherchera à déterminer si l'erreur est relativement constante ou non. Dans ce cas, on peut savoir que l'on a généré une erreur uniquement liée au manque d'informations sur la verticale. Cette erreur génère alors un biais que l'on peut quantifier. On pourrait donc alors **réaliser ces simulations avec peu de niveaux verticaux tout en débiaisant le résultat final**.

Pour répondre à ces questions, nous allons utiliser les simulations de climat régional dont nous disposons déjà. Afin de reproduire la disponibilité plus ou moins importante en nombre de niveaux verticaux, les simulations vont être réalisées avec des configurations plus ou moins dégradées du même jeu de données météorologiques.

3.2 Méthodologie d'évaluation de l'erreur liée à la résolution verticale

Afin d'évaluer l'impact de la résolution verticale des données météorologiques sur la modélisation de la qualité de l'air, plusieurs jeux de simulations sont réalisés avec les modèles WRF (climat) et CHIMERE (qualité de l'air). Les simulations météorologiques avaient été préalablement réalisées (*Stegehuis et al.*, 2015) et les différentes simulations CHIMERE présentés dans ce chapitre ont été réalisées spécifiquement pour ce travail de thèse.

3.2.1 Différentes configurations de niveaux verticaux

La Figure 3.1 présente l'ensemble des configurations de nombre de niveaux verticaux des modèles météorologiques utilisés. Six configurations différentes sont définies avec 3, 5, 7, 10, 13 et 16 niveaux verticaux (à gauche et en couleurs sur la figure). Ces différentes configurations ne représentent pas l'ensemble des combinaisons possibles mais offrent un bon échantillonnage. Pour chacune de ces configurations, le modèle CHIMERE est utilisé avec 9 niveaux verticaux (à droite et en noir sur la figure). Ces 9 niveaux verticaux sont différents de ceux de la météorologie et correspondent aux niveaux verticaux de la chaîne de simulation Prev'AIR (validée sur de nombreux cas de pollution).

3.2.2 Périodes simulées

Pour chacune de ces configurations, différentes périodes vont être simulées. On définit tout d'abord deux périodes d'un mois :

- Pollution à l'ozone : le mois d'Août 2003 correspond à une situation extrême de canicule ayant entrainé de forts pics d'ozone, (*Schar et al.*, 2004). Pour cette période, les 6 configurations verticales sont utilisées.

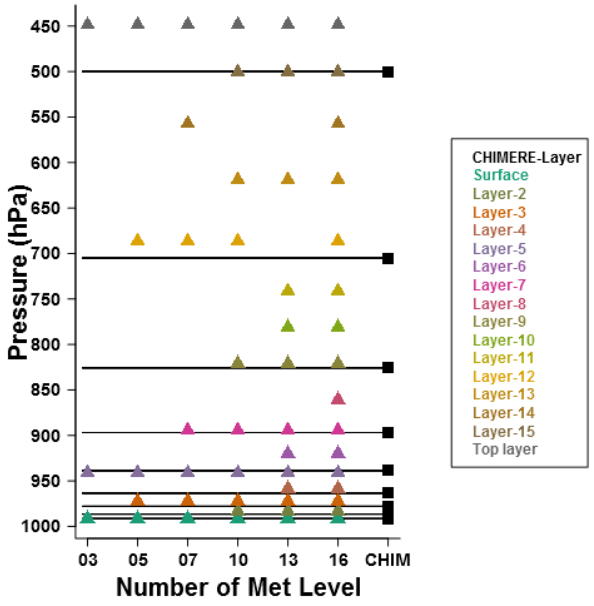


FIGURE 3.1 – *Représentation des niveaux de pression des données d'entrées météorologiques, issu du modèle météorologique méso-échelle WRF, pour chaque configuration (points colorés) et des niveaux du modèle de chimie transport CHIMERE (ligne horizontale et carrés noirs.*

- Pollution aux particules : la période du 15 Janvier au 15 Février 2009 correspond à un épisode hivernal de fortes concentrations de surface de $PM_{2.5}$ observées. Pour cette période, les 6 configurations verticales sont utilisées.

Pour couvrir des périodes temporelles couvrant toutes les situations de pollution (ou non) possibles, une simulation complémentaire est réalisée sur la période de 2001 à 2010. Dans ce cas, 2 configurations sont simulées afin d'avoir des coûts de calcul réalistes :

- La version dite "dégradée" (notée LR) avec uniquement 3 niveaux verticaux : surface, 850 et 500hPa.
- La version dite "fine" (notée HR) avec les 16 niveaux verticaux.

Ces deux simulations décennales représenteront donc ce que l'on peut faire de mieux (16 niveaux météo) et de moins bien (3 niveaux verticaux) en terme de forcage météorologique pour un modèle de chimie-transport. A partir des différences entre ces deux simulations, on cherchera à voir s'il est possible de construire une méthode de débiaisage permettant de n'utiliser qu'une version à 3 niveaux tout en ayant la qualité des résultats de la version à 16 niveaux.

Enfin, et afin de voir l'impact de ces forcages sur des simulations futures, la configuration décennale, avec les versions "dégradée" et "fine" sera aussi utilisée pour simuler la période future de 2071-2080 (RCP8.5). On cherchera alors à quantifier si le débiaisage simple mis au point sur la période présente s'applique aussi à la période future.

3.3 Validation : simulations mensuelles

Les résultats sont présentés pour les deux simulations d'une durée de 1 mois : l'été 2003 et l'hiver 2009. Pour ces deux périodes, les résultats sont présentés principalement sous la forme de différences entre une version de référence (celle avec 16 niveaux verticaux) et les autres configurations (avec entre 3 et 13 niveaux verticaux). Les différences sont calculées sur chacun des 9 niveaux verticaux de CHIMERE qui ne changent pas, alors que le nombre de niveaux des données de forçage météorologique change. Les résultats sont analysés de manière agrégée en moyenne pour la région "Europe de l'Est" (EA), temporellement on se focalise sur les moyennes journalières.

3.3.1 Ozone

La Figure 3.2 présente des résultats statistiques (Biais, RMSE et corrélation) pour les concentrations simulées d'ozone. Chaque niveau du modèle de chimie transport est évalué pour l'ensemble des configurations testées (i.e. nombre de niveaux des données météorologiques) : ces niveaux sont représentés en abscisse. Chaque point de la figure représente le niveau vertical du modèle CHIMERE (9 niveaux en tout).

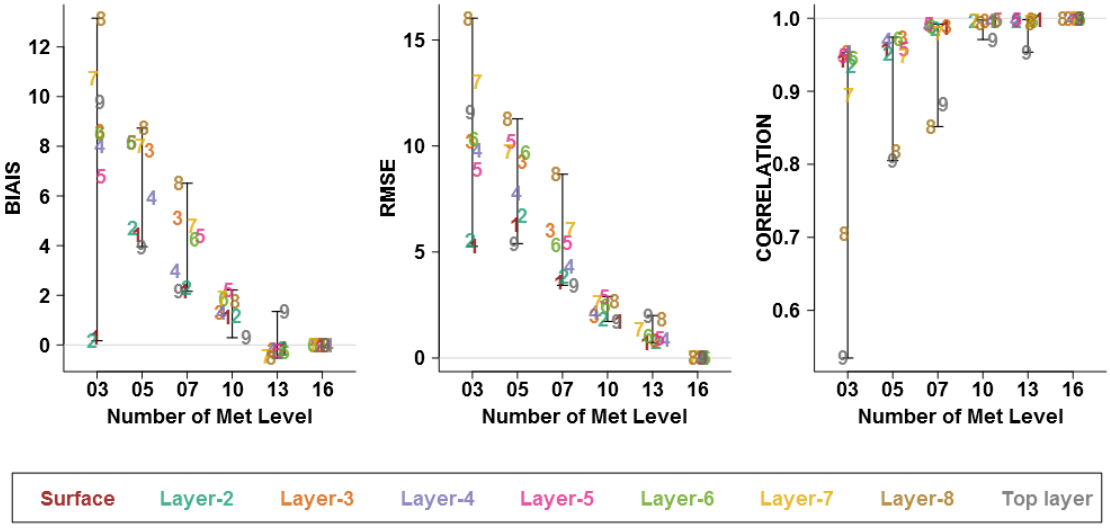


FIGURE 3.2 – *Biais ($\mu g.m^{-3}$), RMSE ($\mu g.m^{-3}$) et corrélation par niveaux de modèle pour différentes configurations des données météorologiques d'entrées pour la région EA (Eastern Europe) et pour l'ozone.*

On note globalement que plus le nombre de verticaux de forçage météorologique augmente, plus le biais et la RMSE diminuent et plus la corrélation augmente. Il y'a donc toujours un effet positif à augmenter la quantité d'informations par rapport à la configuration de référence à 16 niveaux verticaux.

Pour le **biais**, et quelle que soit la configuration météorologique, les valeurs sont majoritairement positives : dégrader la résolution verticale augmente les concentrations d'ozone. Cette augmentation est d'autant plus forte que l'on va vers les niveaux supérieurs donc en altitude. Pour la **RMSE**, on a aussi une décroissance des valeurs plus on augmente le nombre de niveaux verticaux. Les plus fortes valeurs sont aussi pour les niveaux verticaux supérieurs. On notera cependant que ce n'est pas toujours le dernier niveau de CHIMERE (le niveau 9) qui donne les plus mauvais résultats, mais le niveau 8. Dans ce cas, on a un effet de conditions aux limites supérieures du modèle : quels que soient le nombre de niveaux verticaux, le sommet du domaine est contraint par l'information imposée au niveau supérieur (le niveau 450hPa étant, lui, toujours disponible dans les simulations dégradées, cf Figure 3.1).

Pour la **corrélation**, les valeurs croissent avec le nombre de niveaux verticaux. Les plus mauvaises corrélations (≈ 0.55) sont obtenues pour les niveaux verticaux les plus hauts (8 et 9). Le manque important d'information sur la verticale entre les niveaux supérieurs engendre une erreur plus grande entre les simulations HR et LR. La variabilité des concentrations d'ozone est donc mal contrainte.

Pour ces trois indicateurs statistiques, on note que les configurations météorologiques avec 10 ou 13 niveaux donnent des résultats raisonnables : on a alors un biais inférieur à 2 μg.m^{-3}, une RMSE inférieure à 2 μg.m^{-3} et une corrélation supérieure à 0.95. Si des erreurs subsistent, on peut considérer que pour de telles résolution verticales le modèle météorologique dégradé peut être utilisé pour des études climatologiques. Par contre lorsque l'on a 7 niveaux verticaux ou moins, les résultats ne sont plus satisfaisants.

3.3.2 $PM_{2.5}$

Pour les $PM_{2.5}$, les résultats sont présentés sur la Figure 3.3. Par rapport à l'ozone, les valeurs de biais et corrélations sont globalement plus faibles, ce qui est liée au fait que les concentrations de $PM_{2.5}$ sont plus faibles que celles de l'ozone dans la troposphère.

Contrairement aux résultats pour l'ozone, le **biais** peut être négatif ou positif en fonction du niveau vertical considéré. Les valeurs de biais varient de $\pm$ 2 μg.m^{-3} pour la configuration à 3 niveaux météorologiques jusqu'à $\pm$ 0.5 μg.m^{-3} pour celle à 10 niveaux. On notera que les valeurs de biais négatives sont pour les niveaux supérieurs de CHIMERE (de 6 à 9) alors que les biais positifs pour les niveaux plus proches de la surface (de 1 à 5). Pour des études de qualité de l'air (donc plutôt liées à l'étude des concentrations dans la couche limite), on aura donc systématiquement un biais positif. La **RMSE** décroit lorsque le nombre de niveaux météo croit, avec des valeurs allant de $\pm$ 3 μg.m^{-3} pour 3 niveaux verticaux à $\pm$ 0.3 pour 13 niveaux. Les erreurs les plus faibles sont systématiquement pour les niveaux supérieurs : dans la haute troposphère, les concentrations de particules sont faibles et peu variables en temps et en espace, contrairement à l'ozone, ce qui explique les différences de résultats entre les deux espèces chimiques. La **corrélation** croit avec le nombre de niveaux verticaux de 0.5 (3 niveaux météo) à $\approx$ 0.98 (10 niveaux météo). Pour les configurations à 3 et 5 niveaux météo, les faibles valeurs sont, en fait, dûes uniquement à un niveau vertical de CHIMERE, le niveau 7. Car pour tous les autres niveaux CHIMERE, la corrélation est toujours $>$ à 0.8.

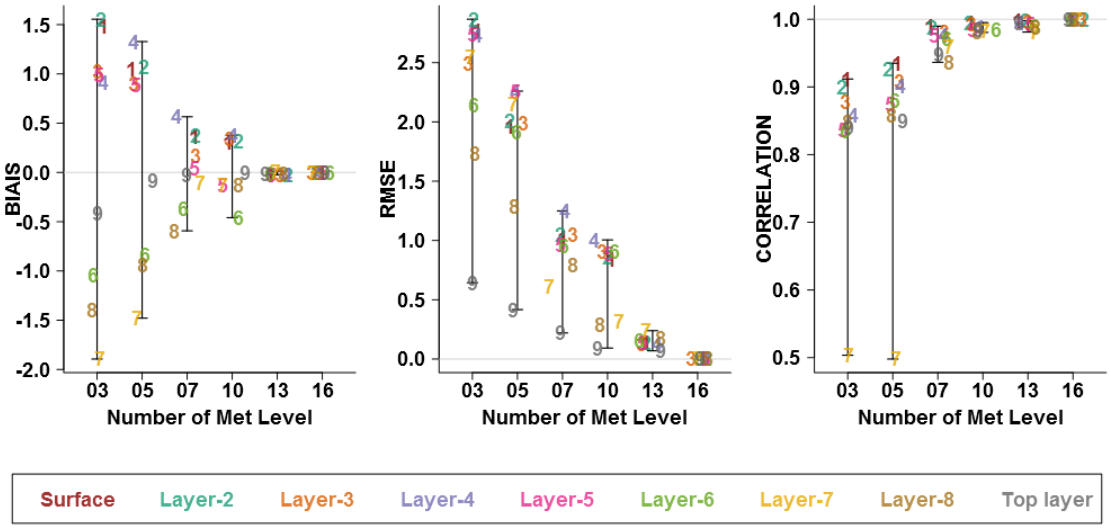


FIGURE 3.3 – *Biais ($\mu g.m^{-3}$), RMSE ($\mu g.m^{-3}$) et corrélation par niveaux de modèle et pour différentes configurations des données météorologiques d'entrées pour la région EA (Eastern Europe) pour les $PM_{2.5}$.*

3.3.3 Synthèse

L'exemple présenté ici représentait la région "Europe de l'Est". Cependant ces résultats sont généralisables aux autres régions du domaine où l'on retrouve globalement les mêmes comportements avec de fortes erreurs sur les niveaux supérieurs. On remarque le biais positif pour l'ozone (indépendamment de la configuration des données météorologiques d'entrées) et le biais positif (proche de la surface) et négatif (en altitude) pour les particules fines. Ces différences s'expliquent par le gradient vertical des polluants (forte concentration d'ozone en haut de l'atmosphère, par oppositionaux particules qui sont plus importantes en surface) et permettent de pointer la diffusion verticale comme une variable largement impactée par la dégradation des données d'entrées. La dégradation des modélisations constatée lorsque l'on réduit le nombre de niveau apparaît du même ordre de grandeur que l'approximation introduite avec le modèle statistique développé dans l'article (*Lemaire et al.*, 2016). Par rapport aux résultats de cet article, si on reprend l'exemple de la région "Europe de l'Est", on avait avec le modèle statistique, pour les projections de 2071 à 2100, une RMSE de 9 μg.m^{-3} pour l'ozone et d'environ 3.6 μg.m^{-3} pour les $PM_{2.5}$. Alors qu'on trouve en dégradant la résolution verticale une RMSE de 6 μg.m^{-3} et 2.5 μg.m^{-3} pour l'ozone et les PM2.5, respectivement.

Il apparait donc que, **pour des simulations déterministes utilisant directement des champs météorologiques, l'erreur induite par le faible nombre de niveaux verticaux disponibles compense le bénéfice attendu par l'introduction d'un modèle de chimie-transport non-linéaire car les perfomances sont similaire à une approche statistique**.

Les résultats présentés dans cette section concernaient deux périodes d'un mois un peu particulière et représentant des "épisodes intenses" de pollution atmosphérique. Afin de quantifier la robustesse de ces résultats, la section suivante va refaire ces simulations de sensibilité mais pour une période plus longue, couvrant des périodes alternant des niveaux variables de pollution atmosphérique.

3.4 Validation : Simulations décennales

Afin d'évaluer la robustesse des résultats présentés dans la section précédente, une simulation est réalisée sur la période 2001 à 2010. Afin d'avoir des coûts de calculs réalistes, cette simulation décennale n'est réalisée que pour les deux configurations contenant 3 et 16 niveaux météorologiques.

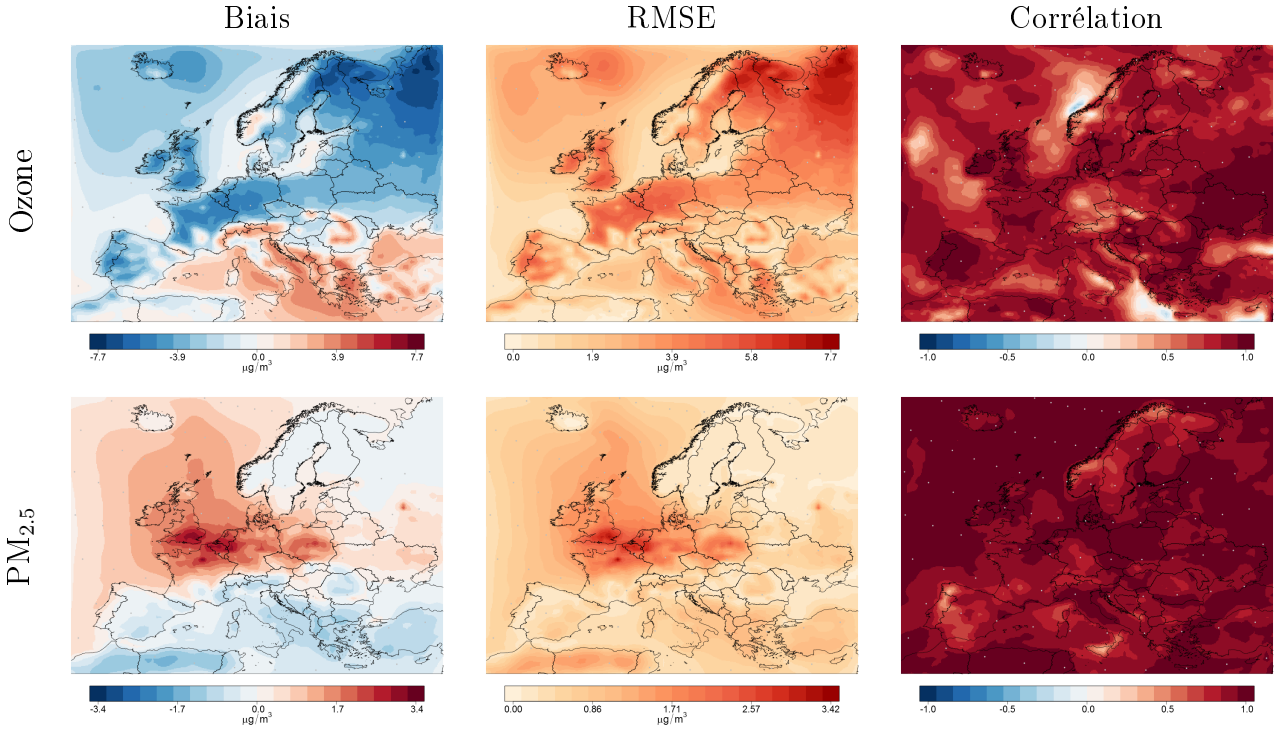


FIGURE 3.4 – *Biais, RMSE et corrélation pour l'ozone (panneau du haut) et les $PM_{2.5}$ (panneau du bas) sur la période 2001-2010 entre les versions avec les forcages météorologiques à 3 niveaux (LR) et à 16 niveaux (HR).*

La Figure 3.4 représente les biais, RMSE et corrélation entre la simulation à haute résolution (16 niveaux, notée HR) et à basse résolution (3 niveaux, notée LR). Comme pour les sections précédentes, on considère donc que la **simulation HR est une référence et on évalue la simulation LR par rapport à cette référence**. Les résultats sont présentés

pour les concentrations de surface d'ozone et de particules fines, $PM_{2.5}$, simulées avec CHIMERE. Pour cette étude aussi, on considère que la simulation à 16 niveaux verticaux de forcage météorologique correspond à une "référence".

Pour **l'ozone**, en moyenne annuelle, la simulation LR induit un **biais** négatif par rapport à HR de l'ordre de $\approx$ -7μg.m^{-3} sur le continent et un biais positif $\approx$ +7μg.m^{-3} sur la Méditerranée. Notons que, comme pour l'étude mensuelle en Europe de l'Est, on retrouve un biais positif en été pour cette région. La différence très marquée entre continent et océan peut être liée à différents processus physico-chimiques pris en compte dans le modèle CHIMERE : le dépôt sec et humide et le mélange vertical sont les principaux processus pouvant expliquer ces différences particulièrement liées au type de surface. Mais ces processus ne sont certainement pas les seuls à entrer en jeu, du fait du biais négatif obtenu sur l'atlantique nord, et aussi du fait qu'un biais positif soit identifié sur les massifs montagneux. Les valeurs de **RMSE** sont plus importantes sur le continent avec des maxima de $\approx$ 7 μg.m^{-3} que sur les océans avec des valeurs de l'ordre de $\approx$ 2 μg.m^{-3}. Enfin, la **corrélation** est globalement positive et importante : sur l'ensemble de la région, on obtient des valeurs comprises entre 0.8 et 1. On relève des corrélations négatives près de la Scandinavie et de la mer Égée. Cela montre que le modèle forcé avec la météo LR donne des résultats très corrélés avec la version HR : on a donc des valeurs absolues de concentrations qui sont incorrectes avec LR mais une variabilité temporelle qui reste quand même proche entre les deux simulations.

Pour les **$PM_{2.5}$**, les valeurs de **biais** sont de signes opposés à celles calculées pour l'ozone. On a ici un biais positif avec la simulation LR sur les zones continentales et un biais négatif sur la Méditerranée. On peut nuancer ce biais en se penchant sur les types d'aérosols : le biais positif sur l'océan Atlantique provient d'une surestimation importante des sels marins par la version dégradée. Sur le Nord de l'Afrique, les poussières désertiques sont sous-estimées. Les particules fines anthropiques sur les surfaces continentales et particulièrement autour du Bénélux sont surestimées par la version dégradée. Enfin, les valeurs de **corrélation** sont aussi très importantes, montrant la aussi que la version LR reste proche de la version HR en terme de variabilité temporelle des polluants de surface.

En conclusion, les résultats obtenus sur 10 ans avec les deux configurations extrêmes (la plus dégradée, LR, et la référence, HR) sont cohérents avec les simulations réalisées sur des épisodes de pollution ponctuels. Cela montre que même sur de longues périodes, donc intégrant des périodes avec ou sans pollution atmosphérique importante, l'utilisation de modèles météorologiques avec peu de niveaux verticaux ne permet pas d'avoir des résultats de simulations acceptables avec le modèle de chimie-transport en terme de valeurs absolues. Par contre, on retrouve des variabilités temporelles proches.

Les sections suivantes auront pour but de **trouver un moyen de contourner ce problème et de chercher à permettre quand même des utilisations dans des études d'impact du climat sur la qualité de l'air**. Pour cela, nous allons explorer les deux pistes suivantes :

- Comprendre précisément l'origine de ces différences entre les résultats de HR et LR. Cela permettra de répondre à la question : *Si le (ou les) processus à l'origine de ces différences peut être identifié, peut-on alors le considérer différemment lors d'une simulation pour en atténuer ses effets ?*

- Si l'on n'arrive pas à modifier le (ou les) processus en cause, peut-on quand même utiliser les simulations climatologiques faites en configuration LR ? Dans ce cas, *est-on capable de débiaiser les simulations afin de limiter les erreurs que l'on a pu quantifier ?*

3.5 Sensibilité des paramétrisations à la résolution verticale

3.5.1 Profils verticaux

Afin de pouvoir utiliser des simulations LR dans des analyses d'impact climatiques, on cherche à savoir quels sont les processus les plus influents dans les différences entre les simulations LR et HR. L'analyse des cartes sur les mois d'Août 2003, de Février 2009 et sur la période de dix ans (2001-2010) ont permis de donner des indications, notamment en interprétant les évolutions des erreurs selon le type de surface : continentale ou océanique. Cela a permis de commencer à identifier les processus qui pourraient être responsables des différences, par exemple en mettant en avant la répartition verticale différente entre l'ozone et les aérosols. Quand il s'agit d'étudier plus en détail les processus sous-jacents, il est naturel de cibler **la représentation verticale du mélange dans la couche limite du fait de son importance sur la qualité de l'air**. Afin de mieux identifier le comportement du modèle CHIMERE en fonction de la finesse de la résolution verticale, nous présentons ici des profils verticaux de concentrations simulées et de diffisivité verticale turbulente K_z.

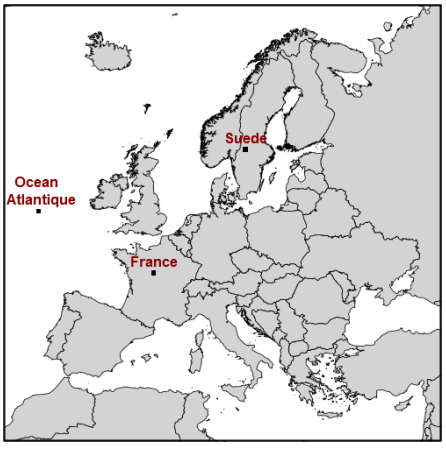


FIGURE 3.5 – *Carte représentant les points choisis pour étudier les profils verticaux.*

Les profils verticaux qui sont extraits des simulations sont présentés sur la Figure 3.5. Les points ont été choisis pour être représentatifs d'environnements différents, à la fois en terme de surface continentale ou océanique, ainsi qu'en terme de latitude. Les profils représentent une heure donnée pour les dates des 17 et 19 Mars 2001. Ces dates ont été choisies parmi de nombreux profils étudiés car représentent bien le problème des différences entre les résultats LR et HR.

Les résultats sous la forme de profils verticaux sont présentés sur la Figure 3.6. Le panneau de gauche représente les altitudes des données météorologiques pour les versions LR et HR. Sur les autres panneaux, les résultats sont présentés sur les 9 niveaux verticaux de CHIMERE. Les niveaux verticaux ne correspondent pas (en terme d'altitude) entre la version dégradée

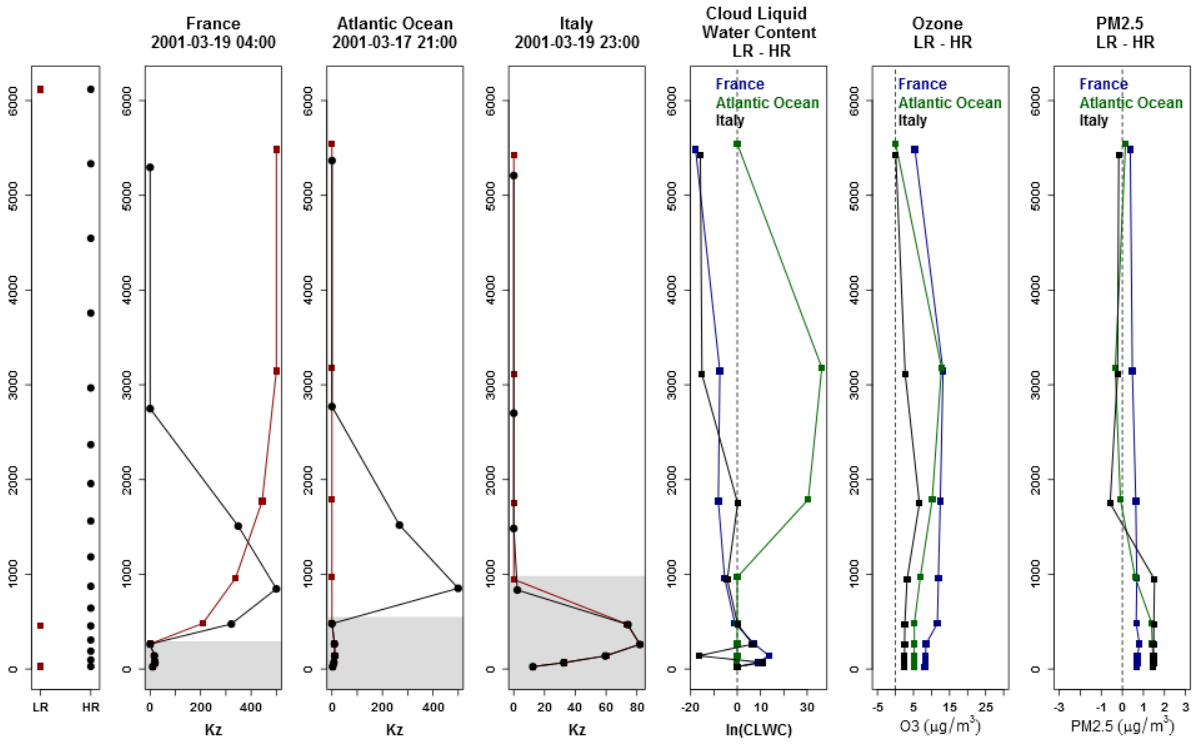


FIGURE 3.6 – *Profils verticaux de K_z, contenu en eau liquide (CLWC) et différences d'ozone et de $PM_{2.5}$ (en $\mu g.m^{-3}$) entre les simulations LR et HR. La partie gauche de la figure montre les niveaux verticaux correspondants pour les simulations LR (en rouge) et HR (en noir) dans les données météorologiques d'origine. Pour les profils de K_z, CLWC, O_3 et $PM_{2.5}$, les symboles restent les mêmes pour définir les simulations LR et HR mais représentent les 9 niveaux verticaux du modèle CHIMERE. Les zones grisées représentent la hauteur de la couche limite.*

et non dégradée. On pense que ces différences proviennent peut-être d'un arrondi de valeur en précisant les coordonnées sigma-pression.

Les trois premiers panneaux présentent les profils de K_z diagnostiqués avec les simulations météo LR et HR. Pour deux des trois sites étudiés, on note de très grandes différences entre les deux simulations en termes de concentration d'ozone et de $PM_{2.5}$. La différence de disponibilité des données météorologiques induit des différences très importantes sur les profils diagnostiqués au dessus de la couche limite. Les principales différences sont au dessus de la couche limite et sont liées à des valeurs de K_z de l'ordre de 400 $m^2\ s^{-1}$. Ces valeurs sont dix fois supérieures aux valeurs modélisées pour cette période relativement hivernale dans la couche limite. Le profil suivant présente les valeurs de contenu en eau liquide, CLWC, dans et au dessus de la couche limite. Ces valeurs indiquent la présence de nuages ou non (les nuages sont diagnostiqués par le CTM CHIMERE). On note que pour les sites "France" et "Atlantic Ocean", les différences de valeurs entre HR et LR montrent que **le nombre**

de niveaux verticaux a permis de prendre en compte la présence de nuages ou non. L'impact sur les profils de concentrations de polluants, O_3 et $PM_{2.5}$ se retrouve sur les deux sites, avec des différences de l'ordre de $\approx \pm$ 20 μg.m^{-3} pour O_3 et $\approx \pm$ 2 μg.m^{-3} pour $PM_{2.5}$. Ce mélange vertical additionnel va avoir un impact sur les concentrations dans la troposphère libre, mais aussi dans la couche limite et donc sur les concentrations de surface. Seul le site "Italy" présente un bon accord entre les deux versions hors de la couche limite avec des valeurs de K_z voisines. Les différences de concentrations de l'ordre de 1 à 5 μg.m^{-3} pour l'O_3 et $\approx \pm$ 1 μg.m^{-3} pour les $PM_{2.5}$ entre les deux versions sont donc probablement dûes aux différences de disponibilité verticale des données qui dégradent certainement d'autres processus.

Pour les parties des profils de K_z dans la couche limite, il n'y a pas de différences entre les simulations LR et HR. Les différences sont uniquement au dessus de la couche limite. Pour mieux comprendre à quoi sont dues ces différences, il faut voir en détail la méthode de calcul du mélange vertical dans le modèle CHIMERE.

3.5.2 La diffusivité verticale dans CHIMERE

La diffusivité verticale turbulente représente les effets de mélange verticaux dans la couche limite. Ce mélange est généré par des processus mécaniques (comme les cisaillements de vent) ou thermiques (comme les flux de chaleur sensible et latente surfaciques). La bonne représentation de ce profil vertical de K_z va fortement conditionner le réalisme des simulations des concentrations de polluants dans la basse troposphère.

Les paramétrisations implémentées dans CHIMERE sont décrites dans *Menut et al.* (2013) et sont issues de la paramétrisation de *Troen and Mahrt* (1986). Ce profil de K_z (m^2.s^{-1}) est une variable diagnostique : elle est déterminée en utilisant des variables météorologiques prognostiques et d'autres variables diagnostiques. Les variables prognostiques nécessaires à son calcul sont :

- P (hPa) : Le profil vertical de pression
- T (K) : Le profil vertical de température. A ce profil vertical, il est nécessaire d'ajouter la température à 2m, T_{2m} afin d'avoir une contrainte près de la surface
- u et v (m.s^{-1}) : Le profil vertical de vent. A ce profil, il est nécessaire d'ajouter la valeur du vent à 10m, afin d'avoir aussi une contrainte proche de la surface.
- q (kg/kg) : L'humidité spécifique

D'autres variables, diagnostiques, sont nécessaires :

- $\overline{h}$ (m) : la hauteur de la couche limite,
- u_* (m.s^{-1}) : la vitesse de rugosité près de la surface,
- H_0 and LE_0 (K.m^{-2}.s^{-1}) : les flux de chaleur surfacique sensible et latente,
- w_* (m.s^{-1}) : La vitesse verticale convective près de la surface
- R_{iB} et L : Le nombre de Richardson et la longueur de Monin-Obukhov sont deux indicateurs de la stabilité de l'atmosphère.

On estime alors le profil vertical de K_z, en fonction de l'atitude z, tel que :

$$K_z(z) = k\, w_s\, \overline{h}\, \frac{z}{\overline{h}} \left(1 - \frac{z}{\overline{h}}\right)^2 \tag{3.1}$$

avec k=0.41 la constante de von Kàrmàn, z l'altitude, $\overline{h}$ la hauteur de la couche limite, w_s la vitesse verticale convective. Le calcul de w_s dépend de la stabilité atmosphérique. Dans le cas stable :

$$w_s = \frac{u_*}{(1 + 4.7z/L)} \tag{3.2}$$

et dans le cas instable :

$$w_s = (u_*^3 + 2.8\, e\, w_*^3)^{1/3} \tag{3.3}$$

où e est une constante telle que e=0.1 dans *Troen and Mahrt* (1986). Dans le cas de CHIMERE, on utilise $e = min(0.1, z/\overline{h})$ afin d'assurer un calcul robuste pour le premier niveau vertical du modèle. L, la longueur de Monin-Obukhov (m), est estimée telle que :

$$L = \frac{-\overline{\theta_v}\; u_*^3}{k\; g\; H_0} \tag{3.4}$$

avec g=9.81 m^2.s^{-2} l'accélération de la gravité, θ_v la température potentielle virtuelle. w_* est estimé selon la relation suivante :

$$w_* = \left(\frac{g\; H_0\; \overline{h}}{\rho\; C_p\; \overline{\theta_v}}\right)^{1/3} \tag{3.5}$$

Par définition, le profil de K$_z$ sera donc un profil ayant un maximum dans la couche limite convective, puis décroissant pour atteindre une valeur très faible au sommet de la couche limite et au dessus . Cette valeur faible est pré-définie et vaut K$_z$=0.1 m^2.s^{-1} pour nos simulations.

A ce stade de la paramétrisation, on constate que le profil de K$_z$ est contraint en grande partie par des variables de surface, il est donc légitime d'espérer que l'utilisation de données de forçage météorologiques dégradées sur la verticale auraient un impact limité. Or comme l'indique nos résultats (Figure 3.4), ce n'est pas le cas. Avant de conclure que la paramétrisation de K$_z$ est hors de cause, il faut toutefois introduire une spécificité de la représentation du mélange turbulent dans CHIMERE.

Au dessus de la couche limite, en présence de nuages, il a été observé qu'un mélange vertical additionnel pouvait être présent (*Betts et al.*, 1995). Ce mélange peut modifier localement la distribution verticale des polluants dans et au dessus de la couche limite, comme cela est présenté sur la Figure 3.7.

Afin de prendre en compte ce terme, une option est disponible dans le modèle CHIMERE. le calcul d'un terme supplémentaire de mélange, représenté par un K$_z$ additionnel, qui est estimé à partir du profil d'humidité relative, H, et devient non nul uniquement dans l'on a $H > 0.9$.

Pour chaque niveau vertical du modèle, un nouveau terme de diffusivité verticale K$_z$ est estimé. Ce terme n'est appliqué qu'au dessus de la couche limite , donc pour $z > \overline{h}$. La

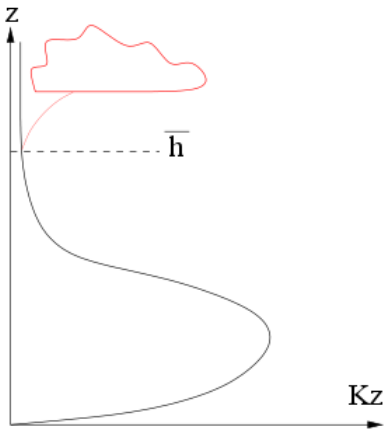


FIGURE 3.7 – *Profil schématique de la diffusivité verticale K_z dans la couche limite. En présence d'un nuage, il est possible de modifier ce profil vertical en ajoutant une diffusivité verticale supplémentaire.*

formulation utilisée est inspirée de l'étude de *Betts et al.* (1995) et du calcul de la turbulence dans le modèle opérationnel du NCEP *Medium-Range Forecast*. Le concept est basé sur la formulation de *Louis* (1979), qui utilise des fonctions de stabilité $f_{m,h}$, avec les indices m et h pour "momentum" (la quantité de mouvement), et "heat" (la chaleur).

Le coefficient de diffusion verticale K_z est estimé tel que que :

$$K_z = l^2 \, f_m \, Ri \left| \frac{\partial U}{\partial z} \right| \tag{3.6}$$

avec : Ri le nombre de Richardson de gradient local, U le module de la vitesse du vent, z l'altitude, f_m la fonction de stabilité pour la chaleur et l la longueur de mélange, elle-même estimée par la relation :

$$\frac{1}{l} = \frac{1}{k\,z} + \frac{1}{\lambda_c} \tag{3.7}$$

avec k la constante de von Kàrmàn (k=0.41), λ_c, une échelle de longueur avec λ_c=150m. La fonction de stabilité f_m est alors calculée telle que :

$$f_m = \begin{cases} 1 + 8 \left(\dfrac{-Ri}{1 + 1.746\sqrt{Ri}} \right) & \text{Pour Ri } < \text{ 0 (instable)} \\ \dfrac{1}{(1 + 5\,Ri)^2} & \text{Pour Ri } \geq \text{ 0 (stable)} \end{cases} \tag{3.8}$$

3.5.3 Impact de la diffusivité turbulente dans les nuages

3.5.3.1 Résolution verticale dégradée sans diffusivité turbulente dans les nuages

Afin d'évaluer l'impact de ce terme supplémentaire de diffusion verticale sous nuages, les simulations HR et LR sont refaites mais en supprimant ce terme dans le calcul du K_z.

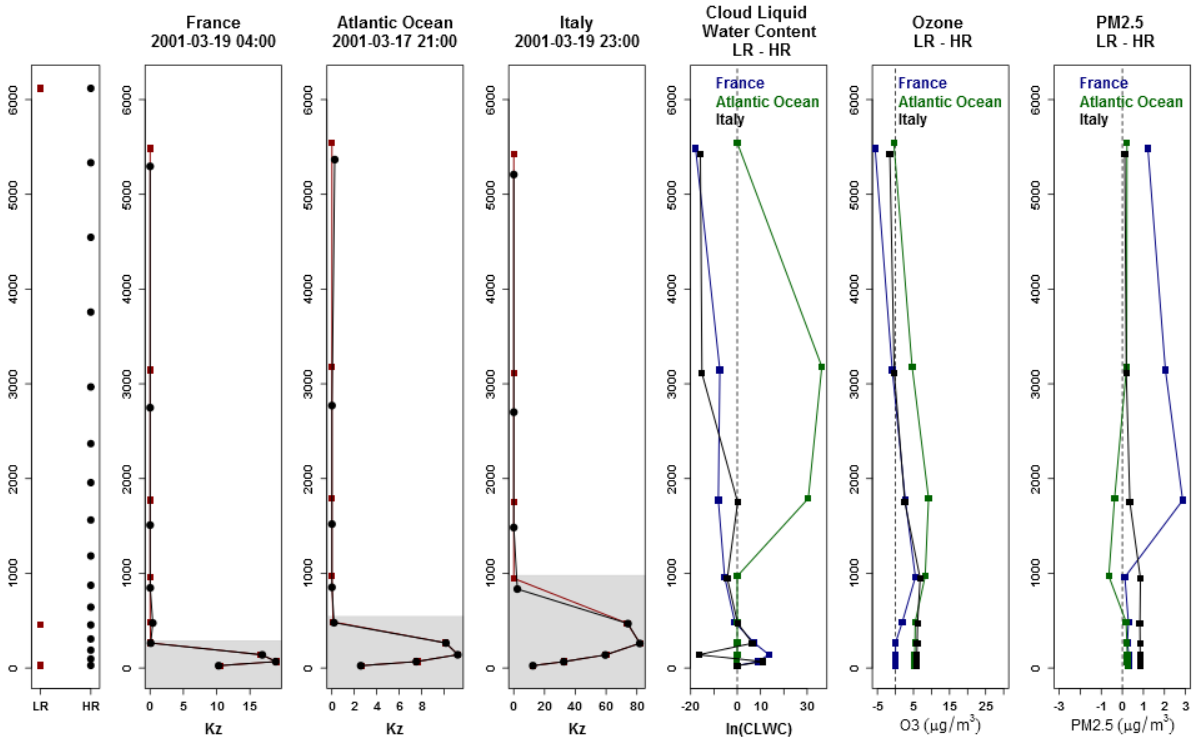


FIGURE 3.8 – *Profils verticaux de K_z, sans correction sous-nuage dans CHIMERE, contenu en eau liquide (CLWC) et différences d'ozone et de $PM_{2.5}$ (en $\mu g.m^{-3}$) entre les simulations LR et HR. La partie gauche de la figure montre les niveaux verticaux correspondants pour les simulations LR (en rouge) et HR (en noir) avec les données météorologiques d'origine. Pour les profils contenant K_z, CLWC, O_3 et $PM_{2.5}$, les symboles restent les mêmes pour définir les simulations LR et HR mais représentent les 9 niveaux verticaux du modèle CHIMERE. Les zones grisées représentent la hauteur de la couche limite.*

Les résultats sont présentés sur la Figure 3.8. Les profils de K_z n'ont des valeurs substantielles, supérieures à 5 $m^2\ s^{-1}$, que dans la couche limite. Sans correction additionnelle sous les nuages, les valeurs de K_z au dessus de la couche limite sont uniquement celles imposées dans la paramétrisation avec aussi la valeur minimale K_z=0.1 $m^2\ s^{-1}$ et on constate des différences limitées entre les versions LR et HR. Les différences sur le CLWC reste les mêmes, car directement liées au forcage météorologique. Par contre, l'impact sur les concentrations d'ozone et de $PM_{2.5}$ demeure important.

Pour l'ozone, les différences entre les deux simulations sont inférieures à 8 $\mu g.m^{-3}$ dans

la couche limite et de l'ordre de ≈ 10 μg.m^{-3} au maximum dans la troposphère libre. Pour les $PM_{2.5}$, les différences sont faibles dans la couche limite (< 1 μg.m^{-3}) mais plus importantes dans la troposphère libre, jusqu'à 3 μg.m^{-3}. Les différences plus importantes dans la troposphère libre peuvent s'expliquer par la modification du K_z qui change le transport des polluants. Globalement, par rapport à la version "avec correction sous nuage", les différences entre LR et HR sont plus faibles à l'exception de l'ozone en "Italy" (lègère hausse) mais elles demeurent importantes.

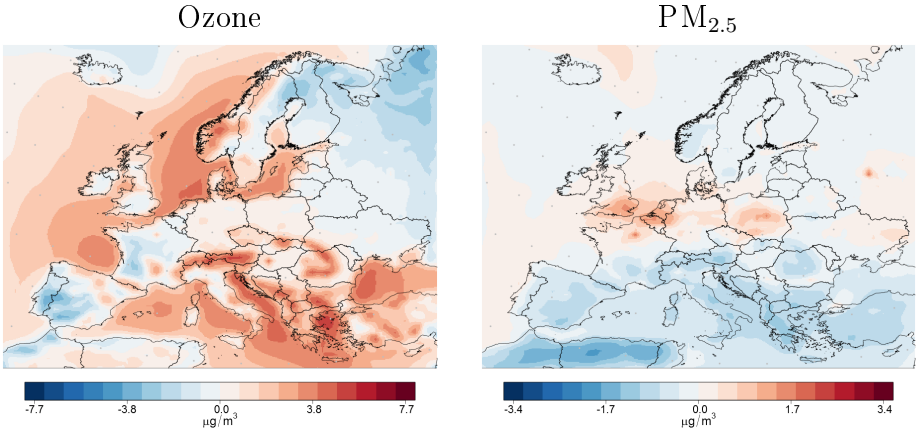


FIGURE 3.9 – *Biais pour l'ozone (figure de gauche) et les $PM_{2.5}$ (figure de droite) sur la période 2001-2010 entre les versions avec les forcages météorologiques à 3 niveaux (LR) et à 16 niveaux (HR) sans correction sous-nuage dans CHIMERE.*

La Figure 3.9 présente les biais moyens des concentrations de surface d'ozone et de $PM_{2.5}$ pour la version sans correction sous-nuage dans CHIMERE sur la période 2001-2010. Si l'on compare les résultats à la Figure 3.4, on remarque que la spatialisation des erreurs moyennes ne présente plus le gradient Nord-Sud précedemment constaté. Pour l'ozone, la simulation dégradée surestime les concentrations sur les parties océaniques, maritimes et sur les reliefs (Alpes, Caucause...) et les sous-estime sur les parties continentales. Les erreurs sont plus faibles que pour les simulations avec la correction sous-nuage, de l'ordre de $\approx \pm 3$ μg.m^{-3}. Pour les $PM_{2.5}$, l'erreur sur les concentrations de surface est de l'ordre de $\approx \pm 2$ μg.m^{-3}. Les concentrations sont sous-estimées autour du Bénélux et faible sur le reste du domaine.

Les nouvelles simulations, sans prendre en compte une diffusivité additionnelle sous nuages, ont permis de constater que les simulations LR et HR demeurent assez éloignées en termes de concentrations simulées même si on note une légère amélioration. La principale conclusion de cette étude de sensibilité est que **des variables géophysiques ayant une extension verticale faible dans la couche limite et dans la troposphère libre peuvent ne pas être vues lorsque l'on utilise des modèles météorologiques dégradés sur la verticale** . Les structures nuageuses en sont un bon exemple : elles ne sont pas systématiquement présentes dans la troposphère, et elles peuvent avoir une extension verticale limitées à quelques centaines de mètres. En ne prenant que quelques niveaux verticaux

d'un modèle météorologique, l'information sur ces processus disparait lorsque l'on utilise ces champs météorologiques pour faire des simulations de chimie-transport.

3.5.3.2 Diffusivité turbulente dans les nuages dans la simulation à haute résolution verticale

Ces comparaisons ont été faites de manière relative entre deux simulations avec des résolutions verticales différentes. Afin d'évaluer l'impact de la prise en compte de cette diffusivité dans les conditions où la météorologie est la plus complète possible, on présente sur la Figure 3.10 des différences entre les deux simulations HR. Les résultats sont présentés comme pour la Figure 3.4 mais les deux simulations utilisées sont :

- On calcule le terme additionnel de diffusivité verticale au dessus de la couche limite et sous nuage, tel que cela est décrit avec l'équation 3.6.
- On ne calcule pas ce terme. Au dessus de la couche limite, on a une valeur constante de K_z=0.1 m^2 s^{-1}.

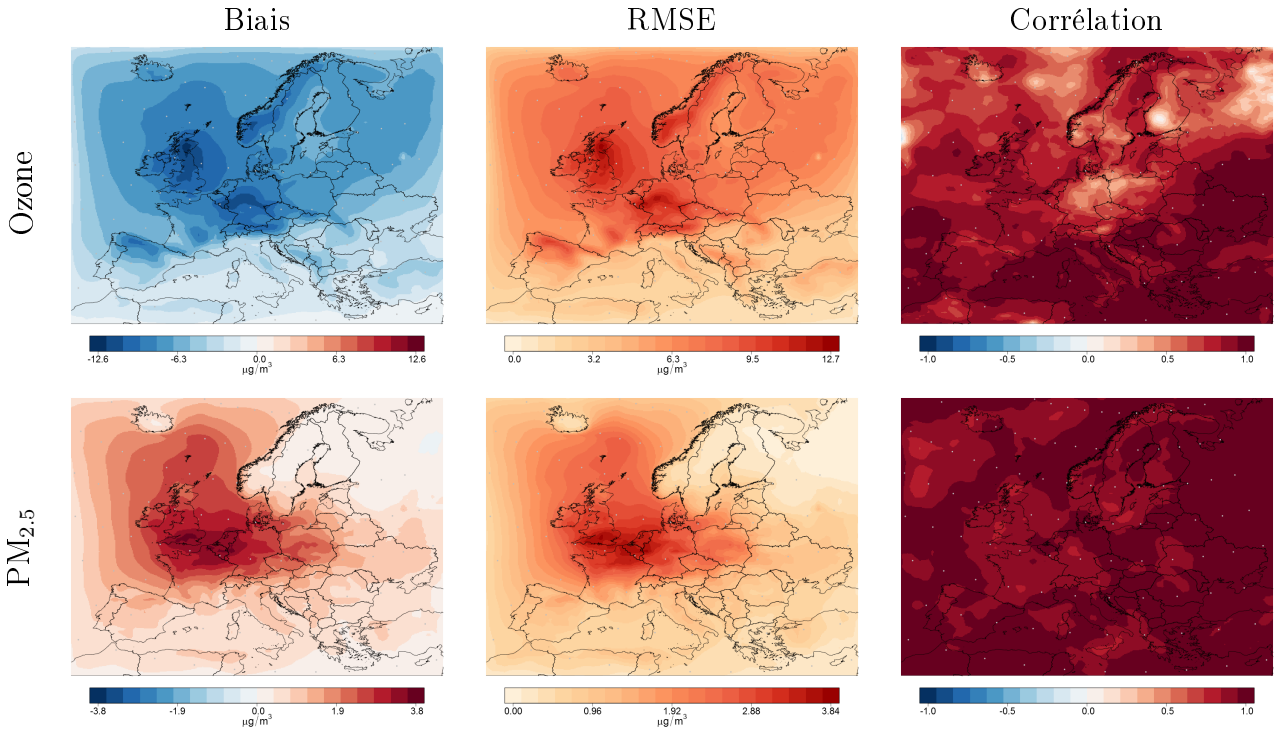


FIGURE 3.10 – *Biais, RMSE et corrélation pour l'ozone (panneau du haut) et les $PM_{2.5}$ (panneau du bas) sur la période 2001-2010 entre les versions avec correction additionnel de la diffusivité sous nuage et sans cette correction.*

On a donc ici sur la Figure 3.10 des cartes représentant des différences HR(sans correction sous nuage) - HR(avec correction sous nuage). Pour l'ozone, les valeurs de biais sont toujours

négatives et de l'ordre de ≈ -10 $\mu g.m^{-3}$. La RMSE montre des valeurs de l'ordre de ≈ +12 $\mu g.m^{-3}$. Enfin, les corrélations varient de 0 à 1, avec de fortes hétéorogénéités spatiales. Pour les $PM_{2.5}$, les différences sont de signes opposées par rapport à l'ozone et de l'ordre de ≈ 3 $\mu g.m^{-3}$. La RMSE est de l'ordre de ≈ 3 $\mu g.m^{-3}$. Enfin, les corrélations sont relativement bonnes et comprises entre 0.5 et 1.

Ces scores statistiques montrent des valeurs plus importantes que lorsque l'on a comparé les simulations HR et LR avec la correction initiale (terme additionnel de diffusivité sous nuage). Cela montre que le fait de ne pas prendre en compte ce processus induit des plus grandes différences à la fois en valeurs absolues et en variabilité, que le passage d'une version avec 16 niveaux verticaux, HR, vers une version avec peu de niveaux verticaux, LR.

3.5.3.3 Synthèse sur l'analyse des processus sensibles à la résolution verticale

Pour ces études de sensibilité de certaines paramétrisation de CHIMERE à la résolution verticale des données de forçage, on peut résumer le travail réalisé et les résultats trouvés selon les points suivants :

- Des simulations avec des forçages météorologiques différents (à haute résolution verticale, ou dégradée : HR et LR), avec et sans l'option de modification du mélange vertical sous nuages, ont été réalisées.
- En terme de concentrations de surface d'ozone et $PM_{2.5}$, la différence entre les deux simulations a montré des valeurs importantes (Figure 3.4) qui tendent à conclure que l'on ne peut pas utiliser des champs météorologiques trop peu résolus verticalement pour faire des études d'impact du climat sur la qualité de l'air.
- On a donc cherché à identifier la cause de ces différences, notamment en se focalisant sur les processus de mélange verticaux (la dégradation météorologique portant sur la résolution verticale).
- Parmi les nombreux processus pris en compte dans le modèle CHIMERE, il a été identifié que la prise en compte des nuages était mal faite avec la version LR et que cela avait un impact important sur le calcul de la diffusivité verticale turbulente.
- Deux autres simulations, LR et HR, ont donc été réalisées en supprimant la prise en compte de la spécificité du mélange turbulent sous les nuages. Les résultats sur les profils verticaux sans correction sous nuage, Figure 3.8, montrent une amélioration limitée par rapport aux résultats avec correction sous nuage de la Figure 3.6.
- Finalement, la comparaison directe des configurations HR avec ou sans paramétrisation du mélange vertical sous les nuages, Figure 3.10, montre que même pour les concentrations de surface, la modification du mélange vertical au dessus de la couche limite risque d'avoir un impact fort.

En conclusion, il apparait que le fait d'utiliser une météorologie dégradée, LR, ne permet pas d'avoir des simulations comparables à une simulation HR. Même en ayant identifié un processus important et mal contraint quand on passe de HR à LR, la comparaison ne s'améliore pas. Cela prouve qu'il n'y a pas que ces termes diagnostics turbulents qui sont importants : sur le long terme et sur des grands domaines de simulation, c'est une précision nécessaire sur toutes les variables météorologiques qui va manquer : le manque d'information

sur la verticale entraine, quoi qu'il arrive, des approximations que l'on ne peut pas corriger au niveau des profils verticaux de pression, température, humidité et vent. Même en simplifiant leur utilisation (notamment en ne prenant plus en compte le mélange turbulent dans les nuages), **le manque d'information sur les variables principales météorologiques impactera fortement les résultats sur les concentrations de polluants**, de telle sorte que la seule alternative consistera à faire une correction a posteriori de manière statistique.

3.6 Correction statistique par débiaisage

Avec le constat que les versions en météorologie dégradée introduisaient des biais substantiels, avec cependant une corrélation spatiale acceptable, on cherche ici à estimer si :

- La différence entre les simulations LR et HR est-elle systématique ? Peut-on avoir des différences constantes en fonction de régions ? d'espèces chimiques simulées ?
- Si c'est le cas, peut-on construire un modèle de débiaisage ? Peut-on évaluer des erreurs systématiques qui permettraient de ramener les simulations HR vers les simulations mieux contraintes HR ?

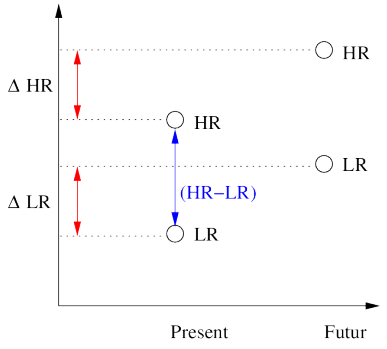


FIGURE 3.11 – *Estimation des différences entre les simulations LR et HR pour quantifier si le biais est persistent dans le temps ou non.*

Les différences absolues ont été précédemment estimées entre les simulations HR et LR. L'utilisation des résultats pour l'impact du climat sur la qualité de l'air se fera en terme de différences entre simulations présentes et futures. Pour savoir si un modèle de biais est pertinent, on va donc commencer par estimer si les différences (HR-LR) sont stationnaires pour les simulations présentes et futures, comme cela est présenté sur la Figure 3.11. On cherche donc à estimer si l'on a $\Delta LR \approx \Delta HR$.

Pour ce faire, on a recours aux simulations HR et LR conduites sur une décennie à la fois pour le climat actuel (2001-2010) et le climat futur (2071-2080, RCP8.5).

Les résultats sont présentés en valeur absolues de différences de concentrations sur la Figure 3.12. Pour **l'ozone**, les différences entre futur et présent passent de $\pm$ 10 μg.m^{-3} pour la simulation HR à $\pm$ 20 μg.m^{-3} pour la simulation LR. La spatialisation des différences montre que les tendances sont assez colocalisées : les différences positives sont au dessus des surfaces continentales, les différences négatives au dessus des océans. Plus en détail on note cependant que l'on a des différences négatives avec HR en Islande et Scandinavie (au nord du domaine de simulation) mais positives avec LR. De plus, si les différences sont positives sur le continent, la variabilité spatiale sur les régions est assez différente.

Pour les $\mathbf{PM}_{2.5}$, on ne retrouve pas cet accord de même signe de différences entre continent et océan comme pour l'ozone. Pour la simulation HR, les différences sont positives sur le continent ($\approx +2$ μg.m^{-3} sur l'Allemagne) mais négatives avec LR ($\approx$ -2 μg.m^{-3} sur l'Allemagne).

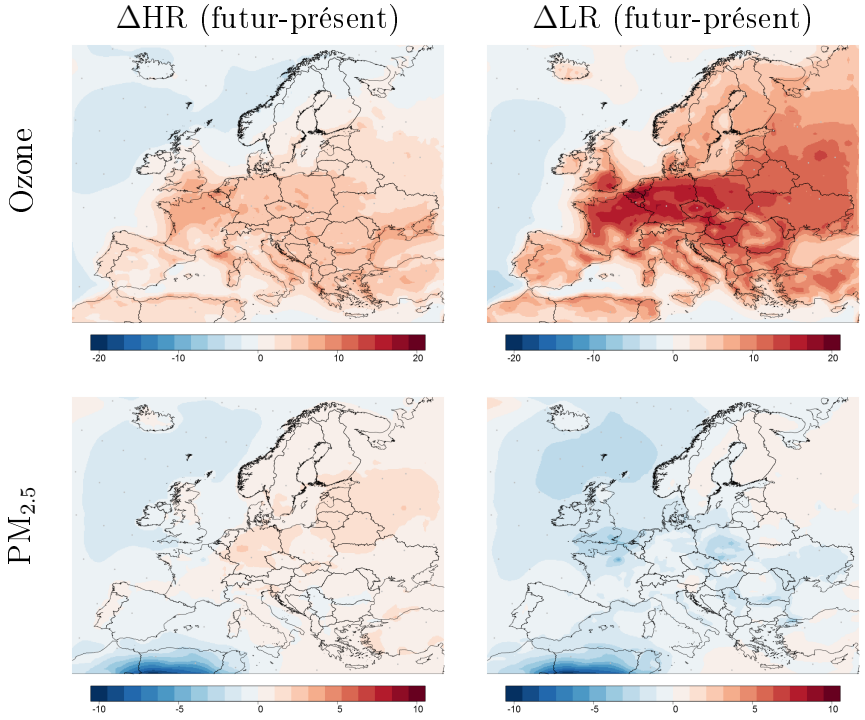


FIGURE 3.12 – *Différences entre les simulations "futur" (2071-2100) et "présent" (2001-2010) pour les simulations HR et LR, pour l'ozone (en haut) et pour les $PM_{2.5}$ (en bas). Les résultats sont exprimés en valeurs absolues de concentrations de surface moyennées sur les 10 ans ($\mu g.m^{-3}$).*

Les simulations HR et LR montrent donc des différences entre "présent" et "futur" n'évoluant pas de la même manière. On peut donc conclure que le fait d'utiliser une résolution dégradée pour la météorologie ne produit pas une erreur systématique que l'on pourrait contrôler et soustraire facilement. Nous allons donc essayer une autre approche en tentant de débiaiser les simulations LR directement.

Pour cela, on estime maintenant la différence entre les simulations HR et LR, pour le présent, comme cela est présenté sur la Figure 3.11 (en bleu). La moyenne des différences annuelles est calculée. Afin d'estimer si l'on a un biais systématique, que l'on pourrait corriger, on calcule, pour la simulation "présent", les indicateurs statistiques tels que :

$$MFE = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\frac{|c_{LR} - c_{HR}|}{\left|\frac{c_{HR} + c_{LR}}{2}\right|} \tag{3.9}$$

$$MFB = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\frac{c_{LR} - c_{HR}}{\left|\frac{c_{HR} + c_{LR}}{2}\right|} \tag{3.10}$$

avec N le nombre d'années de la décennie, MFE le (*Mean Fractionnal Error*) et MFB le (*Mean Fractionnal Bias*). Les résultats sont exprimés en pourcentages et peuvent varier de -200% à 200% pour le MFB et de 0 à 200% pour le MFE. On peut alors estimer la différence entre ces deux indicateurs et si l'on constate que les différences sont nulles, on en déduit que le biais est de signe constant pendant toute la simulation. On pourrait donc essayer d'appliquer cette valeur de biais moyen directement pour réduire l'erreur constatée entre les simulations LR et HR.

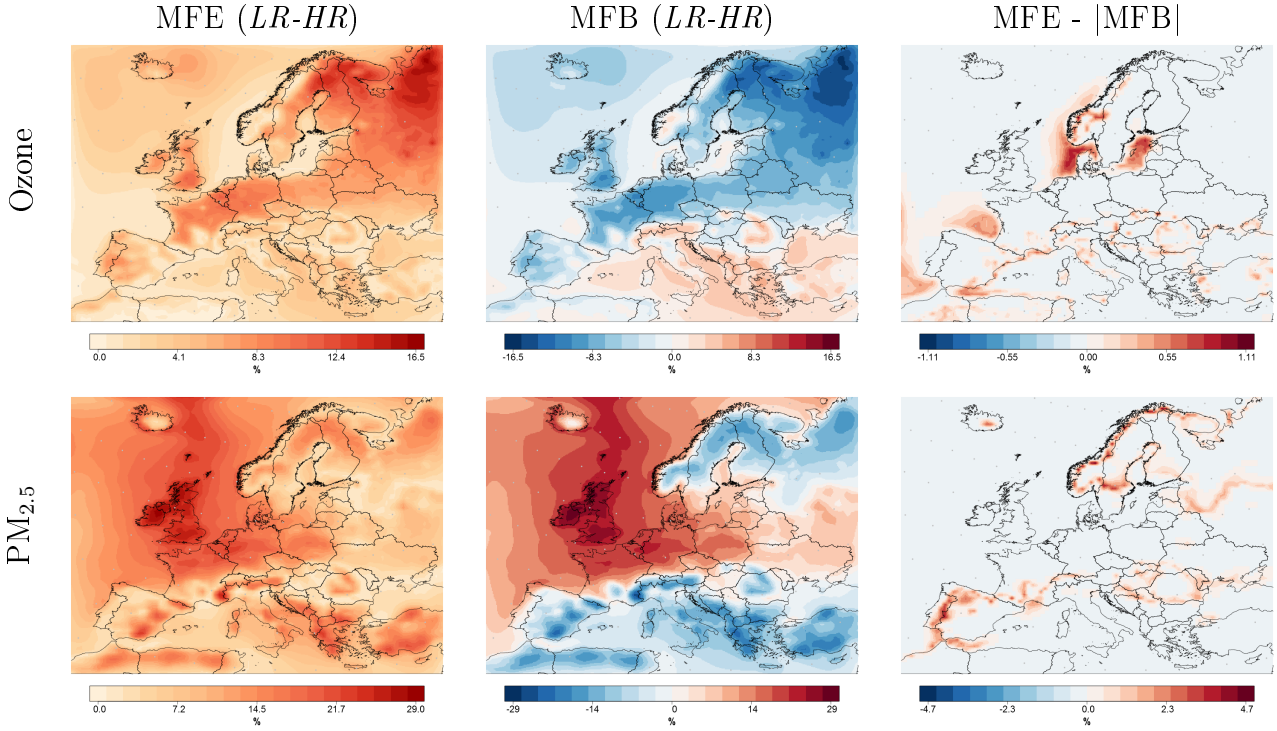


FIGURE 3.13 – *Cartes de MFE, MFB et (MFE-MFB) entre les simulations LR et HR pour l'ozone (en haut) et $PM_{2.5}$ (en bas) et pour la période "présent" (de 2001 à 2010). Les résultats sont présentés en %.*

Les résultats sont présentés sur la Figure 3.13. Pour **l'ozone**, la MFE varie de 0 à 17%. Les valeurs les plus élevées sont sur le continent et dans la partie Nord-Est du domaine. La MFB reprenant le même type de calcul mais en gardant le signe des différences au fur et à mesure de la somme, on retrouve les mêmes structures sur la carte mais avec des valeurs négatives (partie Nord du domaine) et positives (partie Sud du domaine). Finalement, la différence MFE - |MFB| montre des valeurs proches de zéro sur la quasi-totalité du domaine,

à l'exception des zones côtières. Pour les $\mathbf{PM}_{2.5}$, On obtient des valeurs de MFE variant de 0 à 30%. Pour MFB, on obtient des valeurs positives sur le continent et négative dans la partie Nord-Est ainsi que sur toute la partie Sud du domaine. Enfin, pour la différence MFE - |MFB|, on retrouve des résultats proches de ceux obtenus pour l'ozone, avec des valeurs faibles (de 0 à 5%) avec des valeurs maximales obtenues aussi le long des côtes, principalement.

Ces valeurs faibles de MFE - |MFB| à la fois pour l'ozone et les $PM_{2.5}$ permettent de penser que l'on peut chercher à estimer une carte de coefficients pour débiaiser les simulations LR, lorsque l'on dispose des simulations HR. Pour cela on définit le coefficient suivant :

$$C = \frac{HR - LR}{LR} \tag{3.11}$$

La simulation "LR" sans le biais, notée LRD, sera alors estimée en chaque point de la grille et pour chaque échéance temporelle telle que :

$$LRD = LR\,(1 + C) \tag{3.12}$$

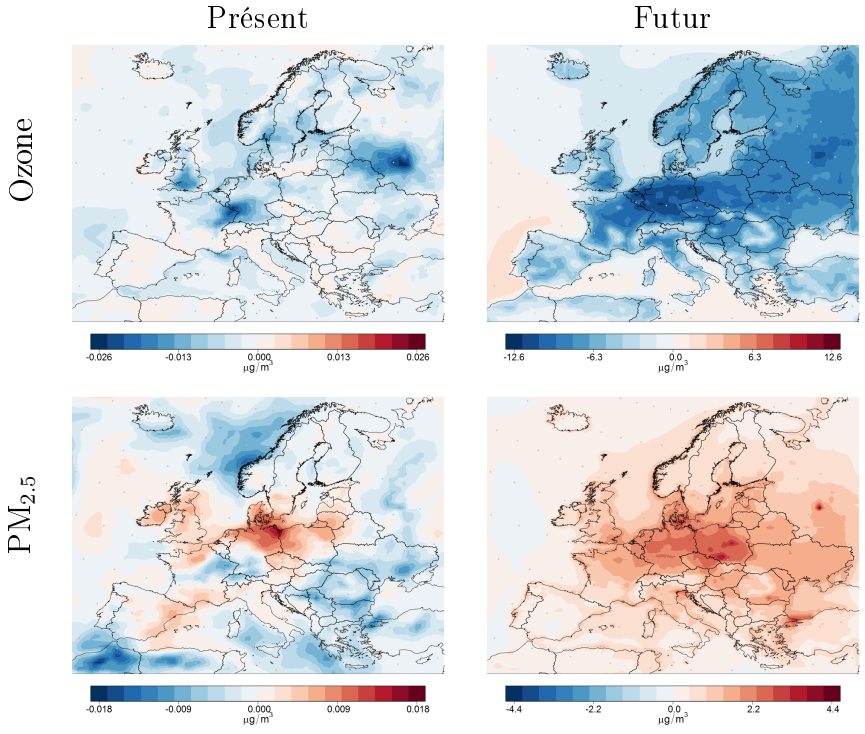


FIGURE 3.14 – *Cartes de valeurs de la différence HR-LRD, correspondant à la simulation LR corrigée du biais moyen estimé entre HR et LR sur le présent. Les cartes sont pour la période "présent" (à gauche) et pour la période "futur" (à droite) et pour l'ozone (en haut) et les $PM_{2.5}$ (en bas).*

Le coefficient est calculé sur la moyenne des différences annuelles. Les résultats sont présentés sur la Figure 3.14. L'application du coefficient spatial C est présenté pour la période "présent" en haut de la Figure et pour la période "futur" en bas de la Figure. Pour la partie "présent", l'application de ce coefficient de débiaisage induit des différences faibles. La correction est efficace lorsqu'on emploi le coefficient sur la période où il a été construit. Par contre, son application sur la partie "futur" montre des différences de valeur de LRD beaucoup plus importantes à la fois pour l'ozone et les $PM_{2.5}$: le biais moyen existant toujours entre HR et LR est de l'ordre de $\pm$ 13 $\mu g.m^{-3}$ pour l'ozone (principalement des valeurs négatives) et $\pm$ 5 $\mu g.m^{-3}$ pour les $PM_{2.5}$ (principalement des valeurs positives). On va donc avoir une simulation LR pour la période "futur" qui restera fortement sous-estimée pour l'ozone et sur-estimée pour les particules. Pour cette partie, on peut donc conclure qu'une approche de débiaisage avec un facteur multiplicatif calibré sur une décennie moyenne ne permet pas de pouvoir utiliser les simulations à basse résolution directement sur des projections futures.

3.7 Conclusion

Le but de ce chapitre était de **quantifier l'erreur que l'on introduit dans les études d'impact de climat sur la qualité de l'air si l'on ne dispose que de jeux de données de modélisation météorologique de résolution verticale dégradée**. Cette quantification est d'intérêt pour de futures études car les jeux de simulations météorologiques pour le climat représentent de très grandes quantités de données et l'ensemble des résultats est souvent partiellement sauvegardés par les équipes de modélisation.

Ces sauvegardes partielles consistent principalement à ne conserver que les données météorologiques principales (u,v,T,q,p) et sur un nombre de niveaux verticaux limités. Or, la modélisation de chimie-transport nécessite un minimum d'informations sur la verticale afin de reconstituer correctement l'ensemble des processus liés au mélange turbulent et au transport. Comme nous disposons d'un jeu de simulations météorologiques bien résolu, à la fois pour la période présente (2001-2010) et pour une période future (2071-2080), nous avons pu réaliser des simulations de chimie-transport avec le modèle CHIMERE afin d'évaluer la pertinence des résultats avec plusieurs scénarios de données de forcage météorologique.

Ces simulations de sensibilité ont consisté en deux périodes test d'un mois (un hiver et un été de climat présent) avec plusieurs combinaisons de dégradation des niveaux verticaux. Nous avons pu montrer qu'à partir de 10 niveaux verticaux (sur les 16 disponibles à l'origine), on pouvait retrouver des champs de concentrations d'ozone et $PM_{2.5}$ avec une erreur faible. Par contre, pour un nombre de niveaux verticaux inférieur, l'erreur induite devient importante. Sachant que plusieurs jeux de données météorologiques ne comportent que 3 niveaux verticaux, nous avons donc cherché à quantifier l'erreur induite dans ces configurations à 3 et 16 niveaux pour la météorologie. Toutefois, ces tests ont été réalisés avec le modèle de chimie transport CHIMERE, pour un autre modèle, avec des paramétrisations différentes (notamment de la turbulence), 10 niveaux pourraient ne pas suffire. De plus, il faut aussi prendre en compte la répartition verticale de ces niveaux dans l'atmosphère.

Une simulation de dix ans a été réalisée sur la période présente et nous avons montré que l'erreur générée avait deux origines différentes : (i) la prise en compte de variables non sauvegardées pour le diagnostic du mélange vertical, (ii) la structure verticale des champs météorologiques mal représentées. Notamment, nous avons montré que la méconnaissance des nuages au sommet de la couche limite ne permettait pas d'employer les schémas sous-maille existants dans CHIMERE et ajoutant un mélange supplémentaire lié à ces nuages. En supprimant ce processus, on obtient moins de différences en surface entre les configurations à 3 et 16 niveaux. Par contre, on ajoute une erreur sur les champs de concentrations simulés.

Afin de pouvoir quand même utiliser les différents jeux de données de climat, on a ensuite cherché à **évaluer le caractère systématique de l'erreur modélisée**. Une évaluation de l'erreur entre les simulations à 3 niveaux verticaux (LR) et 16 niveaux verticaux (HR) a été réalisée via un calcul du biais, de la RMSE et de la corrélation. Cela a permis de créer des cartes de facteurs correctifs pour l'ozone et les $PM_{2.5}$. Si la méthode a permis de débiaiser correctement les simulations pour la période présente (c'est-à-dire le jeu de données sur lequel les facteurs ont été estimés), leur application directe sur les simulations futures n'a pas permis d'éliminer de manière suffisante l'erreur quantifiée entre les résolutions verticales LR et HR.

Cette double étude de sensibilité permet donc de conclure que les jeux de données de modélisation météorologique disponibles actuellement avec une faible résolution verticale sur la base de donnée EuroCordex ne permettent pas de réaliser des études d'impact du climat sur la qualité de l'air de manière fiable. L'erreur générée par cette dégradation de l'information sur la verticale risque d'introduire une erreur supérieure au signal que l'on cherche à identifier.

Pour réaliser correctement ces études d'impact, il est donc recommandé soit de conserver l'intégralité des champs météorologiques, soit des jeux de données partiels mais avec des informations importantes relatives aux principaux facteurs de variabilité dans l'atmosphère tel que :

- La localisation des jets de vent, ou des inversions importantes de température
- Des variables supplémentaires comme l'altitude et l'épaisseur des nuages

4 Impact relatif des évolutions du climat et des émissions de polluants sur la qualité de l'air

Le travail présenté dans les chapitres précédents avait pour but de proposer des approches statistiques permettant de quantifier l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air. On s'est donc focalisé sur l'influence de la météorologie sur la qualité de l'air, or les émissions de polluants et de précurseurs jouent aussi un rôle essentiel pour la qualité de l'air. Il est donc important de chercher à quantifier l'importance relative de chacun de ces facteurs.

Dans la continuité de ce qui a été fait dans la première partie de la thèse, on présente ici une approche statistique peu coûteuse en temps de calcul ayant pour objet d'identifier les régions et les périodes où la pénalité climatique risque de compenser le bénéfice attendu des politiques de gestion de la qualité de l'air.

4.1 Introduction

L'impact relatif du changement climatique et des émissions sur les concentrations de polluants futures ont déjà été étudiés, notamment par *Hedegaard et al.* (2013); *Colette et al.* (2013); *Lacressonnière et al.* (2014); *Watson et al.* (2016); *Lacressonnière et al.* (2017); *Fortems-Cheiney et al.* (2017). La méthode classiquement mise en œuvre consiste à réaliser plusieurs simulations décennales à l'aide d'un modèle de chimie-transport forcé par différentes combinaisons de climat et d'émissions (futures et passées), illustrée par la Figure 4.1.

Les différences entre les projections calculées permettent d'identifier l'impact relatif du changement climatique et des émissions. Grâce à cette méthode, il a été mis en évidence, par *Hedegaard et al.* (2013) que l'impact des émissions est plus important que celui du changement climatique pour l'ozone et les particules fines. Cependant, la pénalité climatique atténue un peu les bénéfices des baisses d'émissions pour l'ozone. *Colette et al.* (2013) présente des résultats similaires où, pour l'ozone, la pénalité climatique (futur sans atténuation du changement climatique) estimée est environ 3 fois plus faible que la baisse des concentrations induites par les réductions d'émissions en suivant la législation actuelle (d'après le scénario ECLIPSE-V4a CLE 2050) à l'horizon 2050 pour un futur sans atténuation du changement climatique (pénalité climatique de 2-3 μg.m^{-3} contre 5-10 μg.m^{-3} de baisse induite par les mesures de réduction d'émissions). Pour les particules fines, les réductions d'émissions conduisent à une baisse de 7-8 μg.m^{-3} alors que l'impact du changement climatique se traduit par un bénéfice avec une baisse de 0-1 μg.m^{-3}. *Lacressonnière et al.* (2014), dont l'étude est basée sur des périodes de 5 ans et un futur sans atténuation du changement climatique, présente des conclusions similaires pour l'ozone. *Watson et al.* (2016) qui utilisent plusieurs

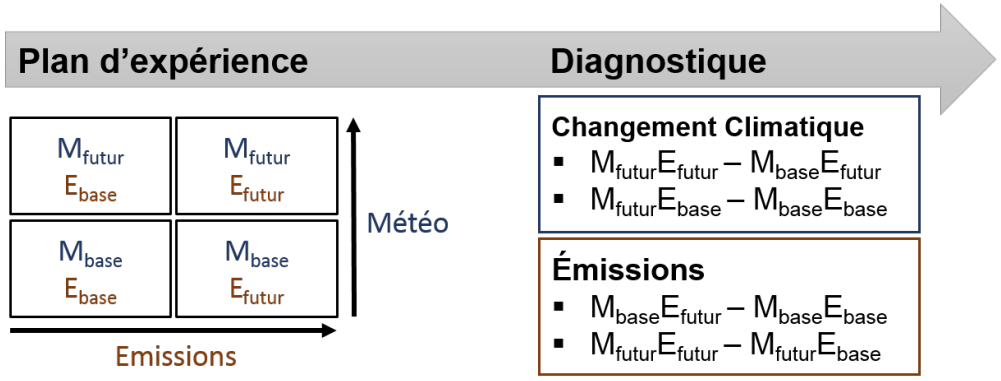


FIGURE 4.1 – *Schéma synthétique de la méthode couramment employée dans la littérature afin d'évaluer à l'aide d'un modèle de chimie-transport l'évolution des concentrations de surface d'un polluant en fonction de la variabilité future possible des émissions anthropiques (noté E) et de la météorologie (noté M).*

modèles de chimie transport et des périodes de 30 ans (déterminés par une hausse de 2 ° de la température moyenne) trouvent qu'une baisse des émissions réduit les concentrations d'ozone. Cependant, la pénalité climatique qu'ils calculent en faisant la différence entre un futur climatique (RCP4.5) et le présent avec des émissions futures (fixées en 2050) (Figure 4.1) n'est pas statistiquement significative sur l'ensemble du domaine. Les différences avec les articles précedemment cités peuvent s'expliquer par le scénario employé (RCP4.5) ainsi que les émissions futures appliquées pour le climat présent et climat futur. *Lacressonnière et al.* (2017) se focalisent sur les particules et trouvent que l'impact des émissions dominent celui du changement climatique avec des réductions de l'ordre de 25 à 30% des concentrations selon le modèle considéré contre -3 à +2 % pour l'impact du changement climatique seul en fonction des régions considérées. Le futur climatique considéré ainsi que les émissions sont les mêmes que *Watson et al.* (2016). On note ici que selon les modèles et la région considérée, le signe de l'impact varie : (i) une hausse robuste (accord entre les différents modèles) des concentrations de particules est observée sur la Péninsule Ibérique et une baisse sur l'Europe de l'Est, (ii) les évolutions sur le reste du domaine sont plus incertaines (pas d'accord des modèles). La nécessité de mieux prendre en compte l'impact du climat sur les particules est bien illustrée même si cette étude qui s'appuie déjà sur un ensemble de modèles, la couvre mieux que les précedentes réalisations (unique météorologie et CTM). Enfin, *Fortems-Cheiney et al.* (2017) évaluent la pénalité climatique pour un futur sans atténuation du changement climatique y compris en terme d'émissions de méthane (futur de plus 3 °) et la compare aux réductions d'émissions (scénario CLE 2050). Ils mettent en évidence que le bénéfice des réductions d'émissions sur les concentrations d'ozone sera compensé d'ici la fin du siècle sur de larges zones en Europe, en partie à cause des émissions de mèthane.

Finalement, il apparaît que pour chacun des articles présentés, l'impact des émissions est prépondérant sur celui du changement climatique et ce, même en considérant différents futurs climatiques ou des périodes différentes. On peut donc en conclure que le diagnostic général est

assez robuste. Par contre d'autres éléments restent en suspens comme l'étude de la période temporelle où le climat deviendra plus significatif que les émissions (ce que l'on appellera l'émergence du signal climatique), ou bien l'identification de secteurs d'activités spécifiques dont l'atténuation pourrait ne pas être suffisante pour compenser l'impact climatique.

L'ensemble des articles publiés par le passé mobilise le même type de technique, illustrée sur la Figure 4.1 et reposant sur des modèles de chimie-transport pour évaluer ces impacts. Malheureusement le coût de calcul de cette approche ne permet pas de systématiser l'exploration de toutes les périodes temporelles, scénarios climatique et scénarios d'émissions. Nous présentons donc ici un outil statistique simple qui permet d'**identifier l'impact du changement climatique et des émissions** et de les comparer en **prenant en compte la contribution de chaque secteur d'activité des émissions anthropiques**. Cet outil va nous permettre d'identifier d'éventuelles compensations entre l'impact du changement climatique et celui de certains secteurs.

4.2 Méthodologie

La Figure 4.2 présente une vision schématique de l'évolution future des concentrations d'ozone en fonction du temps. Si l'on s'attend à avoir une augmentation des concentrations avec le réchauffement climatique et une baisse avec les émissions de précurseurs, la question se pose de savoir : *Est-ce que l'impact négatif du climat va compenser tous les efforts possibles sur les émissions ?*, et si oui, *Peut-on déterminer à quelle période cela va se produire ?*. On pourra même envisager d'utiliser les capacités des modèles statistiques pour préciser les secteurs d'activités des émissions anthropiques ayant l'impact le plus fort dans ce système.

Pour estimer ces impacts, on fait tout d'abord l'hypothèse que la variabilité future de la concentration, Δc, est une fonction additive de la variabilité des émissions, ΔE et de la météorologie, ΔM, telle que :

$$\Delta c = f_1(\Delta E) + f_2(\Delta M) + \epsilon \tag{4.1}$$

avec ϵ un terme représentant les interactions existantes entre ces deux forçages et qui devra être négligé dans notre étude. Notons que l'impact des conditions aux limites n'est pas pris en compte.

La méthode développée dans cette étude s'appuie sur deux outils statistiques : **ProxyEmissions** et **ProxyMétéo**, utilisés pour évaluer ΔE et ΔM, respectivement. Ces outils sont décrits ci-après.

4.2.1 Modèle statistique pour les émissions anthropiques

L'outil, que l'on notera ici **ProxyEmissions**, a été reconstruit à partir des matrices sources-récepteurs (SRM) établies avec le modèle EMEP (*Simpson et al.*, 2012) pour alimenter l'optimisation effectuée avec GAINS (*Amann et al.*, 2011) dans le cadre de la Convention sur la Pollution Transfrontière. Ces matrices sont établies à partir de simulations sur l'Europe avec le modèle de chimie-transport EMEP, par comparaison avec des simulations de

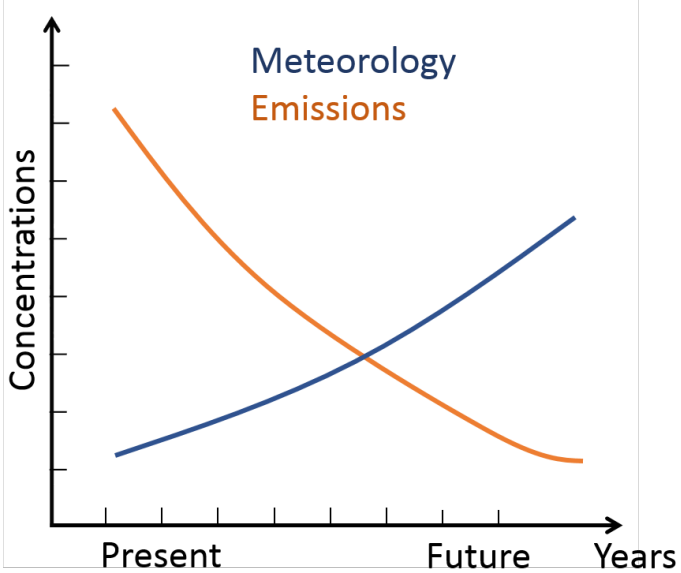


FIGURE 4.2 – *Vision schématique de l'évolution possible des concentrations de surface d'ozone en fonction de la variabilité future des émissions anthropiques et de la météorologie.*

sensibilité où les précurseurs sont réduits de 15% sur des régions données (*Wind et al.*, 2004). Les SRM ainsi construites permettent de relier les variations de concentrations aux variations des émissions à l'échelle d'un pays. Notons que la sensibilité aux variations des émissions est supposée homogène par pays. Ainsi quelque soit le secteur, la variation d'émission à le même poids.

Les SRM établies pour les concentrations de surface de $PM_{2.5}$ ainsi que pour l'indicateur appelé SOMO35 (*Sum of Ozone Means Over 35 ppb*). Cet indicateur est recommandé par l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) et permet de représenter l'exposition annuelle des populations à l'ozone. Il a été construit pour deux raisons :

— les fortes incertitudes de la fonction dose-réponse (i.e. fonction décrivant l'impact des concentrations d'ozone sur l'organisme) pour les basses concentrations d'ozone.
— les performances moyennes des modèles de chimie transport pour bien représenter les faibles concentrations d'ozone (*Amann*, 2008).

Pour chaque jour de l'année, le maximum journalier de la moyenne glissante de 8 heures d'ozone est calculé et les valeurs supérieures à 35 ppb sont cumulées sur l'année (équation 4.2). Cela définit le SOMO35 tel que :

$$SOMO35 = \sum_{d=1}^{d=Ny} max(A_8^d - 35\,ppb, 0.0) \tag{4.2}$$

avec A_8^d la moyenne glissante sur huit heures, d le jour, et N_y le nombre de jours dans une année ($N_y = 365$ ou 366)

La Figure 4.3 et les équations suivantes explicitent le calcul des SRM et son application à de futurs jeux d'émissions pour déterminer des nouvelles concentrations.

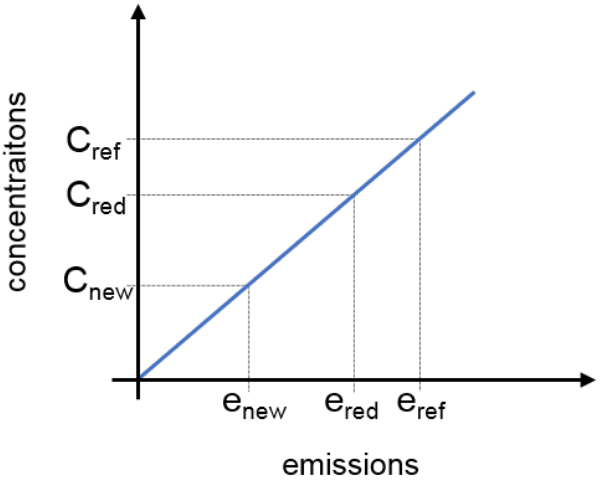


FIGURE 4.3 – *Représentation schématique du principe des SRM. E_{ref} sont les émissions de l'année de référence , E_{red} correspond à ces mêmes émissions réduites de 15%. C_{new} sont les concentrations que l'on cherche à quantifier avec des nouvelles émissions E_{new}.*

On calcule la SRM à partir de la différence entre deux simulations avec le modèle de chimie-transport EMEP pour des émissions de référence (E_{ref}) et des émissions réduites de 15% (E_{red}) tel que :

$$SRM = \Delta C = C_{ref} - C_{red} \; et \; E_{red} = 0.85\, E_{ref} \tag{4.3}$$

En pratique la réduction d'émission est appliquée pour chaque pays du domaine et chaque précurseur de polluant ou combinaison de précurseurs de polluants.

Lorsque l'on cherche à déterminer une nouvelle concentration notée ici C_{new} en s'appuyant sur les SRM, on extrapole linéairement l'évolution calibrée à partir de C_{ref} et C_{red}. Cela correspond à estimer la pente de la droite, a, liant les concentrations aux émissions.

$$a = \frac{C_{red} - C_{ref}}{E_{red} - E_{ref}} = \frac{C_{new} - C_{ref}}{E_{new} - E_{ref}} \tag{4.4}$$

Cela permet d'exprimer C_{new} en fonction de $(C_{red} - C_{ref})$:

$$(C_{red} - C_{ref})(E_{new} - E_{ref}) = (C_{new} - C_{ref})(E_{red} - E_{ref}) \tag{4.5}$$

On aboutit alors à la relation suivante qui permet de déterminer l'évolution des concentrations par rapport à un changement donné d'émission en utilisant la SRM :

$$C_{new} - C_{ref} = SRM \times 100/15 \times \frac{E_{new} - E_{ref}}{E_{ref}} \tag{4.6}$$

Les SRM sont calculées par polluant de deux manières :

- réduction de 15% des émissions de chaque précurseur indépendamment, alors que les autres restent constants
- réduction conjointe de 15% de tous les précurseurs simultanément

Ainsi pour estimer les concentrations de particules fines nous pouvons soit sommer les contributions de chaque précurseurs sous leur forme particulaire : PPM, NO_x, SO_2, VOC, NH_3 soit utiliser directement la matrice source récepteur qui traduit une baisse conjointe des émissions de précurseurs mais en perdant l'information sur la contribution de chaque précurseur. Les niveaux de SOMO35 sont estimés en sommant les contributions des deux précurseurs principaux de l'ozone : les NO_x et les VOC.

Pour cette étude, nous utilisons les SRM construites pour l'année 2013 (*Appendix C EMEP* (2015), lien de téléchargement : `http://www.emep.int/mscw/SR_data/Tables/2013_SRmatrices_EMEPStatus_1_2015AppC.tgz`). Pour estimer les concentrations de particules et afin de garder l'information sur la contribution des différents précurseurs, nous utilisons les SRM construites par précurseurs.

4.2.2 Modèle statistique pour la météorologie

On utilise ici le même type de modèle que dans le chapitre 2 mais dans une version modifiée, notée ici **ProxyMétéo** :

- Afin de proposer une information comparable au ProxyEmissions, on ne peut plus utiliser les résultats sous forme de régions aggrégées et le modèle statistique est recalculé en chaque point de grille, on parlera alors de maillage de modèle statistique.
- Les différences entre les périodes présentes et futures sont calculées à partir de concentrations en moyennes annuelles, les données ne sont plus désaisonalisées et on ne travaille plus ici en écart entre valeurs mais directement en valeurs absolues de concentrations. L'utilisation de moyenne annuelle nous est apparu comme moins risqué pour le calcul du SOMO35 plutôt que de calculer les maxima d'ozone journalier et d'en déduire le SOMO35.
- Le type de modèle statistique change et on passe du GAM à un modèle linéaire multivariable. On ne se limite plus à deux variables uniquement parmi les cinq. Ces choix sont motivés par l'utilisation de moyennes annuelles qui limitent le nombre de données pour entraîner le modèle statistique à 30 points (i.e. 30 ans).

Le modèle est toujours construit sur la période dite historique (1976-2005, simulation IPSL/WRF pour la météorologie et CHIMERE pour les polluants) comme dans le chapitre 2. Les calculs futurs sont réalisés sur le jeu de données météorologique EURO-CORDEX, déjà utilisé dans les chapitres précédents. Les performances des outils sont évalués dans la section ci-aprés.

4.3 Évaluation des outils statistiques

Cette partie, divisée en deux sections (une par outil), est consacrée à la qualification des performances des outils employés.

4.3.1 Évaluation du proxy émissions

Le modèle statistique ProxyEmissions reconstruit à partir des SRM EMEP est évalué par comparaison à des simulations chimie-transport pour une période passé. On exploite ici les résultats du projet EuroDelta-Trends (*Colette et al.*, 2017) qui met à disposition des simulations de chimie-transport sur la période 1990-2010 pour divers modèles dont EMEP et CHIMERE. Bien que la configuration de simulation ne soit pas identique à celle utilisée pour calculer les SRM, cette comparaison permet de vérifier que la modèle statistique est cohérent avec les modèles déterministes.

La Figure 4.4 présente des comparaisons entre les concentrations estimées avec les SRM et celles estimées par deux modèle de chimie transport : EMEP et CHIMERE. Les résultats sont présentés sous forme de diagrammes de dispersion. Chaque point représente un pays, avec les premières lettres de son nom. Les résultats pour l'indicateur SOMO35 et les $PM_{2.5}$ sont présentés pour trois combinaisons d'émissions pour les années 1990, 2000 et 2010. La météorologie et les conditions aux limites chimiques sont celles de 2010 afin d'améliorer la cohérence avec les SRM qui sont calculées à partir de la seule évolution des émissions anthropiques.

Pour le SOMO35, les SRM donnent globalement de bons résultats, Figure 4.4 (panneau du haut), et ce, particulièrement pour l'année 2010 et pour le modèle EMEP, malgré le fait que la configuration de modèle diffère. Cela peut s'expliquer par le fait que l'hypothèse des 15% d'émissions est respectée. En effet entre l'année 2010 et 2013 les variations des émissions n'excèdent pas les 15%. Seul Malte est mal représenté par la SRM : on suppose que cela est lié à la petite taille de Malte par rapport à la grille utilisée et que la méthode d'extraction peut induire une erreur. Les niveaux de SOMO35 sont légèrement moins bien représentés pour des émissions fortes (année 1990) mais les performances demeurent acceptables. D'après le Tableau 4.1, le biais moyen pour l'ensemble des pays en 1990 est ≈ 40 ppb.d avec une forte RMSE de 500 ppb.d contre -50 ppb.d avec une RMSE plus modérée de 274 ppb.d pour 2010. Ces différences suggèrent que l'hypothèse de linéarité demeure raisonnable. Le modèle de chimie transport CHIMERE produit, en moyenne, moins de SOMO35 que le modèle EMEP et donc que les SRM, avec une erreur et une RMSE en 2010 de l'ordre de 500 ppb.d. C'est un paramètre intéressant à prendre en compte puisque notre outil ProxyMétéo est basé sur des réalisations du CTM CHIMERE.

Les concentrations en particules fines estimées avec les matrices sources récepteurs montrent une sous-estimation des concentrations pour l'année 2010 (de l'ordre de 1 $\mu g.m^{-3}$) et une surestimation pour l'année 1990 (de l'ordre de 4 $\mu g.m^{-3}$). La sous estimation est amplifiée pour le modèle CHIMERE qui produit en moyenne plus d'aérosols que le modèle EMEP, environ 2 $\mu g.m^{-3}$ d'après Tableau 4.1. Ces résultats sont à nuancer selon le pays considéré mais restent valables pour l'ensemble des pays évalués ici.

Globalement les différences entre concentrations estimées par les SRM et par le CTM peuvent s'expliquer principalement par les différences de configuration des modèles, notamment à travers la météorologie et les conditions aux limites.

On ne peut par ailleurs pas exclure que la réaggregation des émissions spatialisées (0.5°) vers des totaux par pays puisse conduire à une perte d'information et induire une erreur sur

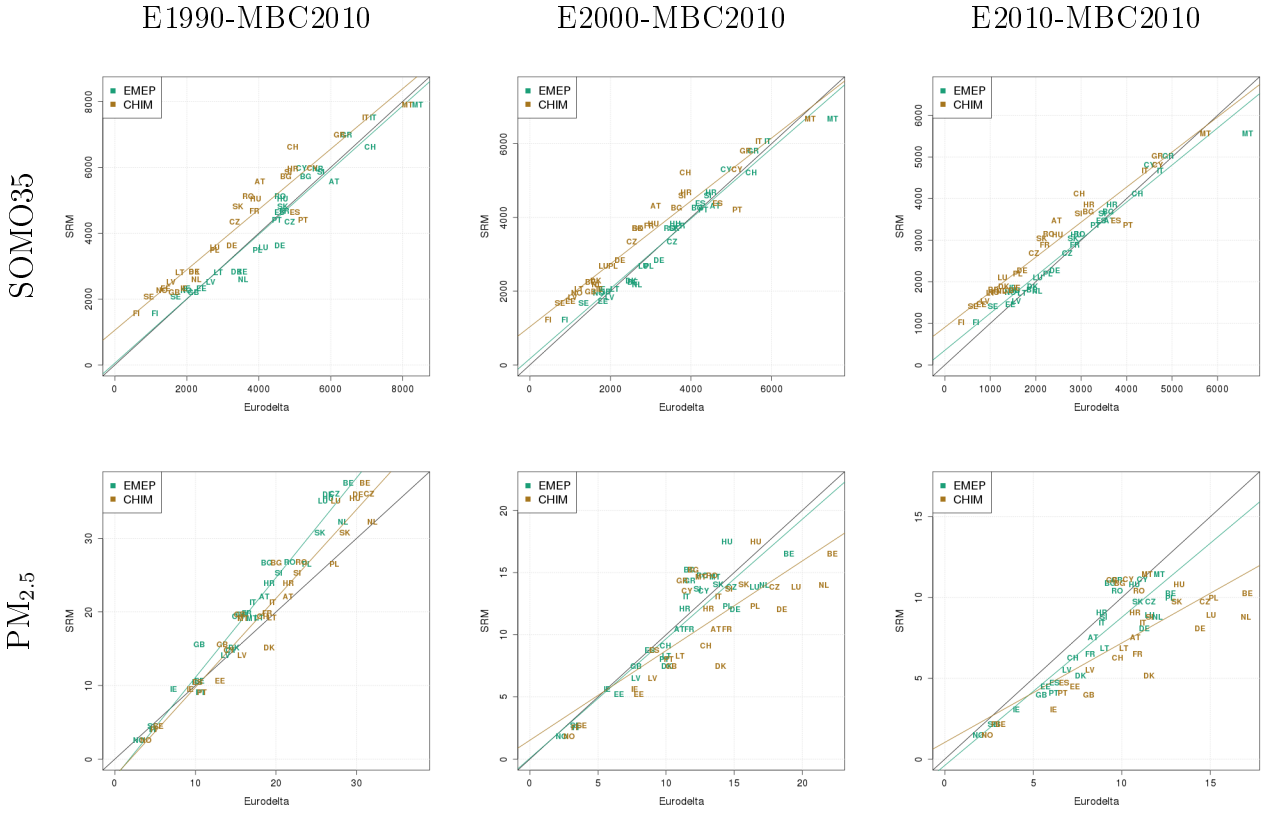


FIGURE 4.4 – *Comparaisons entre les concentrations estimées avec les SRM et celles estimées par les modèles EMEP et CHIMERE dans le programme EuroDelta-Trends. Les résultats pour l'indicateur SOMO35 (ppb.d) et les $PM_{2.5}$ ($\mu g.m^{-3}$) sont présentés (resp. panneau du haut et du bas) pour différentes combinaisons sur les émissions : E=1990, 2000 et 2010. La météorologie (M) et les conditions aux limites chimiques (BC) restent identiques et sont celles de 2010.*

les émissions utilisées en amont des SRM. Cette erreur peut s'amplifier par le fait que l'on somme les différents précurseurs sous leur forme particulaire ($PM_{2.5}$ = PPM + NH_3 + SO_2 + NO_x + VOC ; SOMO35 = NO_x + VOC) pour estimer les concentrations.

En somme, on confirme la robustesse des sources matrices récepteurs pour estimer les changements de concentrations même pour des évolutions substantielles d'émissions comme celles qui ont eu lieu depuis 1990. Cela peut s'expliquer par le fait que l'hypothèse de linéarité est bonne en considérant un pas de temps annuel ou que les réductions importantes d'émissions ont touché majoritairement le SO_2 et que celui-ci n'affecte que peu les concentrations d'ozone et de PM. Il demeure cependant des différences systématiques dans la comparaison entre les CTM EMEP et CHIMERE. Etant donné que les SRM sont construites avec le modèle EMEP et le proxyMeteo avec le modèle CHIMERE, ces différences (en moyenne 2 $\mu g.m^{-3}$ pour les $PM_{2.5}$ et 500 ppb.d pour le SOMO35 en 2010) devront être gardées à l'esprit dans la synthèse.

		$PM_{2.5}$		SOMO35	
Eyyyy-MBCyyyy	Comparaison	Biais	RMSE	Biais	RMSE
E1990-MBC2010	EMEP-SRM	-3.7	4.9	45	467
	CHIM-SRM	-1.7	3.3	-763	928
	CHIM-EMEP	2.0	2.4	-808	1035
E2000-MBC2010	EMEP-SRM	0.4	1.8	3	284
	CHIM-SRM	2.0	3.5	-619	766
	CHIM-EMEP	1.7	2.2	-622	803
E2010-MBC2010	EMEP-SRM	1.1	1.6	-47	274
	CHIM-SRM	2.9	3.8	-544	662
	CHIM-EMEP	1.8	2.3	-497	645

TABLE 4.1 – *Biais et RMSE entre SRM, EMEP (EMEP EuroDelta-Trends) et CHIM (CHIMERE EuroDelta-Trends) des niveaux de $PM_{2.5}$ et SOMO35 estimées pour les pays présentés Figure 4.4.*

4.3.2 Évaluation du proxy météo

Dans cette partie, nous présentons, selon le polluant ou l'indicateur considéré, le maillage de modèle linéaire : ses caractéristiques (prédicteurs, pourcentage de variance expliquée), ses performances sur l'historique (période d'apprentissage) et sur le futur (période de test) afin de valider, ou non, son utilisation pour des comparaisons futures avec l'impact des émissions.

4.3.2.1 SOMO35

La Figure 4.5 présente les caractéristiques du maillage de modèle linéraire, à savoir, les coefficients des prédicteurs (température, hauteur de couche limite, précipitations, rayonnement solaire et vent à 10m), l'intercept et le R^2 ajusté pour le SOMO35. Les prédicteurs des modèles statistiques sont déterminés en realisant une "stepwise regression" basé sur le AIC (Aikake Criterion) (*Hastie et al.*, 2009).

On définit :

- **intercept :** Cette variable représente l'ordonnée à l'origine, terme b du modèle linéaire développé ici en $y = ax + b$. En d'autres termes elle représente le terme constant lorsque tous les prédicteurs valent 0.
- **R^2 ajusté :** Cette variable représente la variance expliquée par le modèle statistique, l'ajustement est lié au nombre de prédicteurs et permet d'éviter l'augmentation mécanique du R^2 (i.e. plus on ajoute de prédicteurs plus le R^2 augmente).

Les différents modèles statistiques sont performants avec plus de 60% de variance des niveaux de SOMO35 expliquée sur de larges parties du domaine. Les modèles les moins performants sont situées en bordure du domaine : à l'Ouest sur l'océan Atlantique, au Nord (peu de production d'ozone) et sur le pourtour Sud Méditerranéen pourtant sujet à de fortes

concentrations d'ozone l'été. Les performances sur l'ensemble d'apprentissage (le présent) et l'ensemble de test (le futur) sont décrites en détail ci-après.

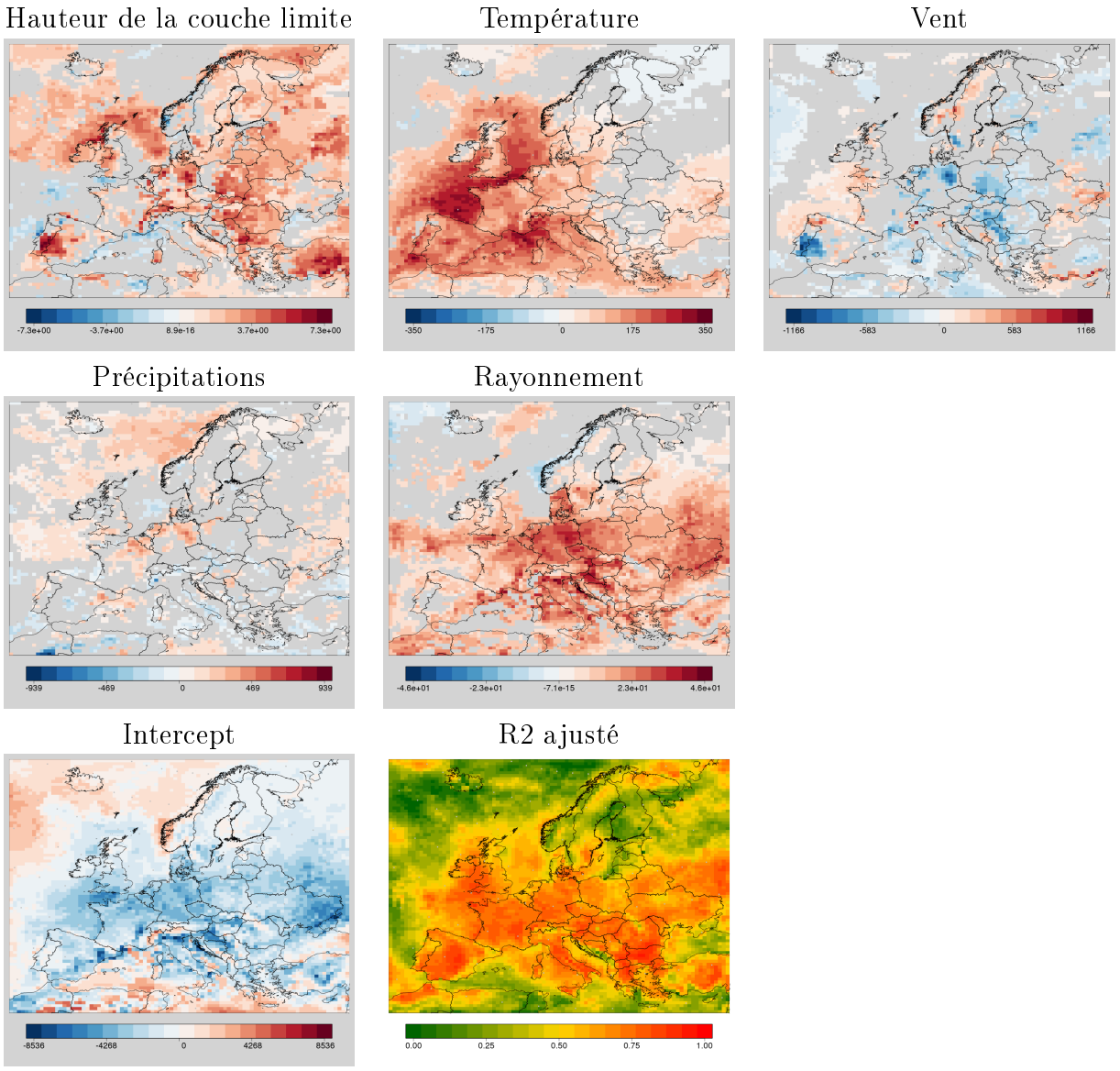


FIGURE 4.5 – *Cartographie des coefficients de chaque prédicteur météorologique, de l'intercept et du R2 ajusté du maillage de modèles statistiques pour le SOMO35.*

Les prédicteurs les plus importants identifiés par le modèle sont : la température, le rayonnement solaire et la hauteur de couche limite. Globalement ces trois prédicteurs ont tendance à augmenter les niveaux de SOMO35 (les coefficients de régression sont positifs). On sait que l'ozone est un polluant photo-chimique secondaire et que la température et le rayonnement sont des variables importantes pour sa formation. La température est particulièrement influente sur le pourtour Méditerranéen et en Europe de l'Ouest alors que l'influence du

rayonnement solaire est mieux répartie sur l'ensemble du domaine avec une importance relativement plus élevée en Europe de l'Est où le prédicteur température est peu présent. La température va renforcer les réactions chimiques et favoriser les émissions biotiques d'isoprène qui est un précurseur important de l'ozone. Le rayonnement solaire va agir comme une source en augmentant la production d'ozone en présence de NO_x mais aussi comme un puit en favorisant la présence du radical OH en présence de vapeur d'eau. L'effet positif de la hauteur de couche limite est attribué aux phénomènes de stagnation accompagnés de hauteurs de couche limite importantes en été. Mais on constate aussi que les faibles hauteur de couche limite conduisent à une accumulation des polluants tels que les NO_x qui peuvent titrer l'ozone. Ce prédicteur est important sur la partie Est du domaine notamment et sur quelques zones marquées comme le Portugal et autour de Berlin, où le vent est aussi un prédicteur important. Pourtant le vent et les précipitations sont finalement peu sélectionnés par rapport aux autres prédicteurs. Le vent aurait tendance à faire baisser les niveaux de SOMO35 via le phénomène de dispersion des polluants. Par contre il est difficile d'expliquer pourquoi les précipitations feraient augmenter le SOMO35, on atteint alors les limites de l'exercice avec des compensations possibles entre les différents facteurs (ce qui avait conduit à limiter l'analyse à deux prédicteurs dans le chapitre 2).

Le biais moyen est quasi nul sur la période "présent", correspondante à la période d'apprentissage ce qui est attendu (modèle linéaire). La RMSE varie entre 0 et 150 sur l'ensemble du domaine, elle est donc modérée par rapport aux niveaux de SOMO35 estimés (erreur inférieure à 20%). Les corrélations sont élevées sur la majeure partie du domaine. Les zones où les corrélations ne sont pas calculées (proche Islande et Nord de la Norvège) sont des zones où aucun des prédicteur n'est sélectionné et le modèle linéaire est une constante (égale à la valeur de l'intercept).

Sur l'ensemble "futur", les performances du modèle statistique sont plus modérés. Le biais moyen est fort, de l'ordre de -400 à +500 avec de fortes disparités comme l'illustre la Figure 4.7. On observe une nette séparation entre la partie ouest et la partie est du domaine avec respectivement une surestimation et une sous estimation du modèle statistique. Pour la zone de forte surestimation (Océan Atlantique, mer Baltique et la Manche), la température est le principal prédicteur, avec un effet très fort sur les concentrations. Il semblerait que son évolution future importante liée au changement climatique induise une surestimation des concentrations par le modèle linéaire. Il se peut aussi que les niveaux d'ozone soit plus sensibles à une variable météorologique qui ne fait partie des prédicteurs ou que l'utilisation de concentrations annuelles dégradent les performances du modèle statistique (peu de points pour l'entraîner). Cela peut s'illustrer par le fait que, dans le chapitre 2, les modèles bâtis sur les maxima d'ozone journaliers en été (maximum journalier de la moyenne glissante de 8 heures d'ozone) étaient plus performants. Les corrélations sont importantes sur la majorité du domaine et les tendances entrevues sur l'historique s'amplifient un peu : corrélation nulle sur quelques zones maritimes et notamment au Sud de la Grêce.

4.3.2.2 $PM_{2.5}$

Les R^2 ajustés du modèle statistique sont bons en Europe de l'Est, en Grande Bretagne et en partie sur la France Figure 4.6. Ces résultats semblent satisfaisants puisque le modèle est performant sur des zones historiquement exposées à la pollution aux particules fines (i.e. Benelux). Les principaux prédicteurs identifiés par le modèle sont : la hauteur de couche limite, la température et le vent. La hauteur de couche limite participe à faire diminuer les concentrations des particules par des phénomènes de dilution. Son influence est forte sur les surfaces continentales et plus faible sur les surfaces océaniques en lien avec l'absence de source de particules et la faible variabilité de la couche limite marine. La température peut avoir des impacts différents selon le type de particules que l'on étudie, cependant, en considérant la masse totale des $PM_{2.5}$, la température diminue les concentrations en favorisant la volatilité et donc le passage de la particule vers le gaz. Ainsi, le facteur température est important autour du Bénélux, en Italie et en Europe de l'Est. Le vent a tendance à faire diminuer les concentrations sur les surfaces terrestres par des phénomènes de dispersion des polluants alors qu'il les augmente sur les mers en favorisant l'émission de sels marins. Les précipitations sont peu influentes, sans doute à cause d'un effet de seuil où la quantité de précipitation compte moins que leur présence/absence (cf. chapitre 2). Le rayonnement est très peu sélectionné comme prédicteur et semble avoir une influence très limitée.

Le biais moyen entre le modèle statistique et le CTM CHIMERE est nul sur l'historique (la période où le modèle est entraîné) et la RMSE est faible sur l'ensemble du domaine (≈ 0.7 $\mu g.m^{-3}$). Les corrélations sont globalement importantes en Europe, mais dans une moindre mesure en Espagne et en Scandinavie. Sur l'océan Atlantique, où le modèle est déterminé uniquement par l'intercept (valeur moyenne constante sur 10 ans), les corrélations ne sont pas définies. Sur la période future utilisée comme validation (Figure 4.7 panneau du bas), les statistiques se dégradent. Le biais moyen varie entre $\pm$ 2 $\mu g.m^{-3}$, la RMSE reste modérée sur l'ensemble du domaine (≈ 0.75 $\mu g.m^{-3}$) sauf en Europe de l'Est avec une RMSE qui double et au niveau de la Manche et de la mer Méditerrannée au Sud de la France et Nord de l'Italie. Les corrélations sont satisfaisantes sur les zones polluées comme le Benelux mais plus modérées en Europe de l'Est (≈ 0.5).

4.3.2.3 Sélection des modèles statistiques

Afin de sanctionner le pouvoir prédictif de notre modèle et d'identifier les pays où nous pourrons comparer l'impact futur du climat et des réductions d'émissions nous reprenons le même type d'indicateur que dans le chapitre 2. Il prend en compte l'aptitude du modèle à reproduire les concentrations sur le présent sur le futur (pouvoir prédictif). Le critère sur le présent est d'avoir un R^2 ajusté supérieur à 0.4. Pour l'évaluation du pouvoir prédictif du modèle statistique, on compare les différences (Futur - Historique) prédites par le modèle statistique et celles prédites par le modèle CHIMERE, Figure 4.7. Si l'écart entre les deux est trop grand (valeurs dont la NRMSE est supérieure à 1) alors la capacité du modèle statistique est jugée insuffisante. Les zones grisées sur la Figure 4.7 représentent les modèles exclus par ces conditions.

L'application du critère aux concentrations de SOMO35 et de $PM_{2.5}$ est présentée sur la

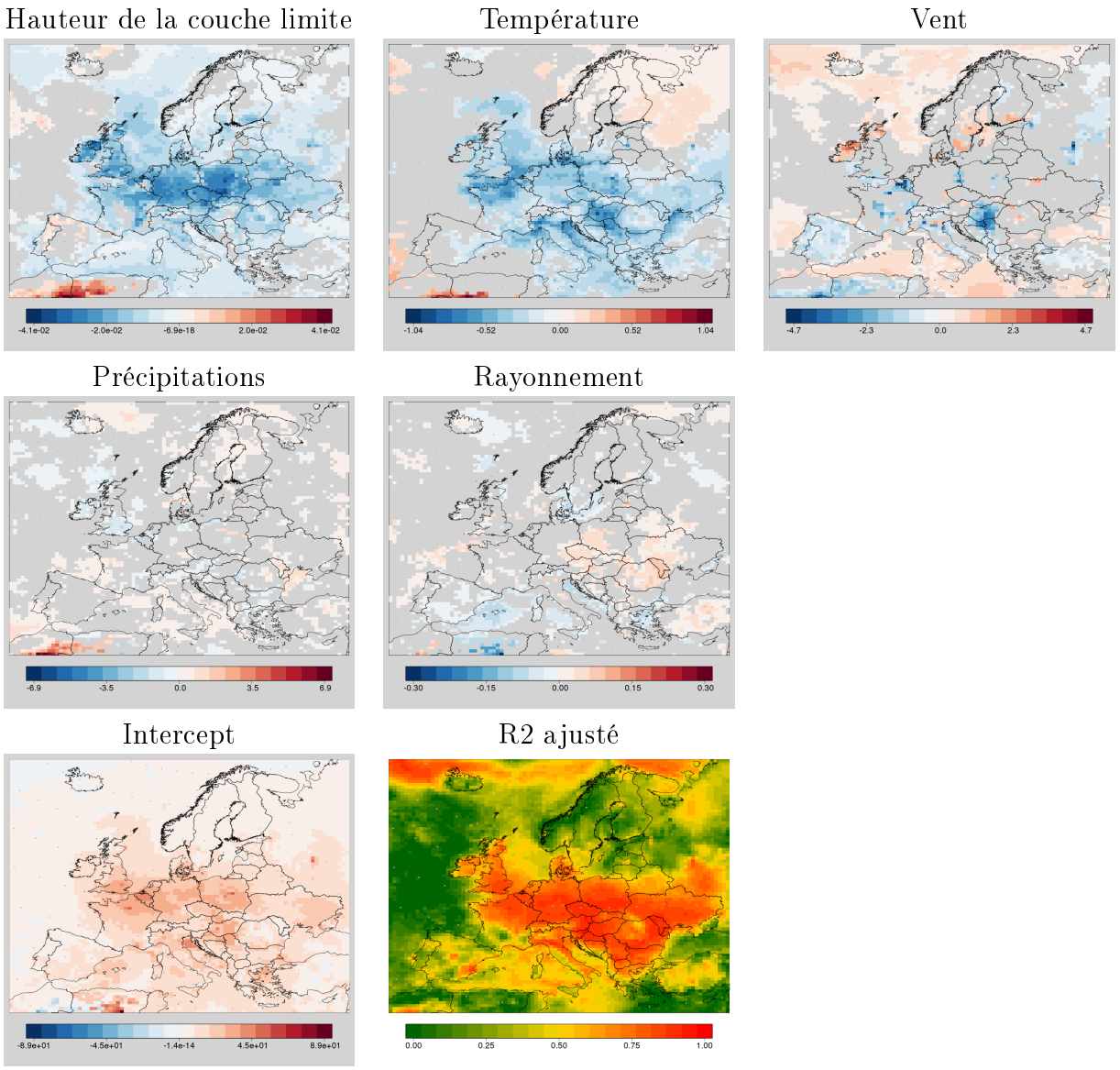


FIGURE 4.6 – *Présentation des coefficients et du R2 ajusté du maillage de modèles statistiques pour les particules fines.*

Figure 4.7. Pour le SOMO35, peu de zones sont sélectionnées : Benelux, France, Allemagne et Italie essentiellement. Compte tenu des faibles performances du modèle à prédire les concentrations futures, le faible nombre de pays retenus n'est pas une surprise. Rappelons que l'utilisation des maxima d'ozone, comme dans le chapitre 2, permettrait d'améliorer les résultats et d'étudier un plus grand nombre de pays.

Pour les particules fines, le modèle statistique présente une aptitude satisfaisante sur le présent et le futur pour les zones Benelux, France, Allemagne, Italie, Grande-Bretagne et Europe de l'Est. Ces zones sont donc sélectionnées en vue d'une évaluation relative de

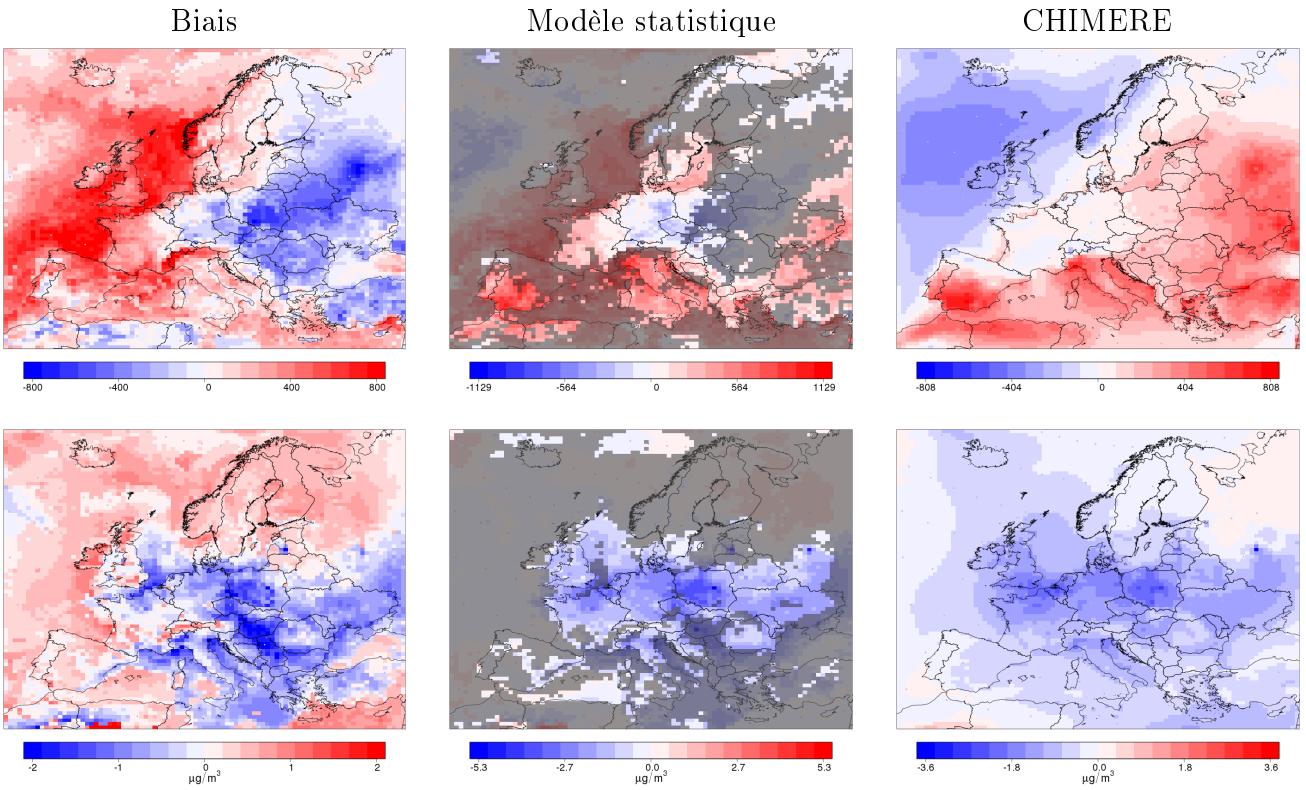


FIGURE 4.7 – *La colonne de gauche représente le biais entre le modèle statistique et CHIMERE sur l'ensemble test (2071-2100). Les deux autres présentent la comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations sous l'effet du changement climatique dans le modèle statistique (proxyMeteo) et le modèle de chimie-transport CHIMERE pour le SOMO35 (panneau du haut) et les particules fines (panneau du bas).*

l'impact du climat et des émissions dans la section 4.4. On note que le modèle statistique n'est considéré satisfaisant que sur des zones où le changement climatique induit un bénéfice, c'est-à-dire une réduction des concentrations de PM2.5. Comme on l'a vu dans le chapitre 2, le fait que ce modèle soit exclusivement "local" est un frein pour reproduire des phénomènes tels que les transport de poussière désertiques.

4.3.3 Synthèse sur l'évaluation des proxys émissions et météo

Cette qualification des outils nous a permis de valider que notre recontruction du modèle de sensibilité aux émissions, basé sur les sources matrices récepteurs d'EMEP, permet de quantifier l'impact de nouveaux jeux d'émissions sur les concentrations. Il permet de calculer l'influence de chaque précurseurs et d'étudier les évolutions des émissions par secteur.

Le proxy météo donne globalement des résultats moins satisfaisants. Les mêmes prédicteurs sont identifiés pour le modèle statistique par rapport au chapitre 2 : (i) température,

rayonnement et hauteur de couche limite pour le SOMO35, (ii) hauteur de couche limite, température et vent pour les $PM_{2.5}$. Le proxy météo a un pouvoir prédictif modéré qui varie beaucoup selon la région considérée. On remarque notamment que les erreurs les plus importantes semblent spatialement corrélées avec les zones où la température est le prédicteur principal. Cela montre que les modèles surestiment probablement l'effet de la température. L'ajout de l'humidité spécifique comme variable explicative n'a pas amélioré les choses du fait de la très forte colinéarité entre les deux variables météorologiques. Employer l'humidité relative, qui s'affranchit de l'information de la température est une piste à évaluer.

Finalement après avoir appliqué un critère pour sanctionner l'aptitude des modèles à prédire les concentrations sur le présent et le futur Figure 4.7, les pays suivants ont été retenus pour l'évaluation de l'impact du climat et des réductions d'émissions :

- **SOMO35** : Allemagne, Belgique, France, Italie, Luxembourg, et Pays-Bas.
- **$PM_{2.5}$** : Allemagne, Belgique, France, Grande-Bretagne, Italie, Luxembourg, Pays-Bas et Pologne.

De nombreux types de modèle statistiques ont été testés sans améliorer significativement les erreurs rencontrées avec la méthode actuelle. L'ajout comme prédicteur de la variable humidité n'a pas permis d'améliorer la prédiction du modèle. Le peu de valeurs pour entraîner le modèle (30 points par point de grille) ne facilite pas l'utilisation de GAM. Ces GAM, fortement limité en terme de degrés de liberté, n'améliorent pas les résultats avec certainement un problème de sur-apprentissage sur le présent. Dans un premier temps, l'emploi de données annuelles semblait judicieux (temps de calcul et volume de données moindre), prédiction directe des valeurs de SOMO35 (sans passer par les pics d'ozone). Désormais, l'utilisation de données annuelles semble être le principal frein à l'amélioration des résultats et à l'utilisation d'un plus grand nombre de pays. La construction d'un GAM par mois sur les 30 ans de présent en chaque point de grille apparaît comme la solution la plus à même d'améliorer les performances du modèle statistique. De plus, avoir des SRM d'ozone nous permettrait d'employer la même méthode que celle du chapitre 2.

4.4 Comparaison de l'impact du changement climatique et des réductions d'émissions

Suite à la validation de nos modèles statistique, et en particulier celui reproduisant l'impact du changement climatique (proxyMeteo), seuls quelques pays ont été retenus pour évaluer l'impact respectif du changement climatique et des réductions d'émissions. L'ensemble des pays selectionnés est discuté mais seuls les résultats pour la France et la Belgique sont dans le corps du manuscrit, les autres sont en annexe A.2.

Dans un premier temps on va mettre en perspective l'impact du changement climatique (2010 à 2100) et des réductions d'émissions (2010 à 2050) afin de déterminer si le signal climatique domine, d'ici la fin du siècle, les évolutions des concentrations par rapport aux réductions d'émissions. L'impact des émissions représente l'évolution entre les émissions de 2010 et un scénario futur en 2050 (provenant des projections ECLIPSEV5a *CLE : Current*

Legislation, (Amann et al., 2015)) et celui du changement climatique est calculé sur la période 2010-2100 à partir des projections climatiques de l'ensemble Euro-Cordex pour le RCP8.5 et le RCP4.5. Ici on ne présente que deux combinaisons correspondantes à une baisse générale des émissions en Europe selon le scénario CLE en 2050 et/ou le scénario MFR.

Dans un second temps, on va estimer l'impact relatif des réductions d'émissions et du climat en nuançant l'analyse par secteurs d'émissions et par précurseurs. L'idée est de voir, à l'horizon 2050, si l'impact du climat peut compenser certains secteurs d'émissions. Dans cette section, la baisse des émissions entre 2010 et 2050 suit le scénario CLE, son impact sur les concentrations est mis en perspective avec l'impact du climat pour un futur sans atténuation du changement climatique (moyenne sur les années 2041-2060).

4.4.1 Phasage temporel des impacts

4.4.1.1 SOMO35

On s'est intéressé à déterminer l'émergence du signal climatique par rapport à l'évolution des émissions. On cherche donc à déterminer le moment où l'impact du climat va prendre le pas sur celui des émissions de polluants. La Figure 4.8 présente les résultats obtenus pour la France et la Belgique. Ici, seul l'impact des émissions totales est représenté et calculé par rapport à l'année 2010. L'impact du climat est évalué par rapport à notre période de référence (1976-2005), moyenné spatialement par pays et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans.

Pour la Belgique, on constate une hausse du SOMO35 liée à la réduction des émissions si la trajectoire suit la législation en cours (CLE). Cette hausse des concentrations est liée au régime saturé en NO_x qui domine la région. Le même type de comportement est observé pour les autres pays du Benelux, à savoir, les Pays-Bas et le Luxembourg. Si les objectifs du scénario MFR sont atteints, après une hausse des concentrations jusqu'en 2025, une forte diminution est constatée : l'évolution totale entre 2010 et 2050 correspond donc à une légère diminution (50 ppb.d). Dans les deux cas, l'impact des émissions atteint un plateau dès 2030, avec des améliorations limitées sur la période 2030-2050 liées au fait que la majeure partie des réductions d'émission pour l'Europe est attendue d'ici 2030. La pénalité climatique amène, elle, à des valeurs importantes de SOMO35 à l'horizon 2100. Selon le scénario considéré, RCP8.5 ou RCP4.5, les différences de SOMO35 sont plus ou moins fortes avec des valeurs de respectivement $\approx 400 \pm 250$ ppb.d et 150 ± 150 ppb.d. On remarque que lorsque l'on considère le RCP4.5, tous les modèles ne montrent pas une hausse des concentrations à l'horizon 2100 avec une valeur moyenne de 150 ± 250 ppb.d. Si on s'intéresse à la résultante des deux impacts, on s'aperçoit que la pénalité climatique va s'ajouter à la tendance induite par les émissions pour le scénario CLE. Si, pour le scénario MFR, la stagnation du SOMO35 en réponse aux évolutions des émissions entre 2030 et 2050 devait se poursuivre, on se dirige vers une émergence du signal climatique pour cette même période. Les efforts réalisés entre 2010 et 2050 seraient alors masqués par le signal climatique. Le même type de conclusion s'appliquent aux Luxembourg et Pays-bas avec toutefois des nuances : l'amplitude des réductions d'émissions et du signal climatique varient d'un pays à l'autre ainsi que la dispersion

des modèles (Figure A.3 et Figure A.4).

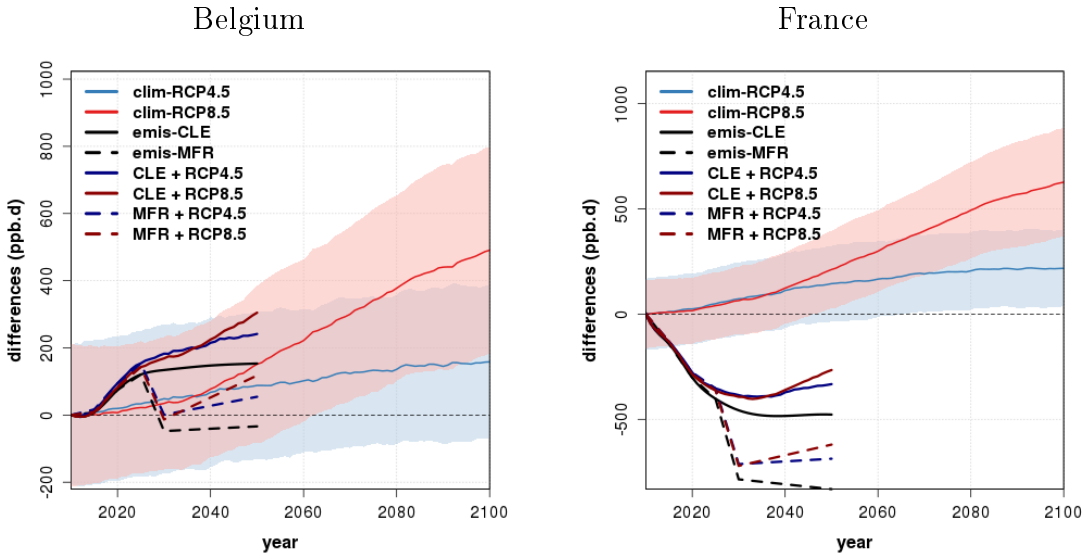


FIGURE 4.8 – *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 pour la Belgique et la France. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).*

Pour la France, on constate aussi une réduction des niveaux de SOMO35 : de l'ordre de 500 ppb.d pour le scénario CLE et 800 pour le scénario MFR. La pénalité climatique est importante et sera à l'horizon 2100 de 550 ± 200 ppb.d pour le RCP8.5 contre 200 ± 100 ppb.d pour le RCP4.5. La dispersion des modèles est plus faible que pour la Belgique et les deux futurs climatiques conduisent à une hausse des concentrations de SOMO35 d'ici la fin du siècle. Si l'on considère le scénario CLE et que les réductions d'émissions n'évoluent plus, alors l'émergence du signal climatique pour un futur sans atténuation (RCP8.5) arriverait autour de 2080, après 2100 en considérant le RCP4.5. L'Italie et l'Allemagne présentent des conclusions similaires cependant, la baisse du SOMO35 est beaucoup plus forte en Italie (≈ 800 ppb.d pour CLE et 1500 ppb.d pour MFR) qu'en Allemagne (≈ 200 ppb.d pour CLE et 400 ppb.d pour MFR) repoussant l'émergence du signal climatique à la toute fin du siècle contre 2055 si CLE est considéré pour l'Allemagne comme l'illustre la Figure A.2 et la Figure A.1.

Finalement on a vu que la pénalité climatique allait avoir un impact important pour les futurs niveaux de SOMO35 et allait contrebalancer les efforts de réductions d'émissions alors que le bénéfice climatique va s'associer aux réductions d'émissions pour les particules fines. Il est important de souligner que les modèles statistiques employés sont construits avec des émissions de 2010 alors que dans le futur les émissions vont baisser. Le signal du changement climatique évalué par les modèles statistiques est donc majorant.

4.4.1.2 $PM_{2.5}$

Pour les particules fines en Belgique, on observe un bénéfice climatique, les concentrations de $PM_{2.5}$ vont diminuer avec le changement climatique comme le montre la Figure 4.9. Toutefois, ce bénéfice n'est pas certain si l'on considère le RCP4.5 dont l'enveloppe de l'incertitude couvre largement une hausse ou une réductions des concentrations. Lorsque l'on considère un futur sans atténuation du changement climatique, après 2060, l'incertitude couvre uniquement une baisse des concentrations de particules fines conduisant à un bénéfice climatique de l'ordre de -1.8 $\pm$ 1 $\mu g.m^{-3}$. Les réductions d'émissions, quelque soit le scénario, conduisent à une diminution des concentrations de $PM_{2.5}$ de $\approx$ 4 $\mu g.m^{-3}$ pour CLE et $\approx$ 6.5 $\mu g.m^{-3}$ pour MFR. Finalement, l'impact du changement climatique est plus faible que la baisse liée aux émissions mais, étant de même signe, il va venir la renforcer.

Pour la France (Figure 4.9), la diminution des concentrations liée aux réductions d'émissions est plus faible qu'en Belgique avec des valeurs de l'ordre de $\approx$ 2.7 et 3 $\mu g.m^{-3}$ pour respectivement CLE et MFR. Un bénéfice climatique est aussi mis en évidence avec une dispersion de l'ensemble plus modérée et un bénéfice climatique plus net que pour le RCP4.5. Finalement les signaux étant de même signe, ils vont là encore se renforcer. Ce type de conclusion s'applique à l'ensemble des pays évalués avec des différences d'amplitudes des concentrations. Cela est certainement dû au fait que notre cas d'étude est une baisse sur l'ensemble des pays Européens pour un scénario CLE et un MFR. En nuançant les baisses, d'autres réponses auraient pu apparaître. Dans la partie suivante, on va s'intéresser pour ces mêmes pays à décomposer l'impact des réductions d'émissions par secteurs et par précurseurs afin d'identifier plus finemenent l'influence de la pénalité climatique.

4.4.2 Décomposition par secteurs d'émissions

4.4.2.1 SOMO35

Pour la Belgique, sur la Figure 4.10, on observe une baisse des émissions totales de 2050 par rapport à 2010 pour les NO_x et les VOC (resp. 50 et 18%). La principale baisse d'émissions concerne les transports de surface (voitures, train...). Les seuls secteurs dont les émissions augmentent sont l'industrie (très faible hausse d'environ 1%) et les solvants (hausse des émissions de COV d'environ 10%). Les niveaux de SOMO35 vont augmenter en 2050 par rapport à 2010 en Belgique d'environ 170 ppb.d. Cette hausse apparait principalement due au secteur du transport, dont les niveaux de SOMO35 issues des NO_x vont augmenter fortement à l'inverse des niveaux de VOC (baisse modérée). Cette hausse, alors que les émissions domestiques baissent, est dûe au passage d'un régime chimique à un autre, un tel

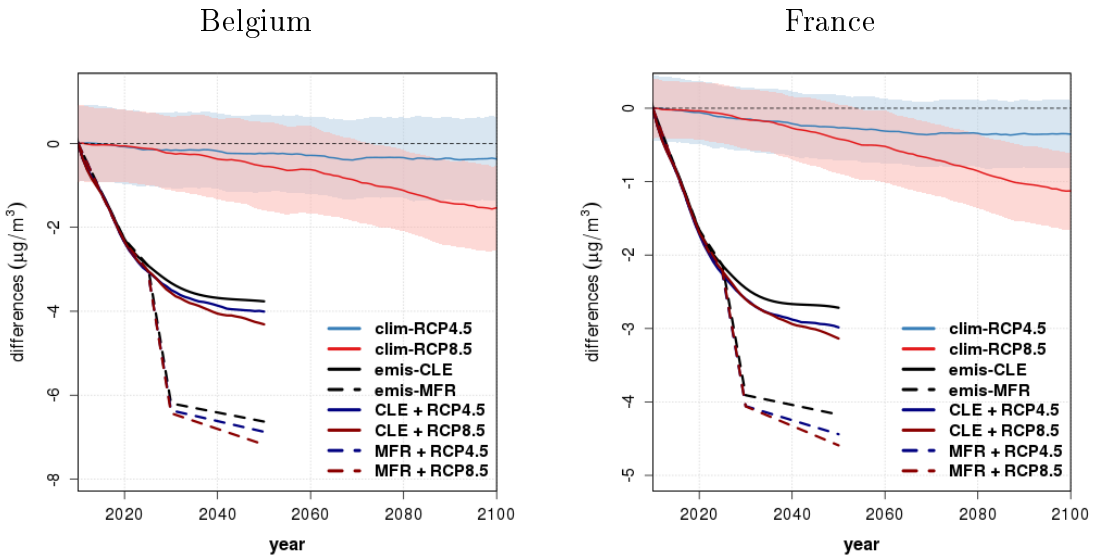


FIGURE 4.9 – *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de $PM_{2.5}$ pour la Belgique et la France. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu)*

comportement a été mis en évidence par (*Colette et al.*, 2012). Cette hausse va être accentuée par la pénalité climatique, évaluée pour un futur sans atténuation du changement climatique sur la période 2041-2060, de l'ordre de 220 ± 100 ppb.d). Comme pour la sous-section 4.4.1, le comportement des autres pays qui composent le Bénélux est similaire à celui de la Belgique.

En France, Figure 4.10, de larges réductions d'émissions sont constatées pour plusieurs secteurs avec une baisse totale de 60% pour les NO_x et 35% pour les COV. Les secteurs en forte diminution sont le résidentiel (50 et 80% pour les NO_x et les COV), les transports de surface (80 et 70% pour les NO_x et les COV) et celui de la production d'énergie (40 et 30% pour les NO_x et les COV). Les rares secteurs en hausse sont le brûlage agricole à l'air libre (environ 1%), l'industrie et les solvants pour les COV uniquement. L'ensemble de ces baisses d'émissions va conduire à une baisse des concentrations de SOMO35 d'environ 500 ppb.d, l'influence de chaque précurseurs semble égale. Le transports de surface est la encore un secteur clef, qui contribue au 2/3 à la baisse des niveaux de SOMO35. La pénalité climatique est importante, environ 300 ± 100 ppb.d. Cette hausse, de l'ordre de grandeur de la baisse

liée au secteur transport, va masquer ses effets et réduire la baisse totale observée.

En Allemagne, Figure A.6, une baisse importante des émissions est observée pour l'ensemble des secteurs à l'exception des déchets et du brulâge à l'air libre agricole (hausse d'environ 2%). On s'attend donc à observer une baisse des niveaux de SOMO35 par rapport à ceux de 2050. Cette baisse d'environ 200 ppb.d environ est principalement liée aux baisses de COV (les NO_x induisent eux une légère hausse du SOMO35). Les transports de surface constituent le secteur qui évolue le plus entre 2010 et 2050 et le principal contributeur de la baisse de SOMO35 observée. Pourtant cette baisse est plus faible que pour la France par exemple. Si elle est mise en perspective avec la pénalité climatique, on remarque que cette baisse sera compensée (pénalité climatique entre 50 et 300 ppb.d) et ce malgré l'importante dispersion des valeurs de l'ensemble.

En Italie, Figure A.7, de larges réductions des émissions sont une nouvelle fois observées avec le secteur des transports qui est fortement réduit. Ces réduction d'émissions conduisent à une décroissance du SOMO35 de l'ordre de 800 ppb.d. Cette baisse sera partiellement compensée à l'horizon 2050 avec une pénalité climatique de l'ordre de 350 ppb.d. On souligne par ailleurs que si l'on agissait uniquement sur les émissions du transport routier, la pénalité climatique compenserait presque intégralement les améliorations attendues.

4.4.2.2 $PM_{2.5}$

En Belgique, Figure 4.11, de larges réductions d'émissions entre 2010 et 2050 sont constatées. La plus importante baisse concerne les NO_x et la plus faible l'ammoniac. Les secteurs les plus influents sont le transport qui réduit massivement ces émissions de polluants ($\approx$ 80% de baisse), le secteur de production d'énergie et le secteur résidentiel dont les émissions diminuent d'environ 20%. Seuls l'industrie, les solvants et les déchets présentent une hausse des émissions de quelques pourcents. Ces baisses des émissions conduisent à une réduction totale des concentrations de particules fines de 3,8 $\mu g.m^{-3}$ comme l'illustre la Figure 4.11. L'importance des précurseurs SO_2, NO_x et des $PPM_{2.5}$ est mise en évidence. Cette diminution des concentrations apparaît principalement liée aux secteurs du transport et de la production d'énergie qui dominent les réductions de concentrations avec respectivement -1.5 $\mu g.m^{-3}$ et -1.2 $\mu g.m^{-3}$. Le bénéfice climatique, $\approx 1 \pm 0.5$ $\mu g.m^{-3}$ va s'ajouter aux réductions et les amplifier.

En France, le même type de résultats est observé. De fortes réductions des émissions sont constatées et vont conduire à des baisses des concentrations de $PM_{2.5}$ de l'ordre de -2.5 $\mu g.m^{-3}$. Les secteurs du transport, du résidentiel et de la production d'énergie sont là encore les secteurs majorants avec des émissions jusqu'à 80% plus faibles en 2050 qu'en 2010. Le bénéfice climatique, évaluée à 0.5 ± 0.2 $\mu g.m^{-3}$ est du même ordre de grandeur que l'amélioration attendue en ce qui concerne les secteurs résidentiels et production d'énergie et environ égal à la moitié des réductions du secteur des transports qui est un des principaux responsables de la pollution particulaire en France. Ce bénéfice climatique est moins incertain en France qu'en Belgique avec une dispersion plus faible des modèles EuroCordex utilisés dans le proxyMétéo.

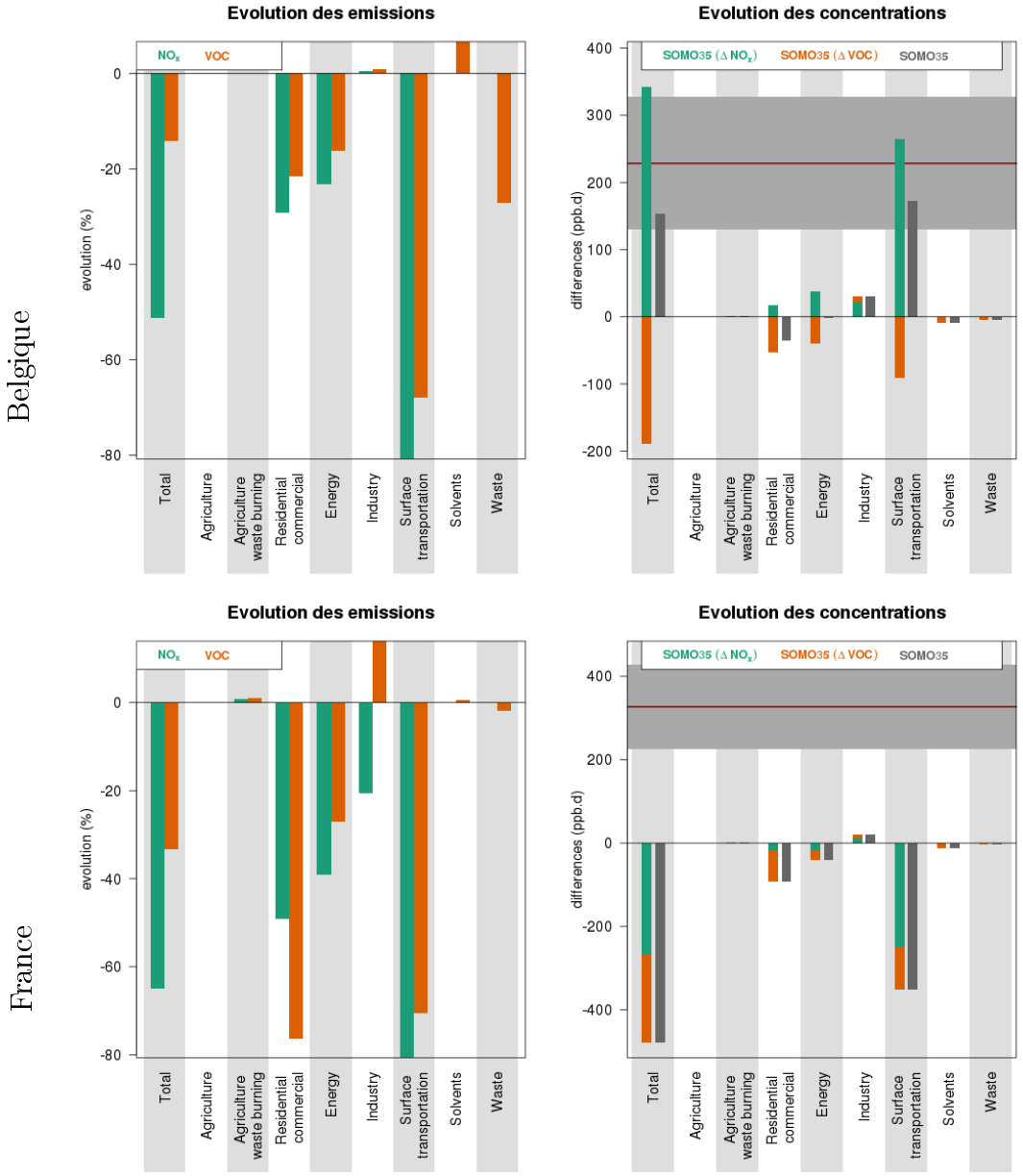


FIGURE 4.10 – *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour la Belgique et la France. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.*

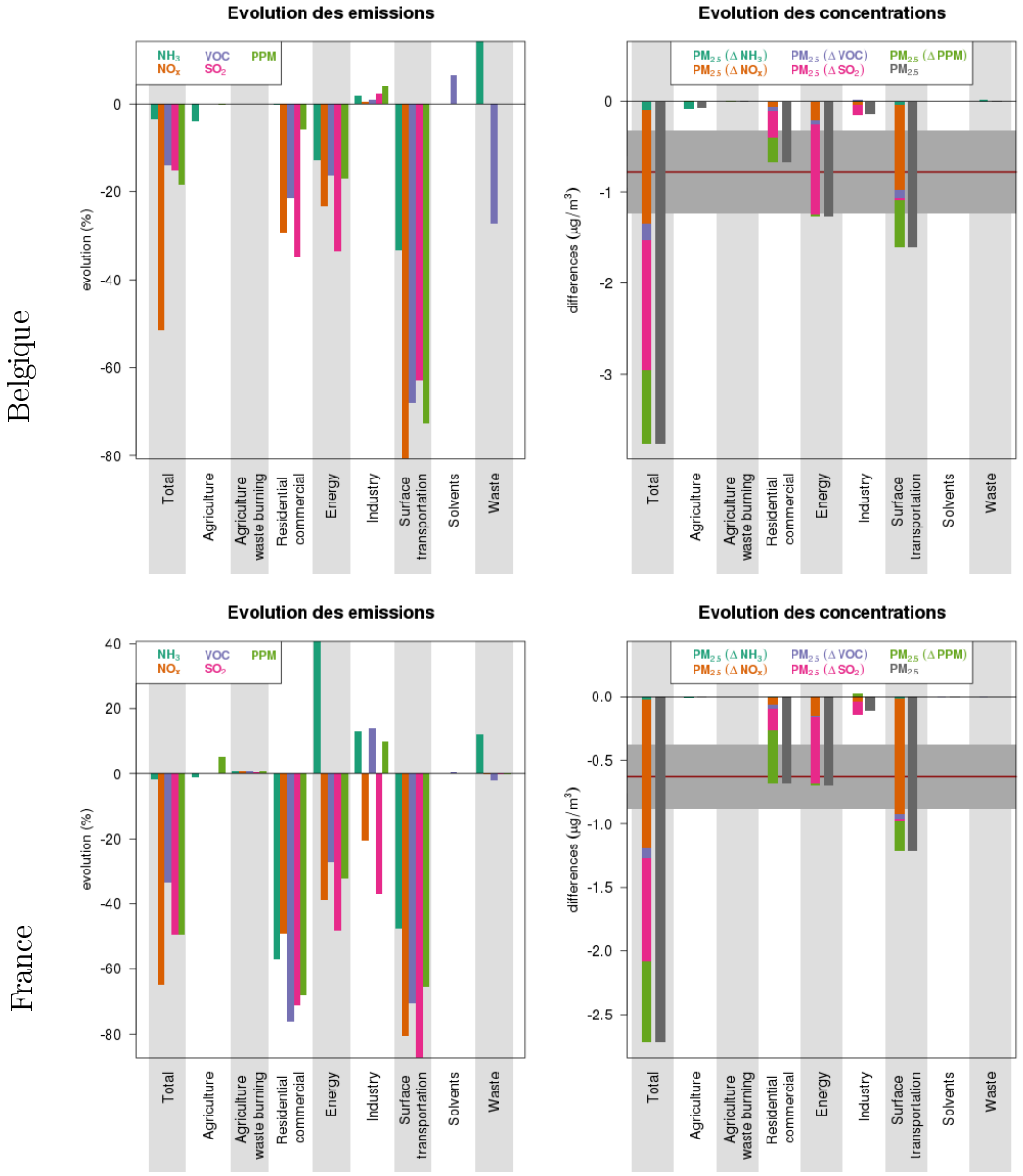


FIGURE 4.11 – *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de particules fines liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour la Belgique et la France. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.*

Ces conclusions sont applicables aux Pays-Bas (Figure A.9), à l'Allemagne (Figure A.6), au Luxembourg (Figure A.8), en Pologne (Figure A.10) et en Italie (Figure A.7), où l'on retrouve des réductions d'émissions importantes et une baisse des concentrations principalement liées aux trois secteurs suivants : transport, résidentiel et production d'énergie. Pour chacun de ces pays, un bénéfice climatique est identifié mais son amplitude change selon le pays considéré. Il vient renforcer les réductions des concentrations de particules fines observées en Europe.

Seule la Grande-Bretagne, Figure A.10, se démarque. Comme l'ensemble des pays étudiés, elle présente une baisse des émissions totales et notamment des émissions de NO_x et de VOC. Ces baisses d'émissions vont conduire à une baisse des concentrations de $PM_{2.5}$ de l'ordre de 1,5 $\mu g.m^{-3}$ principalement attribuée aux baisses des NO_x et des VOC. La baisse dans le secteur énergie est estimée à 0.8 $\mu g.m^{-3}$ et celle du secteur des transports à 0.5 $\mu g.m^{-3}$. Cependant le changement climatique, qui viendra renforcer cette tendance, est faible 0.2 ± 0.2 $\mu g.m^{-3}$ et incertain puisqu'une partie de l'enveloppe de l'incertitude est proche de 0.

4.4.3 Synthèse et mise en perspective des résultats avec la littérature

Les parties 4.4.1 et 4.4.2 ont permis d'évaluer conjointement l'impact des réductions d'émissions entre 2050 et 2010 (CLE et MFR) et l'impact du changement climatique (RCP4.5 et RCP8.5) puis de les comparer pour quelques pays.

On a mis en évidence une pénalité climatique sur les niveaux de SOMO35, déjà largement documentée *Colette et al.* (2013, 2015); *Meleux et al.* (2007); *Huszar et al.* (2011); *Katragkou et al.* (2011); *Jiménez-Guerrero et al.* (2012); *Manders et al.* (2012); *Juda-Rezler et al.* (2012); *Langner et al.* (2012a,b); *Varotsos et al.* (2013); *Lacressonnière et al.* (2014); *Lacressonnière et al.* (2016); *Watson et al.* (2016); *Fortems-Cheiney et al.* (2017) et un bénéfice climatique pour les particules fines *Huszar et al.* (2011); *Juda-Rezler et al.* (2012); *Colette et al.* (2013); *Lecœur et al.* (2014). Le bénéfice est plus incertain lorsque l'on considère le RCP4.5 ce qui peut expliquer les différences de signes d'impact selon les modèles identifiés par *Manders et al.* (2012); *Lacressonnière et al.* (2016); *Lacressonnière et al.* (2017).

On a montré que le bénéfice climatique va renforcer les baisses de concentrations imputables aux réductions d'émissions comme l'a déjà souligné *Colette et al.* (2013). La pénalité climatique sur les concentrations du SOMO35 dominera le signal, si les réductions d'émissions continuent de stagner, en 2055, 2080, et à la toute fin du siècle pour respectivement l'Allemagne, la France et l'Italie en considérant un futur sans atténuation du changement climatique et la législation en cours pour les émissions. Ces résultats semblent en phase avec le récent article de *Fortems-Cheiney et al.* (2017). Toutefois, il faut être prudent avec l'amplitude du signal, estimée par un modèle statistique et non un modèle de chimie transport.

La Figure 4.12 résume les résultats présentés dans la partie 4.4.2. Elle présente une mise en perspective de l'impact du climat (2041-2060, RCP8.5) et des réductions d'émissions (totale) entre 2050 et 2010 pour le scénario CLE et le scénario MFR.

Pour les particules fines, on a montré que l'impact du changement climatique est plus faible que celui des réductions d'émissions. Ces impacts étant de même signe, ils vont s'ajou-

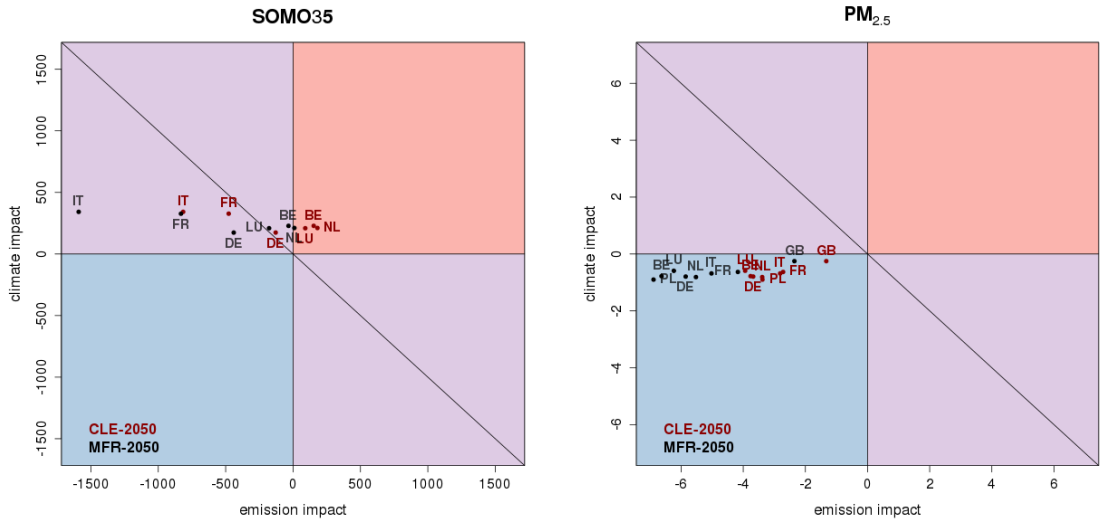


FIGURE 4.12 – *Mise en perspective de l'impact du climat (2041-2060) et des réductions d'émissions entre 2050 et 2010 pour deux scénarii (CLE et MFR) sur les concentrations de SOMO35 et de particules fines pour l'ensemble des pays sélectionnés.*

ter. La Figure 4.12 montre que lorsque l'on considère des réductions d'émissions ambitieuses (MFR), les baisses sont plus larges. Pour les pays composant le Benelux, le scénario CLE conduit à une hausse des concentrations de SOMO35 (régime chimique). La pénalité climatique va donc renforcer le signal et dégrader la qualité de l'air. Pour les autres pays (France, Allemagne et Italie), le scénario CLE conduit à une baisse des concentrations de SOMO35 qui va venir diminuer les effets bénéfiques des politiques de réductions des émissions de polluants. En considérant le scénario MFR, Figure 4.12, on remarque que l'ensemble des pays présente une baisse des concentrations liées aux réductions d'émissions, même si elle est parfois faible (Belgique, Pays-Bas).

4.5 Conclusions et perspectives

Le but de ce chapitre était d'**évaluer l'impact relatif des réductions d'émissions et du changement climatique sur les concentrations futures de polluants en Europe**. Pour répondre à cette problématique une méthode statistique a été développée. Elle repose sur le modèle linéaire d'impact du climat sur la qualité de l'air introduit dans le chapitre 2 et appliqué à l'ensemble de projection climatique EuroCordex, couplé à un modèle de réponse aux changements d'émissions reconstruit à partir des matrices source-récepteur EMEP. Cette approche permet d'identifier les régions et les périodes où la pénalité climatique risque de compenser le bénéfice attendu des politiques de gestion de la qualité de l'air.

Nous avons ainsi mis en évidence que **le bénéfice climatique pour les particules fines, $PM_{2.5}$, était du même ordre de grandeur que les baisses réalisées dans le**

secteur le plus influent de chaque pays étudié (transport pour la France et énergie pour la Grande-Bretagne et la Pologne par exemple). Ces baisses d'émissions vont donc être renforcées par le changement climatique. Au contraire, **pour le SOMO35, la pénalité climatique va contrebalancer les efforts de réductions d'émissions** réalisés entre 2010 et 2050 pour les pays étudiés où les renforcer pour les pays du Bénélux. On peut ainsi estimer que d'ici 2055, 2080 et 2100, le changement climatique prendrait le pas sur les efforts achevés en termes de réductions d'émissions en Allemagne, France et Italie (scénario CLE).

La principale force de la méthodologie présentée réside dans sa flexibilité, de nombreuses combinaisons d'émissions et de météorologie peuvent être réalisées pour un coût en calcul minimum. Il est ainsi possible de couvrir l'ensemble du 21^{ieme} siècle et non plus des instantanés pour des horizons temporels fixés. Contrairement à toutes les études publiées, l'incertitude du facteur climatique est beaucoup mieux évaluée car nous avons recours à l'ensemble de modèles régionaux de climat EuroCordex alors qu'une seule source de projection est en général utilisée, ce qui ne correspond pas aux bonnes pratiques recommandées en termes d'évaluation d'impact du climat. Enfin, on peut décomposer l'évolution des émissions par secteur d'activité alors que les modèles de chimie transport ne donnent qu'une réponse agrégée.

Cependant, cette méthode repose sur deux hypothèses fortes : (i) les concentrations de polluants sont linéairement liées aux émissions, (ii) les concentrations sont considérées comme étant la simple addition de l'impact des émissions et de la météorologie (pas de prise en compte des conditions aux limites ou d'autres termes non-linéaires). Pour mieux documenter l'impact de cette hypothèse, on pourrait utiliser des simulations de CTM réalisée avec le modèle EMEP (comme pour les SRM) et appliquer une méthode de décomposition comme dans le projet EuroDelta-Trends. En réalisant des différences entre des combinaisons d'émissions, météorologie et conditions aux limites différentes, on serait en mesure d'isoler l'impact des conditions aux limites et des non linéarités dans la chimie. A ces hypothèses fortes, s'ajoute aussi la qualité de l'évaluation de l'impact du climat (c'est à dire la qualité du modèle statistique employé, qui pourrait par exemple surestimer la sensibilité à l'évolution des températures). De plus, on a pu évaluer une erreur systématique : le modèle CHIMERE produit plus de particules fines (1.8 ± 2 μg.m^{-3}) et moins de SOMO35 (500 ± 650 ppb.d) que le modèle EMEP. Sachant que le proxyEmission est construit sur des réalisations du modèle EMEP et le proxyMétéo sur des réalisations du modèle CHIMERE, nos estimations sont aussi conditionnées par ces résultats. Enfin, le fait que les modèles statistiques représentant l'impact du changement climatique sont construits sur des émissions de 2010 et non des émissions futures renvoient un signal majorant (forte influence du climat). En effet, *Lacressonnière et al.* (2017) illustre cette affirmation en étudiant la différence entre la combinaison "émissions futures + climat futur" et "émissions futures + climat actuel".

Finalement, ce chapitre illustre aussi l'intérêt d'employer un autre type de modèle statistique pour mieux représenter l'impact du changement climatique sur les concentrations futures et pouvoir étudier un plus grand nombre de pays. L'amélioration du maillage de modèles statistiques passe par un retour aux données journalières et aux GAM. Cependant, pour avoir des performances optimales, on pourrait construire un modèle par mois sur les 30 ans du présent afin d'estimer au mieux les concentrations. Cette solution, entrevue dans le chapitre 2, peut nous permettre de considérer un plus grand nombre de pays. Il serait aussi

intéressant de pouvoir utiliser des matrices sources recepteurs construites sur les maxima d'ozone journaliers qui nous permettrait dès lors d'employer la méthode développée dans le chapitre 2. Enfin, utiliser des SRM spatialisées (autre produit mis à disposition par EMEP) permettraient d'avoir une meilleure idée de la variabilité des concentrations au sein d'un pays.

5 | Conclusion générale

Conclusions

Cette thèse avait pour objectif **de mieux hiéarchiser les déterminants de la composition atmosphérique future en Europe afin d'évaluer l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air et de le mettre en perspective avec l'impact des émissions**. La modélisation de ces évènements futurs est incertaine. Afin de quantifier l'incertitude et de la réduire, les recherches actuelles s'appuient sur des techniques de modélisation d'ensemble qui combine statistiquement les résultats de plusieurs jeux de simulation. Cependant, cette approche a un coût à la fois en temps de calcul et en stockage des résultats. Afin de contourner ce problème, nous avons développé **une méthode statistique alternative à la mise en place d'ensemble** pour **caractériser l'impact des émissions et de la météorologie sur la qualité de l'air dans un contexte de changement climatique**. L'étude s'articule autour de trois questions, chacune correspondant à un chapitre, auxquelles nous avons essayé d'apporter des réponses.

Quelles sont les méthodes pour évaluer les incertitudes relatives à la quantification de l'impact du changement climatique sur la pollution atmosphérique régionale ? Pour répondre à cette problématique, une nouvelle méthode statistique a été élaborée pour l'ozone et les particules fines. En s'appuyant sur un ensemble d'apprentissage constitué de simulations régionale de climat et qualité de l'air, des modèles statistiques expliquant les variations des concentrations d'ozone et de particules fines en fonction des principales variables météorologiques ont été construits pour quelques régions européennes. Une fois validés, ils sont appliqués à l'ensemble de projections climatiques régionales EURO-CORDEX et permettent de construire un proxy d'ensemble de projections. A partir de l'évolution des variables météorologiques clefs, conclure sur l'impact du changement climatique sur la pollution atmosphérique est alors possible. De plus, la méthode permet de sélectionner un sous-ensemble de modèle de climat à évaluer en priorité. L'application de la méthode a permis la mise en évidence d'une pénalité climatique pour l'ozone et d'identifier un bénéfice climatique pour les $PM_{2.5}$. Cependant lorsque la méthode a été testée sur le récent épisode de pollution en France, les limites de cette approche sont clairement apparues. En effet, la méthode est adaptée pour décrire des tendances moyennes et non représenter des extrêmes pour lesquels elle devrait être adaptée.

Sachant qu'en pratique, la plupart des jeux de simulations nécessaires à ces études d'impact n'existent pas au complet, nous avons cherché à évaluer **l'erreur induite par l'utilisation d'une météorologie dégradée en amont d'un modèle de chimie transport.** Pour cela, nous nous sommes concentrés sur la disponibilité de la résolution verticale des champs météorologiques modélisés. Des simulations de sensibilité ont été réalisées dans un

premier temps sur deux périodes d'un mois puis sur la décennie présente (2001-2010) et sur une décennie future (2071-2080). Ces simulations ont permis la mise en évidence :

- en dessous de 10 niveaux verticaux l'erreur entre version fine et dégradée est importante ;
- l'erreur générée a deux origines : (i) des variables non sauvegardées mais nécessaires pour un diagnostic précis du mélange vertical dans la couche limite, (ii) la structure verticale des champs météorologiques mal représentée ;
- la simple méthode de débiaisage envisagée n'a pas permis de compenser la dégradation des données liée au manque d'information sur la verticale.

Finalement cette double étude de sensibilité permet donc de conclure que les jeux de données de modélisation météorologique disponibles actuellement (sur la base des projections EuroCordex) ne permettent pas de réaliser des études d'impact du climat sur la qualité de l'air de manière fiable. L'erreur générée par cette dégradation de l'information sur la verticale va créer une erreur supérieure à la variabilité de la météorologie liée au changement climatique. Afin de réaliser correctement ces études d'impact, il est donc recommandé soit de conserver l'intégralité des champs météorologiques, soit des jeux de données partiels mais avec des informations importantes à utiliser comme : (i) des informations sur les jets de vent, ou les inversions importantes de température, (ii) des variables supplémentaires comme l'altitude et l'épaisseur des nuages.

Le début de la thèse s'etait focalisé uniquement sur l'impact de la météorologie sur la pollution future. Pourtant, des modifications importantes des émissions anthropiques sont aussi attendues dans le futur. Ces émissions étant la source de la pollution, il est important de combiner changement climatique et réduction attendue des émissions. On a donc cherché ici à répondre à la question : **Peut-on quantifier l'impact relatif des émissions et du changement climatique sur les concentrations de polluants ?** Pour répondre à cette problématique, on s'est appuyé sur la méthodologie statistique développée en début de thèse et sur les matrices sources récepteurs d'EMEP.

Les résultats ont permis de mettre en évidence que **le bénéfice climatique pour les particules fines, $PM_{2.5}$, était du même ordre de grandeur que les baisses réalisées dans le secteur le plus influent de chaque pays étudié**. Ces baisses d'émissions vont donc être renforcées par le changement climatique. Au contraire, **pour le SOMO35, la pénalité climatique va contrebalancer les efforts de réductions d'émissions** réalisés entre 2010 et 2050 si l'on considère un futur sans atténuation du changement climatique (RCP8.5). On a aussi évalué l'émergence du signal climatique pour plusieurs pays. La flexibilité de la méthode a permis d'étudier deux futurs climatiques (RCP8.5 et RCP4.5) et deux trajectoires de réductions d'émissions (CLE et MFR).

Perspectives

Les méthodes mises en œuvre dans cette thèse peuvent être améliorées de bien des façons. Ici, nous ne donnerons que quelques pistes. Nous détaillerons aussi quelques opportunités de recherche mises en évidence par ce travail.

Tout d'abord, la méthode développée pour évaluer l'impact du changement climatique sur la qualité de l'air (qu'elle soit déclinée avec des GAM ou avec un maillage de modèle linéaire) traduit l'influence locale des variables météorologiques sur la pollution atmosphérique. Pour améliorer la méthode on pourrait prendre en compte l'influence locale et synoptique des variables météorologiques en s'appuyant, par exemple, sur d'autres types de régression. Notre modèle statistique est par ailleurs construit à partir d'un modèle de chimie transport, on pourrait donc imaginer un modèle construit à partir de plusieurs modèles de chimie transport afin de mieux couvrir l'ensemble des incertitudes.

L'amélioration de la méthode qui confronte l'influence des émissions et l'influence du changement climatique passe par une meilleure qualification du proxyMétéo. On pourrait implémenter les suggestions ci-dessus pour améliorer l'estimation de l'impact du changement climatique ou envisager une prédiction journalière avec un GAM mensuel pour ne plus se limiter au SOMO35. Pour enrichir l'estimation des réductions d'émissions, employer les sources matrices récepteurs disponibles sur la grille d'EMEP et non plus aggrégées par pays permettrait d'avoir une réponse plus fine à l'échelle d'un pays.

L'occupation des sols est un paramètre important du système climatique qui peut modifier les flux de chaleur, l'évapotranspiration (*Foley et al.*, 2005) et donc le climat. Dans les trajectoires sociaux économiques (SSP), l'évolution de l'occupation des sols est estimée (*Riahi et al.*, 2017). Cependant le changement climatique va lui aussi contraindre les évolutions de la végétation, de la désertification et donc influencer des processus de dépôt sec (*Verbeke et al.*, 2015) et de resuspension de particules. Il serait donc intéressant de quantifier l'influence du changement de l'occupation des surfaces sur la qualité de l'air (poussières désertiques et ozone) dans un contexte de changement climatique en prenant en compte les rétro-actions possibles (*Sadiq et al.*, 2017).

Au cours de cette thèse, on a brièvement évalué l'impact du changement climatique par type de particules fines (sulfate, nitrate, poussière tellurique...) afin d'expliquer les résultats obtenus pour les particules fines dans leur ensemble. On a mis en évidence l'influence de la température sur les concentrations futures en particules fines à plusieurs reprises. Les mécanismes de formation des aérosols organiques secondaires implémentés dans le modèle de chimie transport utilisé, CHIMERE (*Menut et al.*, 2013), peuvent avoir largement contraint les résultats. Il serait intéressant de l'explorer en réalisant ces mêmes types de projections avec une version plus récente du CTM qui propose différentes représentation comme *Couvidat et al.* (2017) ou *Cholakian et al.* (2017).

Enfin, ajouter l'impact des conditions aux limites du domaine (météorologiques et chimiques) ainsi que l'occupation des sols dans notre méta-modèle est une piste intéressante. Cette fonctionnalité permettrait de découpler le signal (entre émissions, climat et conditions aux limites) et d'attribuer à l'un ou l'autre de ces facteurs les évolutions futures des concentrations de polluants. Ainsi on pourrait, par exemple, évaluer l'impact des concentrations d'ozone de fond en Europe pour différents futurs climatiques notamment pour faire apparaître plus explicitement le rôle du méthane qui intervient à la fois comme précurseur d'ozone et forceur radiatif.

A | Figures supplémentaires

A.1 Chapitre 2

Supplement of Atmos. Chem. Phys., 16, 2559–2574, 2016
http://www.atmos-chem-phys.net/16/2559/2016/
doi:10.5194/acp-16-2559-2016-supplement
© Author(s) 2016. CC Attribution 3.0 License.

Atmospheric Chemistry and Physics Open Access EGU

Supplement of

Using statistical models to explore ensemble uncertainty in climate impact studies: the example of air pollution in Europe

Vincent E. P. Lemaire et al.

Correspondence to: Vincent E. P. Lemaire (vincent.lemaire-etudiant@ineris.fr)

The copyright of individual parts of the supplement might differ from the CC-BY 3.0 licence.

1 Mid Europe

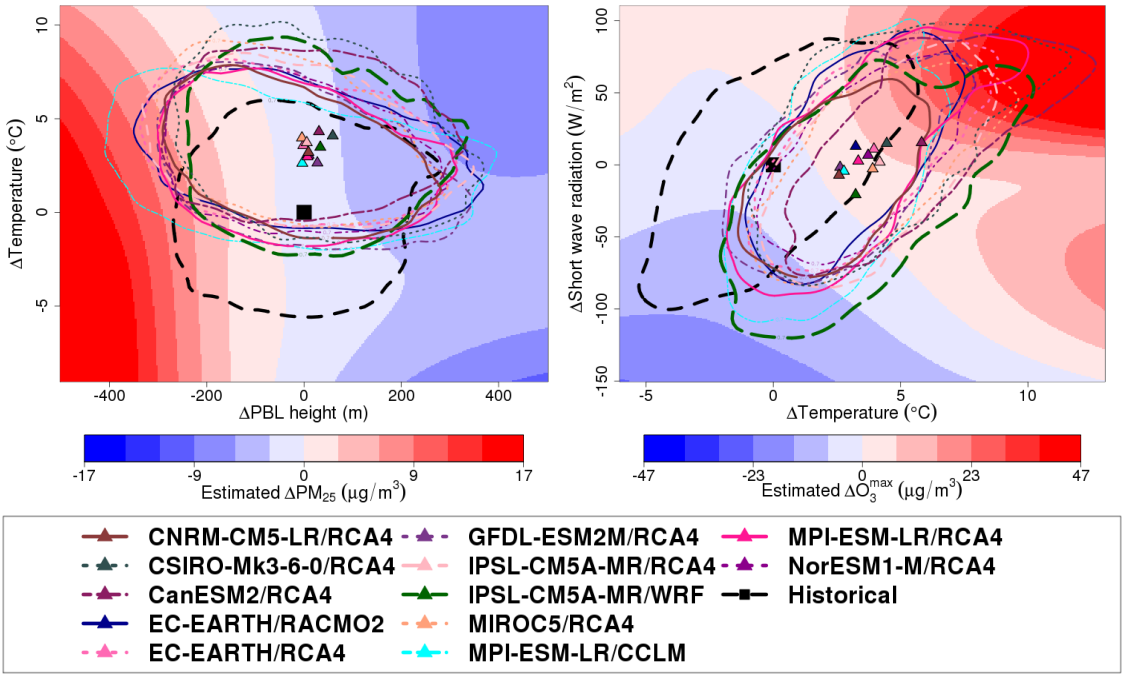


Figure S1: The left figure presents the proxy of ensemble projections for daily average de-seasonnalised PM2.5 concentrations in Mid Europe. The right figure represents the proxy for daily maximum de-seasonnalised summer ozone for Mid Europe. For both figures, the shaded background represents the evolution of pollutants estimated by the statistical models. The contours are representing the regional climate projections and the triangles their mean. The black dashed contour represents the historical – IPSL-CM5A-MR/WRF – and the square its mean.

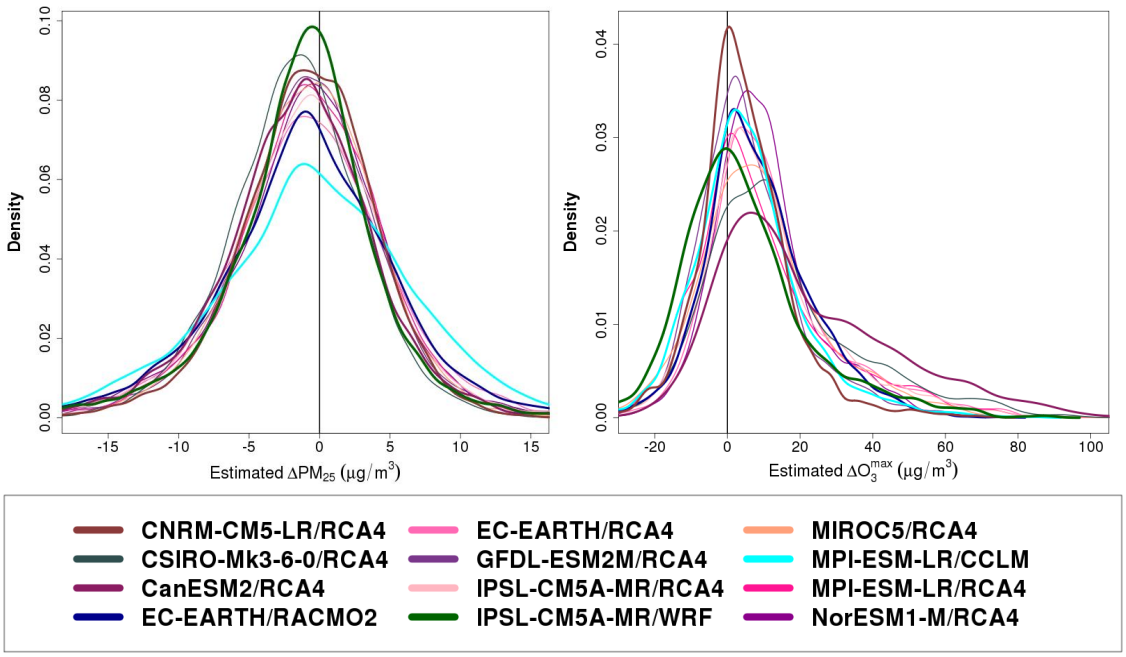


Figure S2: The left figure represents, for each regional climate model the probability density function (PDF) of the concentrations estimated with the bivariate linear model at the end of the century minus the estimated concentrations of the historical period for daily average de-seasonnalised PM2.5 concentrations in Mid Europe. The right figure presents the results for daily maximum de-seasonnalised summer ozone for Mid Europe.

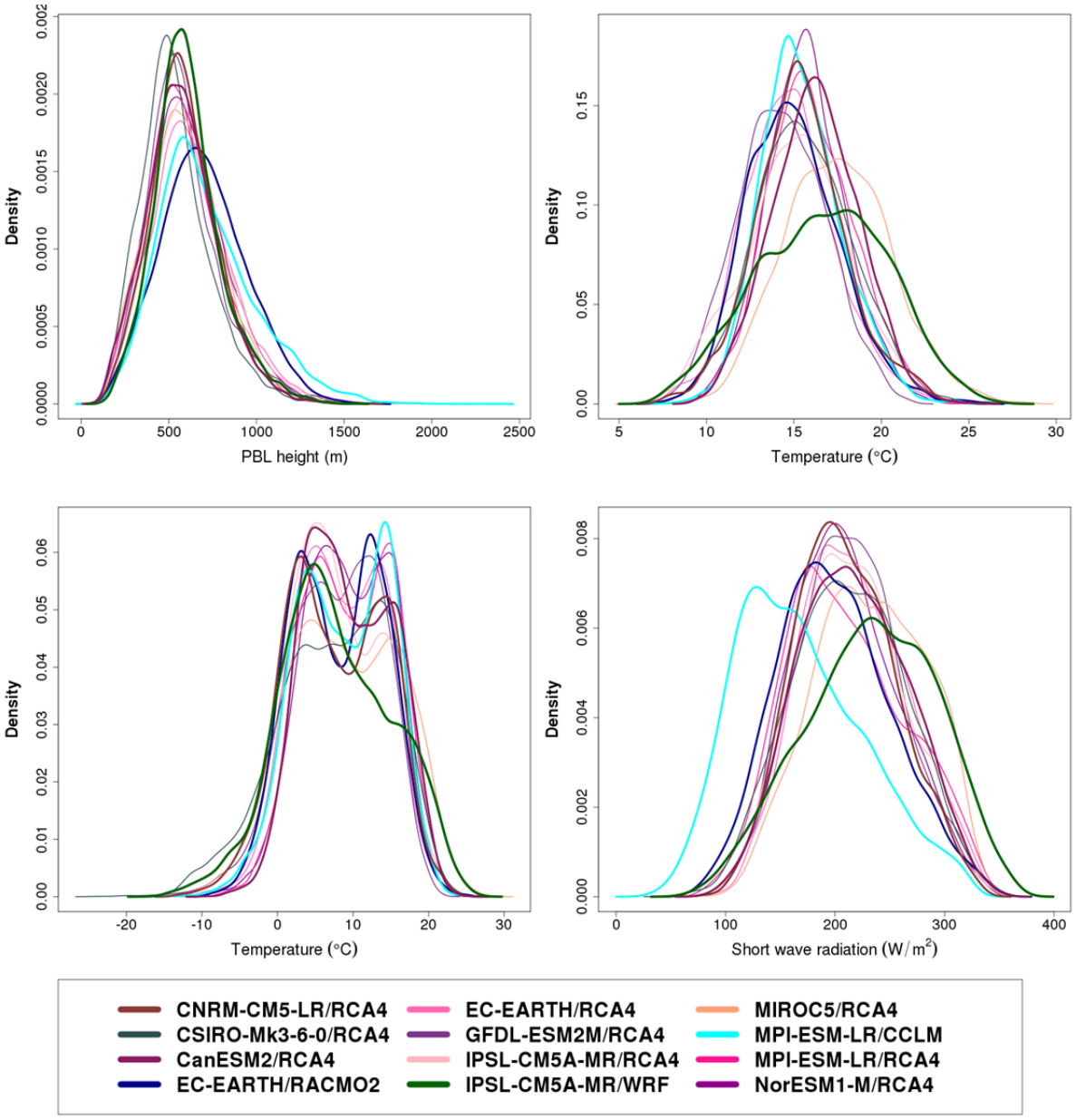


Figure S3: The first column of the panel represents the historical distribution of the meteorological variables identified by our statistical models as the two major drivers (a. PBL Height; b. near surface temperature) for PM2.5 in Mid Europe. The second column represents the historical JJA distribution of the two main drivers for summer ozone (a. near surface temperature; b. specific humidity).

2 Northen Italy

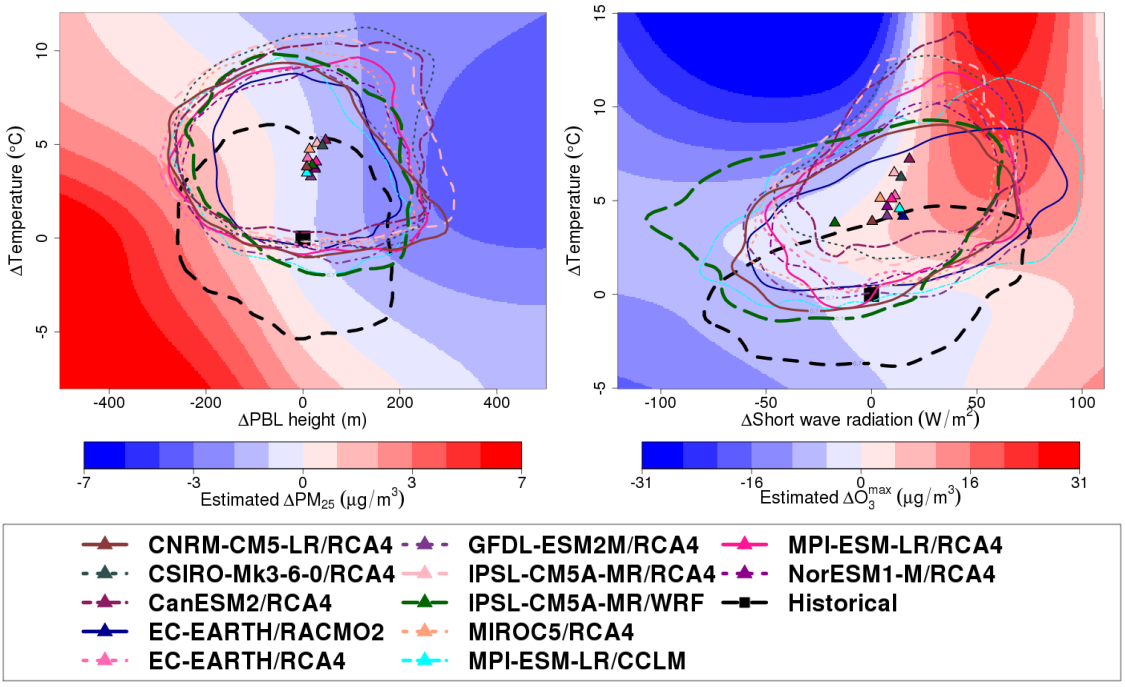


Figure S4: Same as S1 for Northern Italy.

4

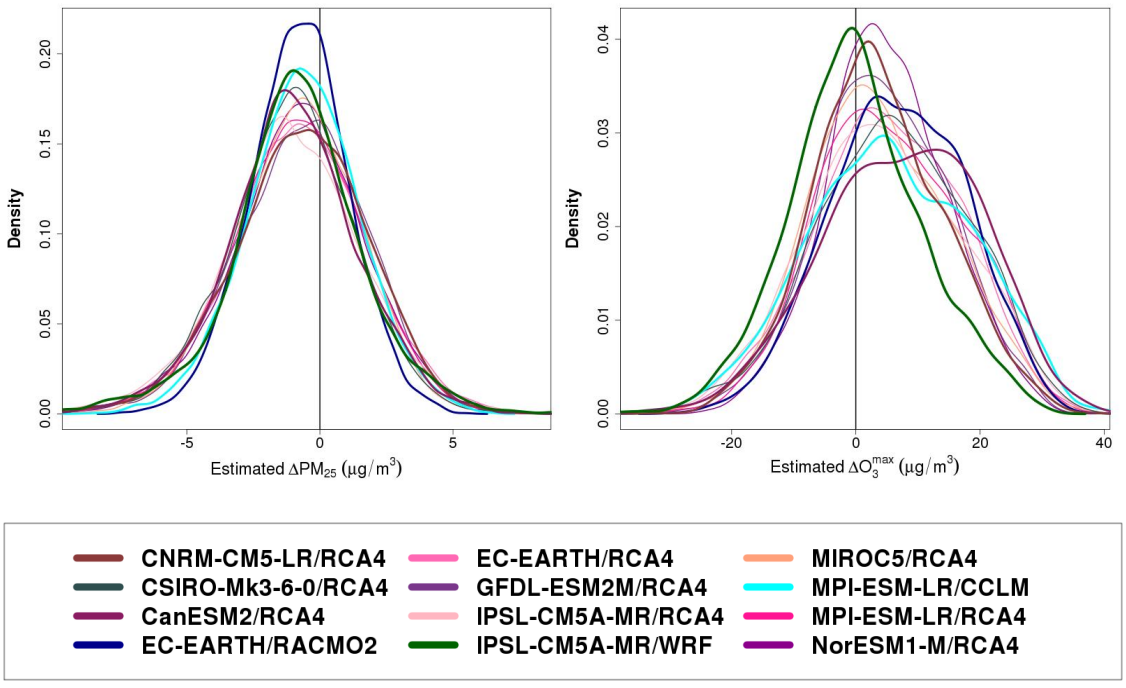
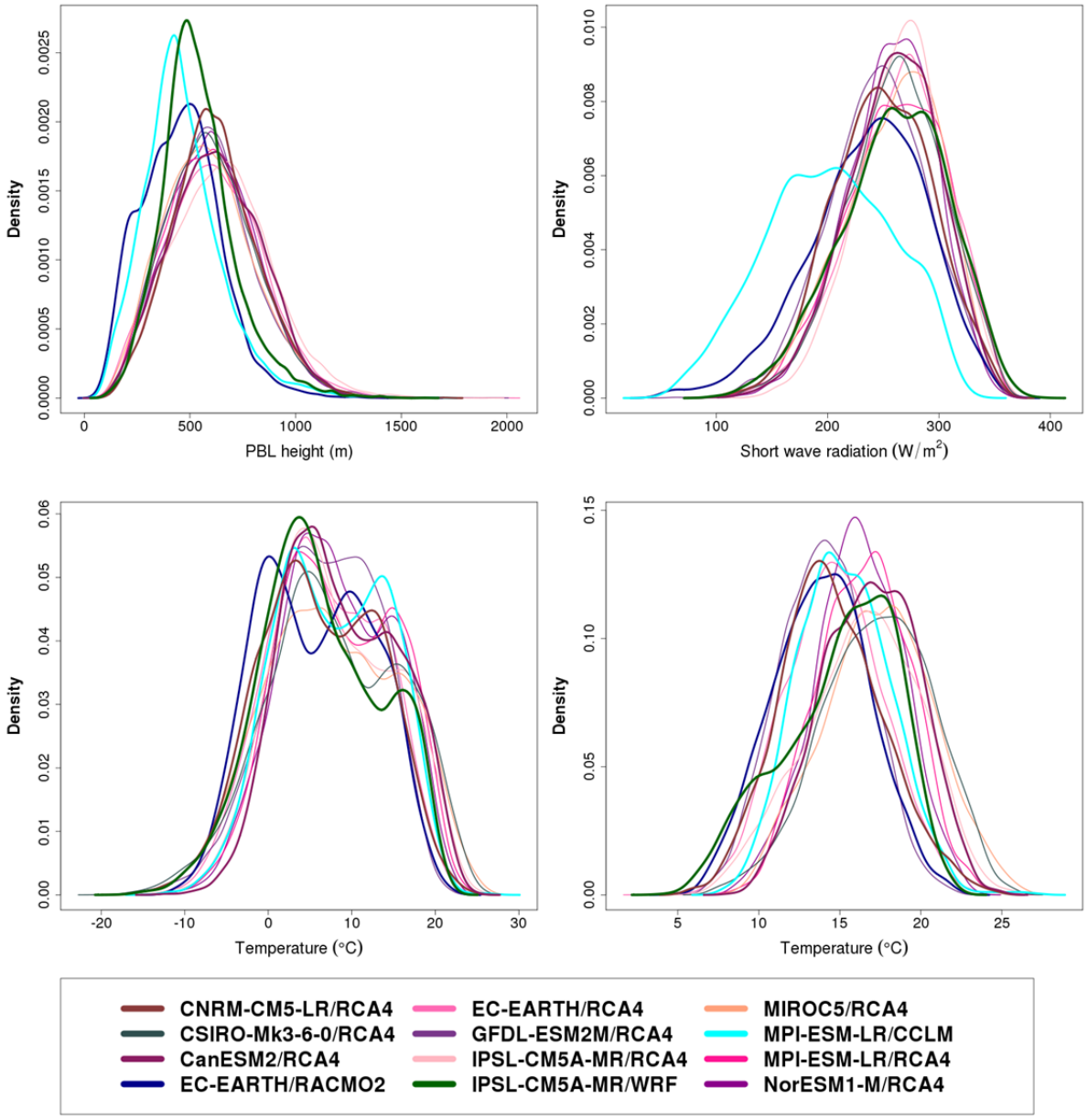


Figure S5: Same as S2 for Northern Italy.

1



2

3 **Figure S6: Same as S3 for Northern Italy.**

6

France and Iberian Peninsula

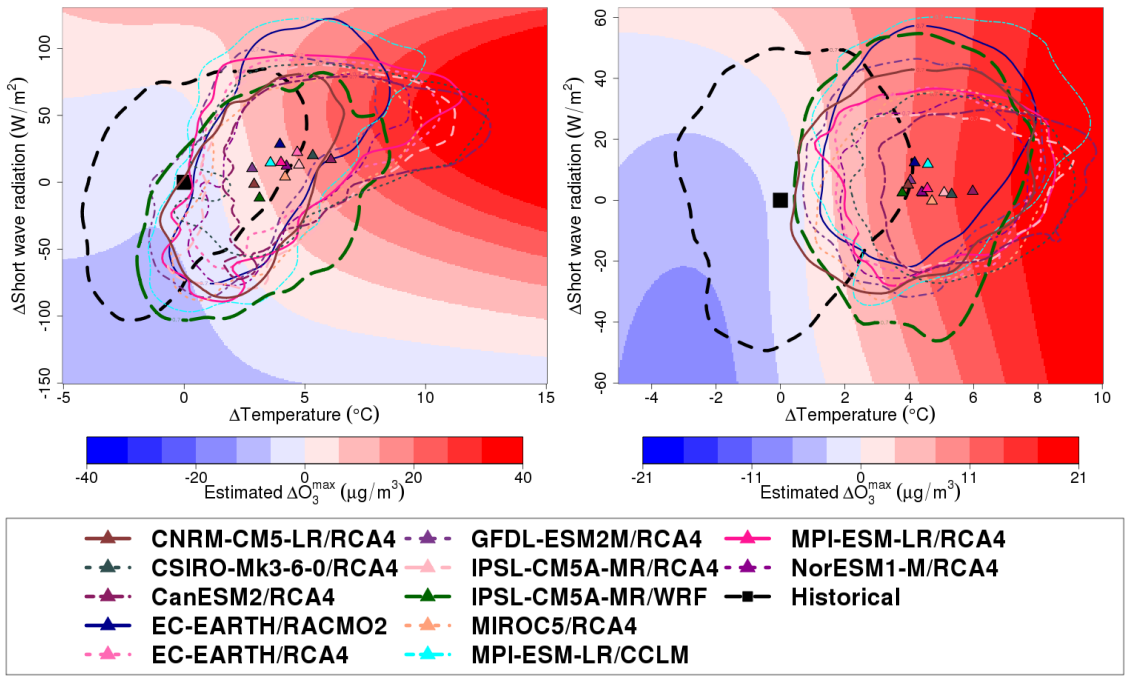


Figure S7: The left figure presents the proxy of ensemble projections for daily maximum de-seasonnalised summer ozone for France. The right figure represents the same for Iberian Peninsula. For both figures, the shaded background represents the evolution of pollutants estimated by the statistical models. The contours are representing the regional climate projections and the triangles their mean. The black dashed contour represents the historical – IPSL-CM5A-MR/WRF – and the square its mean.

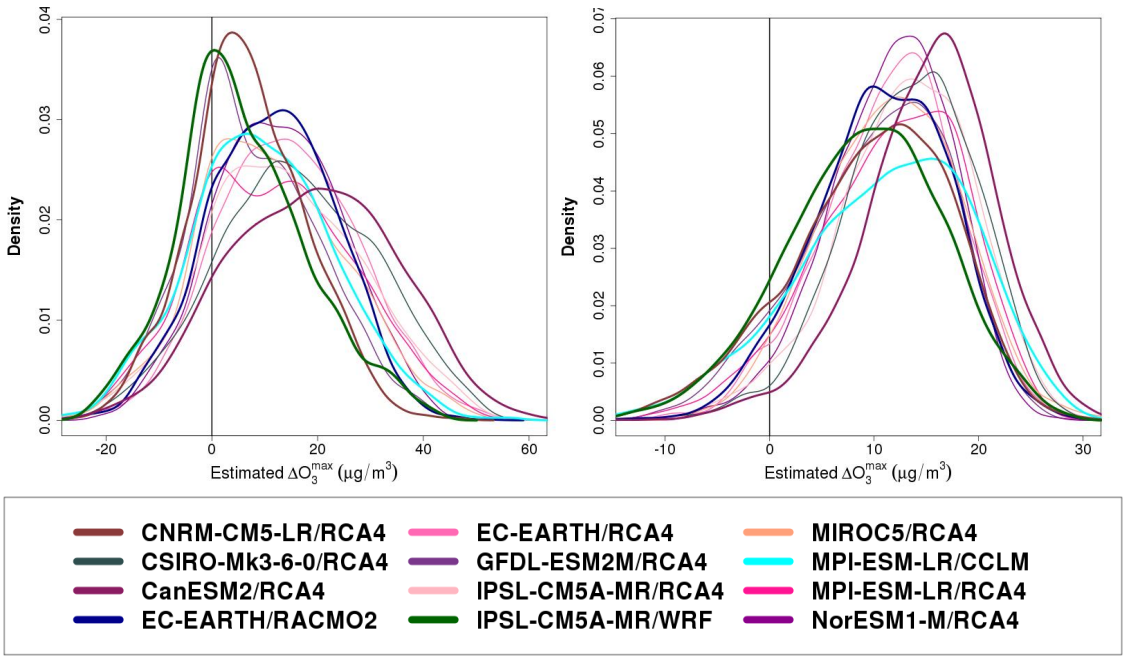


Figure S8: The left figure represents, for each regional climate model the probability density function (PDF) of the concentrations estimated with the bivariate linear model at the end of the century minus the estimated concentrations of the historical period for daily maximum de-seasonnalised summer ozone in France. The right figure presents the results same for Iberian Peninsula.

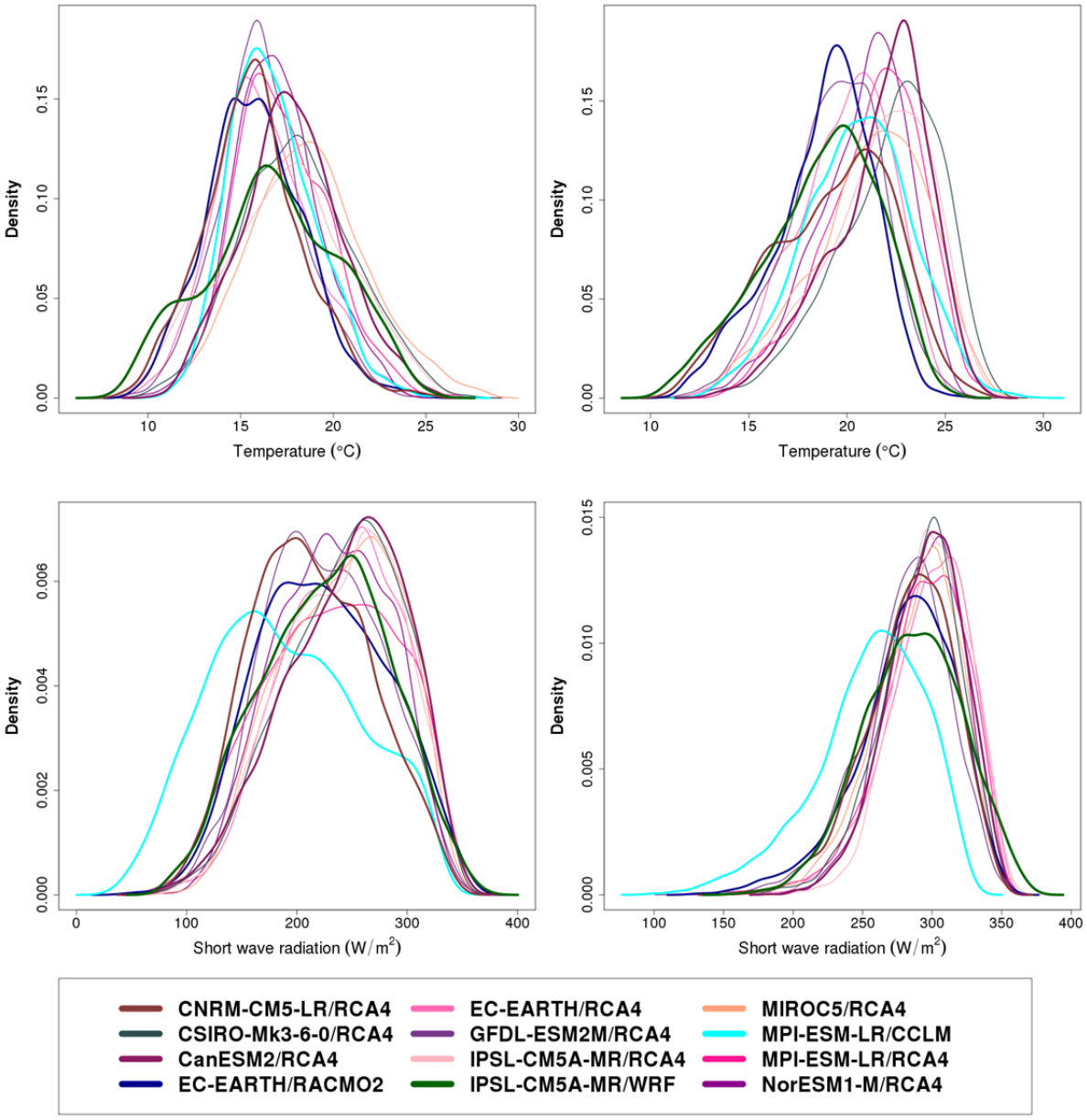


Figure S9: The first column of the panel represents the historical JJA distribution of the meteorological variables identified by our statistical models as the two major drivers (a. near surface temperature; b. incoming short wave radiation) for summer ozone in France. The second column represents the same for Iberian Peninsula (a. near surface temperature; b. incoming short wave radiation).

A.2 Chapitre 4

A.2.1 Phasage temporel des impacts

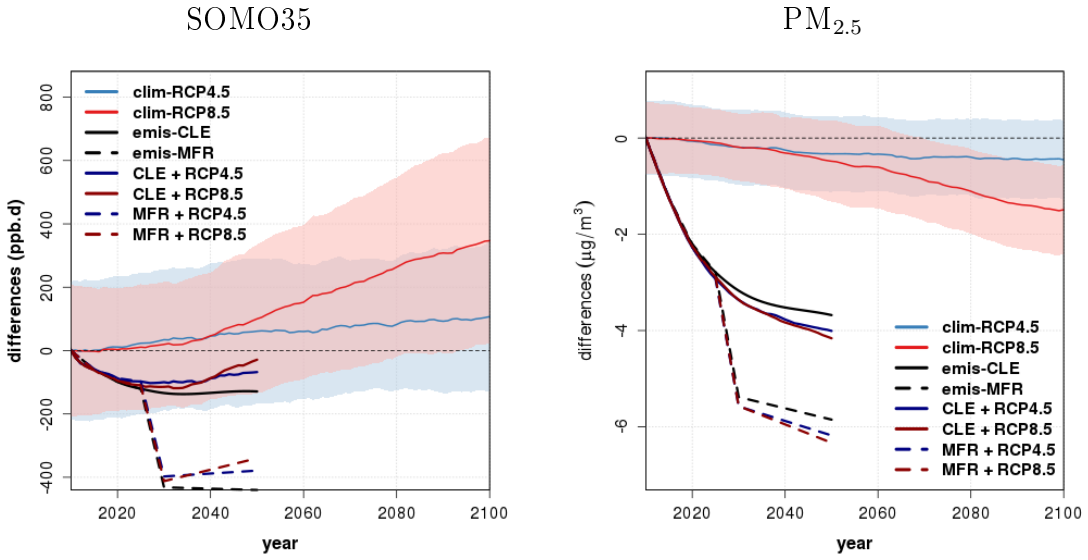


FIGURE A.1 – *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 (figure de gauche) et de $PM_{2.5}$ (figure de droite) pour l'Allemagne. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).*

A.2.2 Décomposition par secteurs d'émissions

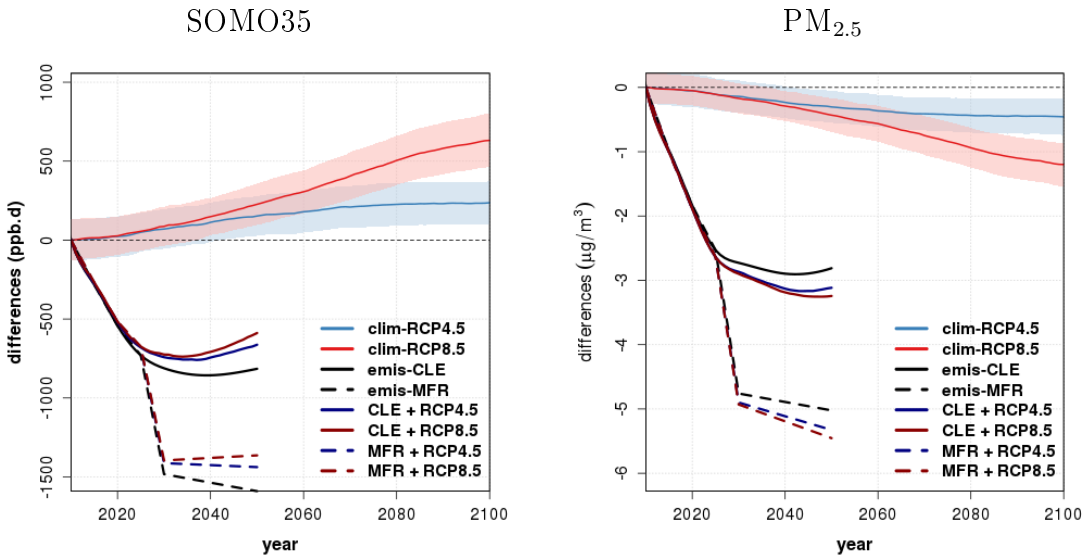


FIGURE A.2 – *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 (figure de gauche) et de $PM_{2.5}$ (figure de droite) pour l'Italie. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).*

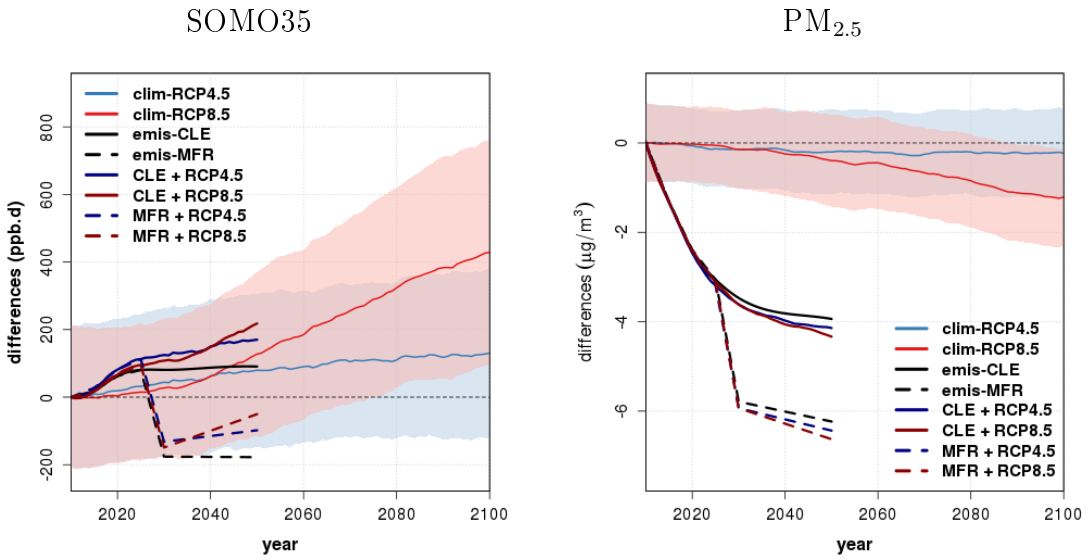


FIGURE A.3 – *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 (figure de gauche) et de $PM_{2.5}$ (figure de droite) pour le Luxembourg. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).*

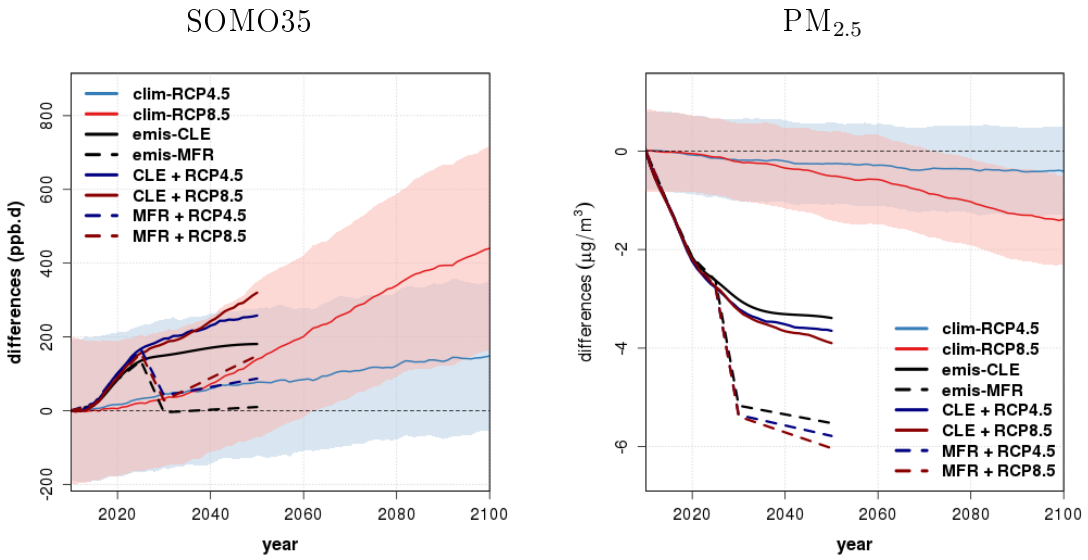


FIGURE A.4 – *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 (figure de gauche) et de $PM_{2.5}$ (figure de droite) pour les Pays-Bas. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).*

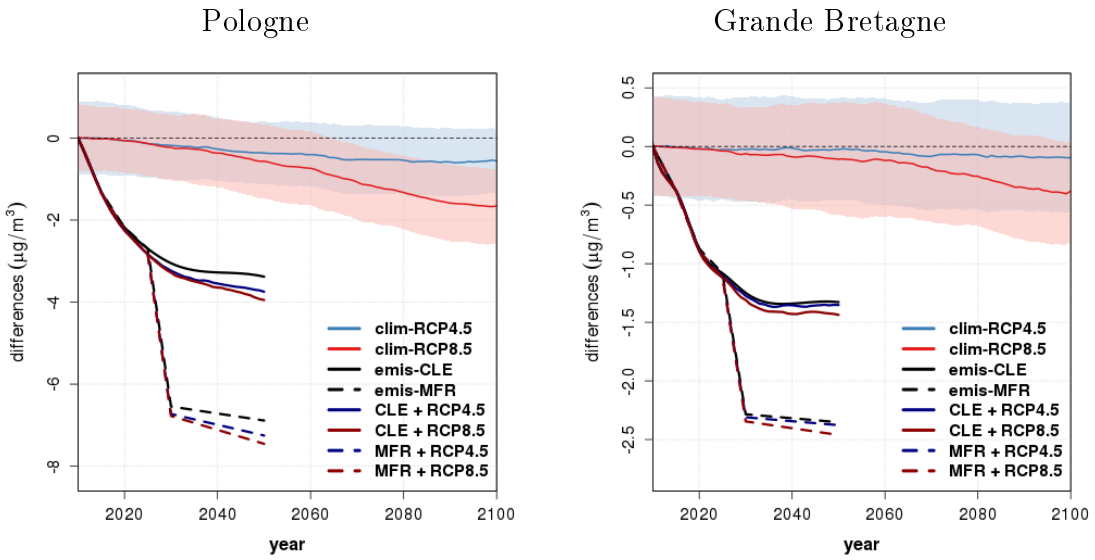


FIGURE A.5 – *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de $PM_{2.5}$ pour la Pologne (figure de gauche) et la Grande-Bretagne (figure de droite). L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).*

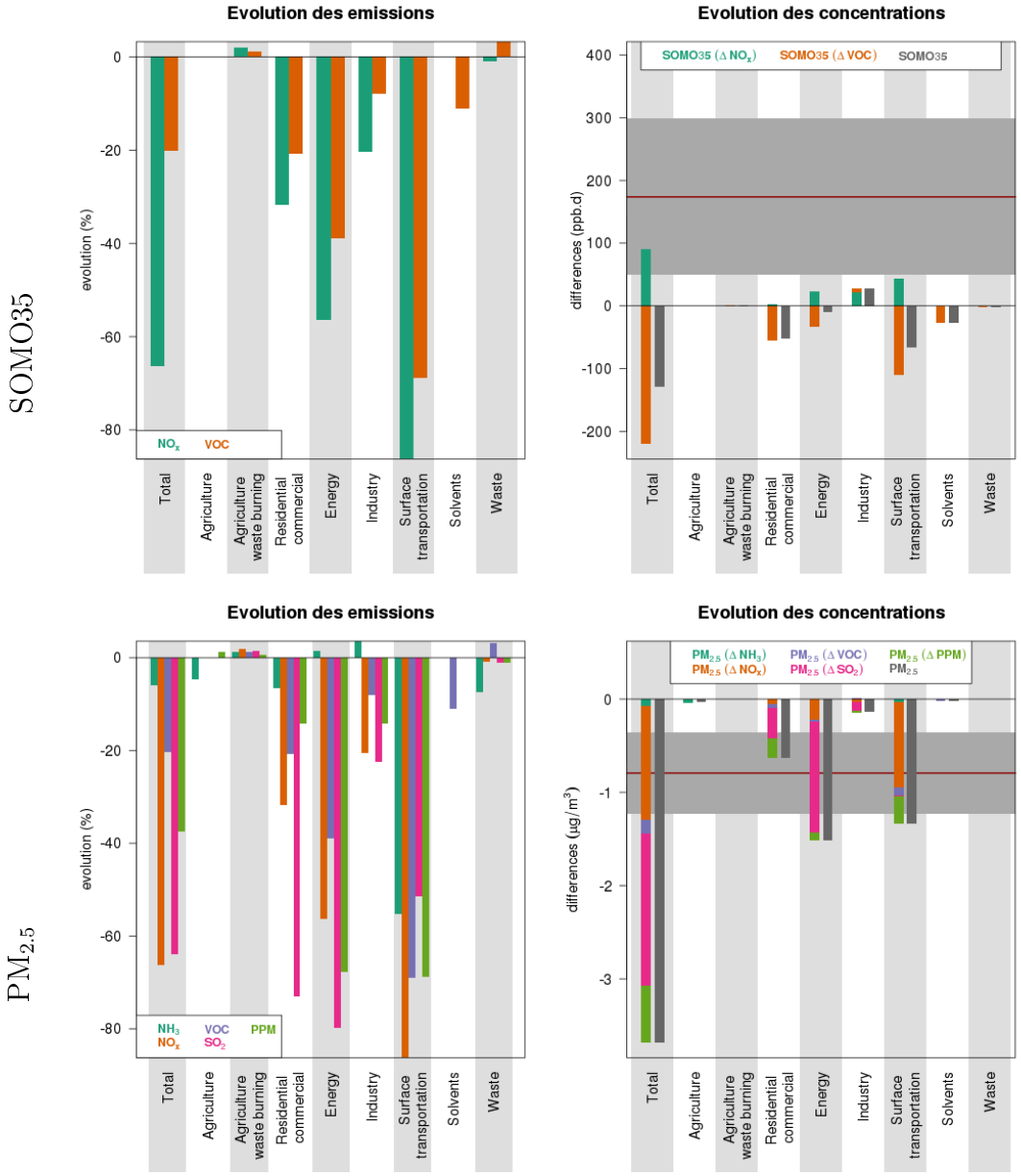


FIGURE A.6 – *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 (figures du haut) et $PM_{2.5}$ (figures du bas) liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour l'Allemagne. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.*

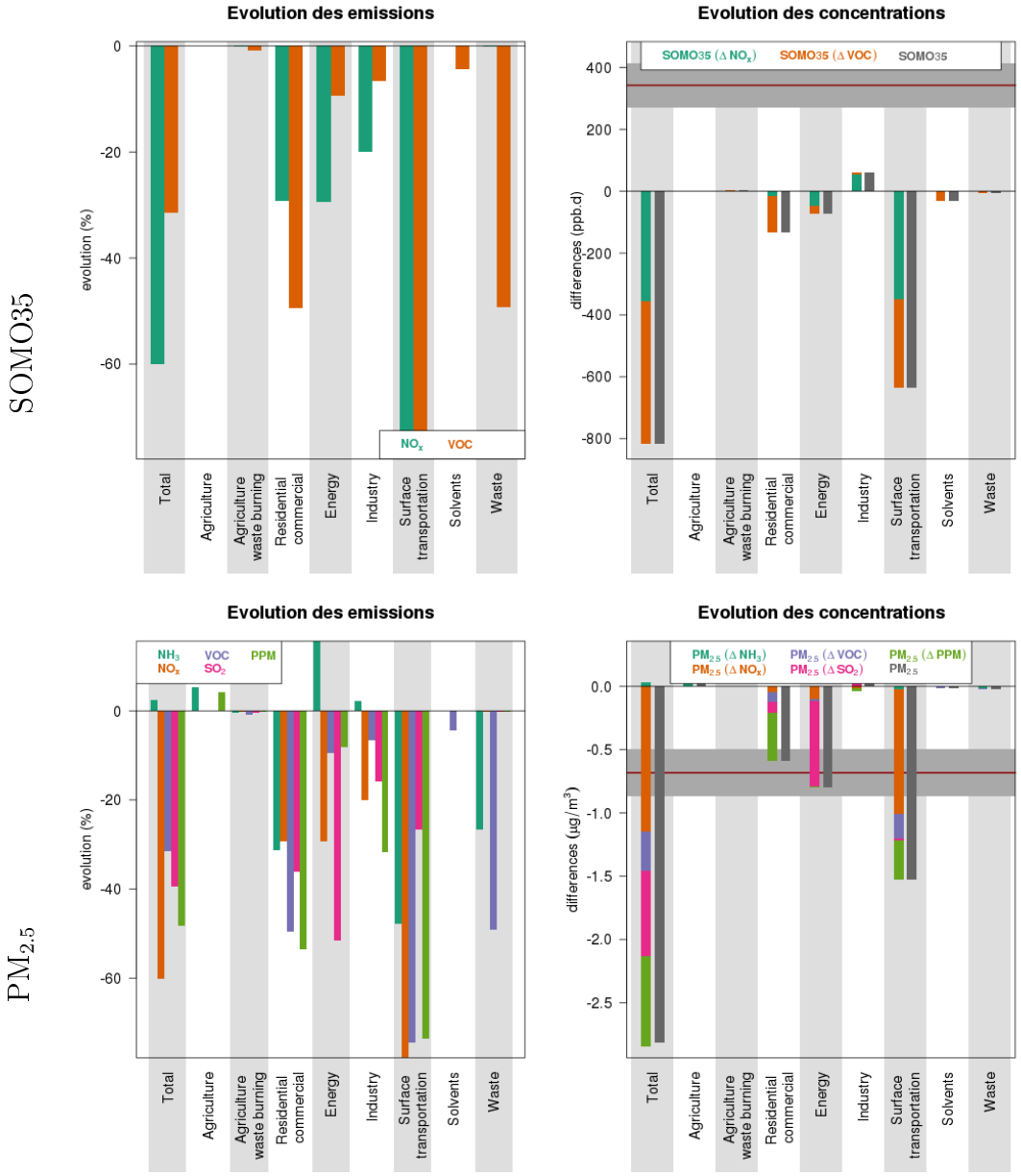


FIGURE A.7 – *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 (figures du haut) et $PM_{2.5}$ (figures du bas) liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour l'Italie. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.*

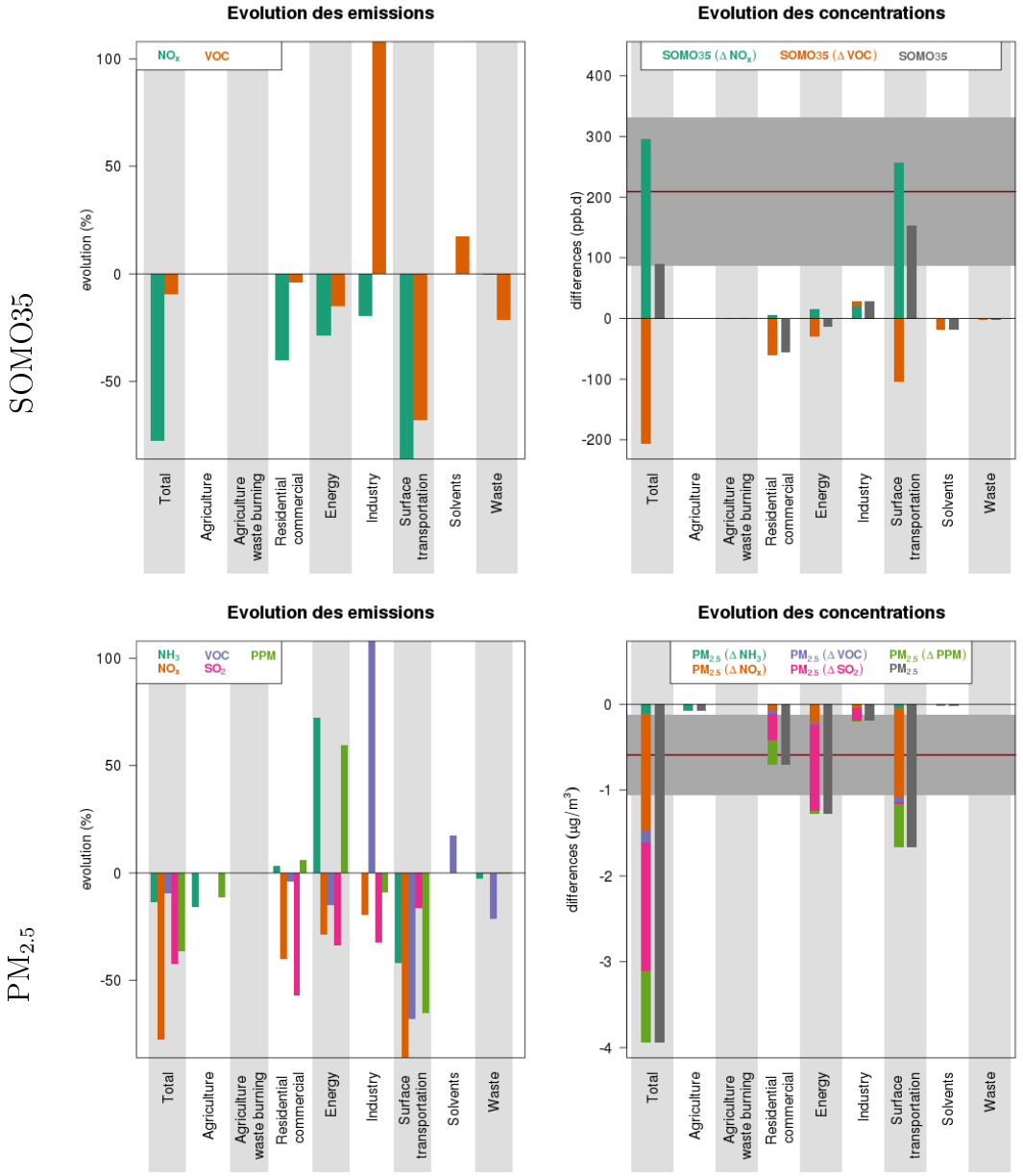


FIGURE A.8 – *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 (figures du haut) et $PM_{2.5}$ (figures du bas) liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour le Luxembourg. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.*

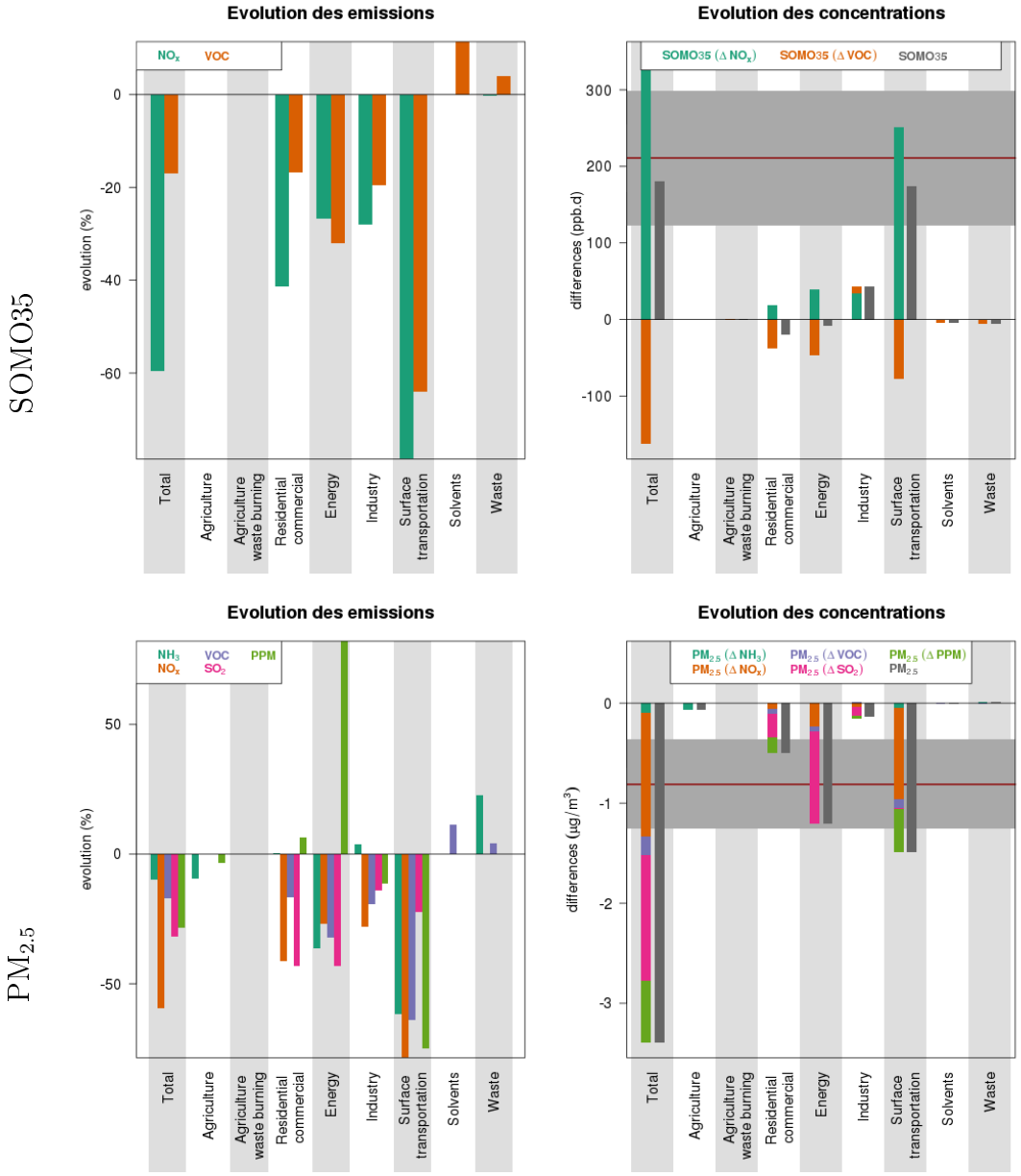


FIGURE A.9 – *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 (figures du haut) et $PM_{2.5}$ (figures du bas) liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour les Pays-Bas. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.*

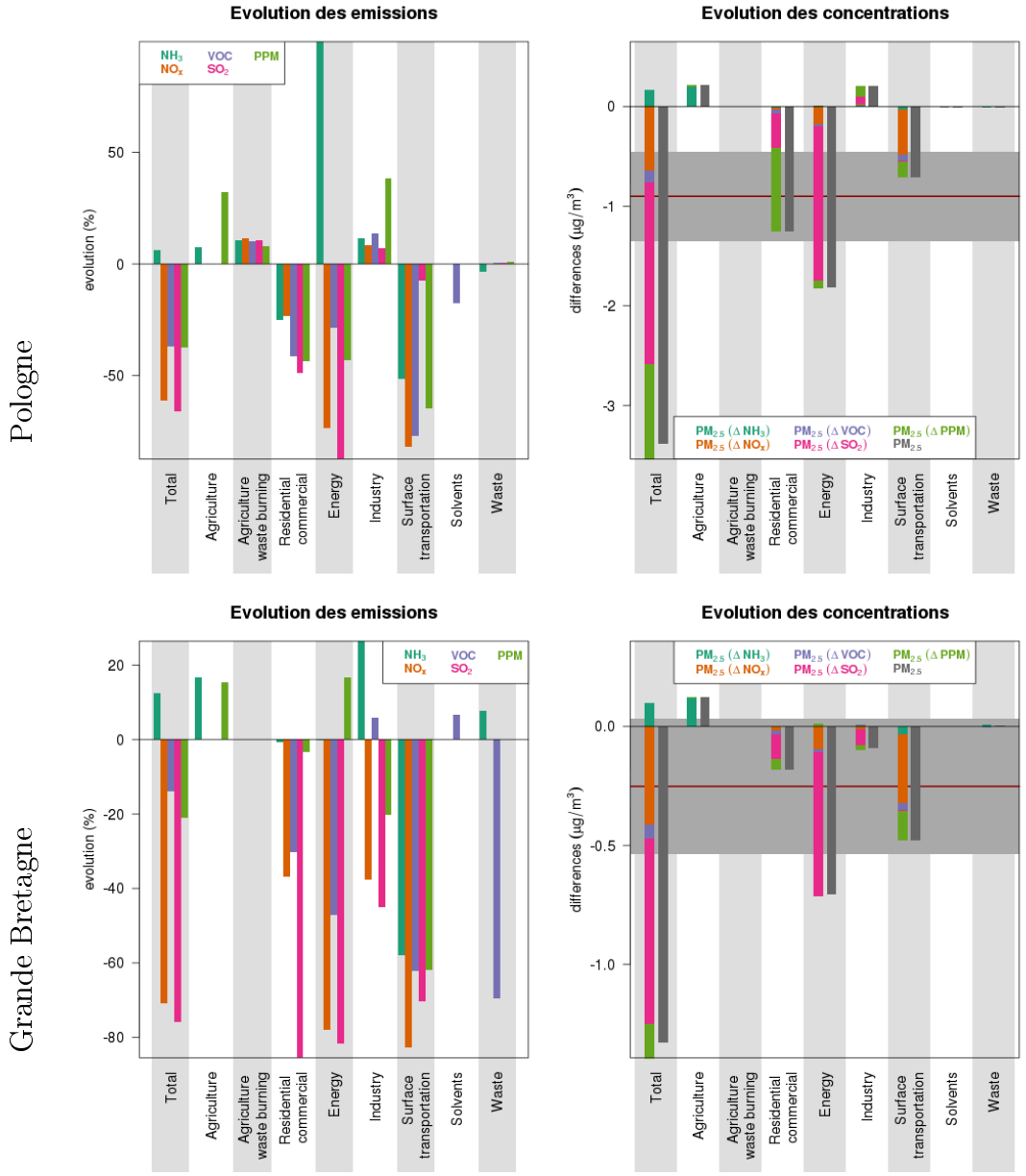


FIGURE A.10 – *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de $PM_{2.5}$ liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour la Pologne et la Grande Bretagne. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.*

Bibliographie

Alapaty, K., et al. (2012), New directions : understanding interactions of air quality and climate change at regional scales, *Atmospheric Environment*, *49*, 419–421.

Amann, M. (2008), *Health risks of ozone from long-range transboundary air pollution*, WHO Regional Office Europe.

Amann, M., et al. (2011), Cost-effective control of air quality and greenhouse gases in europe : Modeling and policy applications, *Environmental Modelling & Software*, *26*(12), 1489–1501.

Amann, M., et al. (2015), Adjusted historic emission data, projections, and optimized emission reduction targets for 2030-a comparison with com data 2013. part a : results for eu-28.

Appendix C EMEP (2015), Transboundary particulate matter, photo-oxydants, acidification and eutrophication components, joint msc-w & ccc & ceip report.

Beauchamp, M., L. Malherbe, and C. de Fouquet (2015), A pragmatic approach to estimate the number of days in exceedance of {PM10} limit value, *Atmospheric Environment*, *111*, 79 – 93, doi :https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.03.062.

Bessagnet, B., et al. (2008), Regional modeling of carbonaceous aerosols over europe - focus on secondary organic aerosols, *Journal of Atmospheric Chemistry*, *61*(3), 175–202, doi :10.1007/s10874-009-9129-2.

Betts, A., S. Hong, and H. Pan (1995), Comparison of ncep-ncar realanalysis with 1987 fife data, *Mon Weather Rev*, *124*, 1480–1498, doi :10.1175/1520-0493(1996)124.

Cholakian, A., et al. (2017), Simulation of fine organic aerosols in the western mediterranean area during the charmex 2013 summer campaign, *ACPD*, *in press*, –, doi :-.

Christensen, J., and O. Christensen (2007), A summary of the prudence model projections of changes in european climate by the end of this century, *Climatic Change*, *81*(1), 7–30, doi :10.1007/s10584-006-9210-7.

Christensen, J. H., T. R. Carter, M. Rummukainen, and G. Amanatidis (2007), Evaluating the performance and utility of regional climate models : the prudence project, *Climatic Change*, *81*(1), 1–6, doi :10.1007/s10584-006-9211-6.

Clappier, A., E. Pisoni, and P. Thunis (2015), A new approach to design source-receptor relationships for air quality modelling, *Environmental Modelling & Software*, *74*, 66–74, doi :http://dx.doi.org/10.1016/j.envsoft.2015.09.007.

Colette, A., et al. (2012), Future air quality in europe : a multi-model assessment of projected exposure to ozone, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(21), 10,613–10,630, doi :10.5194/acp-12-10613-2012.

Colette, A., et al. (2013), European atmosphere in 2050, a regional air quality and climate perspective under cmip5 scenarios, *Atmos. Chem. Phys.*, *13*(15), 7451–7471, doi :10.5194/acp-13-7451-2013, aCP.

Colette, A., et al. (2015), Is the ozone climate penalty robust in europe?, *Environmental Research Letters*, *10*(8), 084,015, doi :10.1088/1748-9326/10/8/084015.

Colette, A., et al. (2017), Eurodelta-trends, a multi-model experiment of air quality hindcast in europe over 1990–2010, *Geoscientific Model Development*, *10*(9), 3255–3276, doi :10.5194/gmd-10-3255-2017.

Couvidat, F., B. Bessagnet, M. Garcia-Vivanco, E. Real, L. Menut, and A. Colette (2017), Development of an inorganic and organic aerosol model (chimere2017β v1.0) : seasonal and spatial evaluation over europe, *Geoscientific Model Development Discussions*, *2017*, 1–53, doi :10.5194/gmd-2017-120.

Deser, C., R. Knutti, S. Solomon, and A. S. Phillips (2012), Communication of the role of natural variability in future north american climate, *Nature Clim. Change*, *2*(11), 775–779, 10.1038/nclimate1562.

Dockery, D. W., and C. A. Pope (1994), Acute respiratory effects of particulate air pollution, *Annual Review of Public Health*, *15*(1), 107–132, doi :doi:10.1146/annurev.pu.15.050194.000543.

EEA, E. E. A. (2016), Air quality in europe - 2016 report, *report*, doi :10.2800/413142.

Favez, O., and T. Amodeo (2016), Episodes de pollution particulaire de début décembre 2016 : éléments de compréhension à partir des mesures automatiques, mise à jour 9 dÃľcembre 2016.

Foley, J. A., et al. (2005), Global consequences of land use, *Science*, *309*(5734), 570–574, doi :10.1126/science.1111772.

Fortems-Cheiney, A., G. Foret, G. Siour, R. Vautard, S. Szopa, G. Dufour, A. Colette, G. Lacressonniere, and M. Beekmann (2017), A 3oc global rcp8.5 emission trajectory cancels benefits of european emission reductions on air quality, *Nature Communications*, *8*(1), 89, doi :10.1038/s41467-017-00075-9.

Fuhrer, J., L. Skärby, and M. Ashmore (1997), Critical levels for ozone effects on vegetation in europe, *Environmental Pollution*, *97*(1), 91 – 106, doi :http://dx.doi.org/10.1016/S0269-7491(97)00067-5.

Giorgi, F., and W. J. J. Gutowski (2015), Regional dynamical downscaling and the cordex initiative, *Annual Review of Environment and Resources*, *40*(1), 467–490, doi :10.1146/annurev-environ-102014-021217.

Hastie, T., and R. Tibshirani (2004), *Generalized Additive Models*, John Wiley and Sons, Inc., doi :10.1002/0471667196.ess0297.pub2.

Hastie, T., R. Tibshirani, and J. Friedman (2009), Overview of supervised learning, in *The elements of statistical learning*, pp. 9–41, Springer.

Hawkins, E., and R. Sutton (2009), The potential to narrow uncertainty in regional climate predictions, *Bulletin of the American Meteorological Society*, *90*(8), 1095–1107, doi :10.1175/2009BAMS2607.1.

Hedegaard, G. B., J. H. Christensen, and J. Brandt (2013), The relative importance of impacts from climate change vs. emissions change on air pollution levels in the 21st century, *Atmos. Chem. Phys.*, *13*(7), 3569–3585, aCP 1680-7324.

Huszar, P., et al. (2011), Effects of climate change on ozone and particulate matter over central and eastern europe, *Climate Research*, *50*(1), 51–68, doi :10.3354/cr01036.

IPCC (2013a), *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 1535 pp., Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, doi :10.1017/CBO9781107415324.

IPCC (2013b), *Summary for Policymakers*, book section SPM, pp. 1–30, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, doi :10.1017/CBO9781107415324.004.

Jacob, D., et al. (2014), Euro-cordex : new high-resolution climate change projections for european impact research, *Regional Environmental Change*, *14*(2), 563–578, doi :10.1007/s10113-013-0499-2.

Jacob, D. J., and D. A. Winner (2009), Effect of climate change on air quality, *Atmospheric Environment*, *43*(1), 51–63, doi :http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.09.051.

Jerrett, M., R. T. Burnett, C. A. Pope, K. Ito, G. Thurston, D. Krewski, Y. Shi, E. Calle, and M. Thun (2009), Long-term ozone exposure and mortality, *New England Journal of Medicine*, *360*(11), 1085–1095, doi :doi:10.1056/NEJMoa0803894.

Jiménez-Guerrero, P., J. P. Montávez, J. J. Gómez-Navarro, S. Jerez, and R. Lorente-Plazas (2012), Impacts of climate change on ground level gas-phase pollutants and aerosols in the iberian peninsula for the late xxi century, *Atmospheric Environment*, *55*(0), 483–495, doi :http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.02.048.

Juda-Rezler, K., et al. (2012), Modelling the effects of climate change on air quality over central and eastern europe : concept, evaluation and projections, *Climate Research*, *53*(3), 179–203.

Kampa, M., and E. Castanas (2008), Human health effects of air pollution, *Environmental Pollution*, *151*(2), 362 – 367, doi :http://doi.org/10.1016/j.envpol.2007.06.012, proceedings of the 4th International Workshop on Biomonitoring of Atmospheric Pollution (With Emphasis on Trace Elements).

Katragkou, E., P. Zanis, I. Kioutsioukis, I. Tegoulias, D. Melas, B. C. Krüger, and E. Coppola (2011), Future climate change impacts on summer surface ozone from regional climate-air quality simulations over europe, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *116*(D22), D22,307, doi :10.1029/2011JD015899.

Klimont, Z., et al. (2013), Eclipse v4a : Global emission data set developed with the gains model for the period 2005 to 2050 key features and principal data sources, *International Institute for Applied Systems Analysis (IIASA), Schlossplatz*, *1*, 2361.

Kulmala, M., et al. (2009), Introduction : European integrated project on aerosol cloud climate and air quality interactions (eucaari) - integrating aerosol research from nano to global scales, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(8), 2825–2841, doi :10.5194/acp-9-2825-2009.

Lacressonnière, G., V.-H. Peuch, R. Vautard, J. Arteta, M. Déqué, M. Joly, B. Josse, V. Marécal, and D. Saint-Martin (2014), European air quality in the 2030s and 2050s : Impacts of global and regional emission trends and of climate change, *Atmospheric Environment*, *92*, 348 – 358, doi :http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.04.033.

Lacressonnière, G., et al. (2016), Impacts of regional climate change on air quality projections and associated uncertainties, *Climatic Change*, *136*(2), 309–324, doi :10.1007/s10584-016-1619-z.

Lacressonnière, G., et al. (2017), Particulate matter air pollution in europe in a 2oc warming world, *Atmospheric Environment*, *154*, 129 – 140, doi :http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.01.037.

Langner, J., M. Engardt, and C. Andersson (2012a), European summer surface ozone 1990-2100, *Atmos. Chem. Phys.*, *12*(21), 10,097–10,105, aCP 1680-7324.

Langner, J., et al. (2012b), A multi-model study of impacts of climate change on surface ozone in europe, *Atmos. Chem. Phys.*, *12*(21), 10,423–10,440, doi :10.5194/acp-12-10423-2012, aCP.

Lecœur, E., C. Seigneur, C. Pagé, and L. Terray (2014), A statistical method to estimate pm2.5 concentrations from meteorology and its application to the effect of climate change, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *119*(6), 3537–3585, doi :10.1002/2013JD021172.

Lemaire, V. E. P., A. Colette, and L. Menut (2016), Using statistical models to explore ensemble uncertainty in climate impact studies : the example of air pollution in europe, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(4), 2559–2574, doi :10.5194/acp-16-2559-2016.

Lippmann, M. (1989), Health effects of ozone a critical review, *JAPCA*, *39*(5), 672–695, doi :10.1080/08940630.1989.10466554.

Louis, J. (1979), A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, *Boundary Layer Meteorology*, pp. 187–202.

Maas, R., and P. Grennfelt (2016), Towards cleaner air, *Scientific Assessment Report*.

Manders, A. M. M., E. van Meijgaard, A. C. Mues, R. Kranenburg, L. H. van Ulft, and M. Schaap (2012), The impact of differences in large-scale circulation output from climate models on the regional modeling of ozone and pm, *Atmos. Chem. Phys.*, *12*(20), 9441–9458, doi :10.5194/acp-12-9441-2012, aCP.

Marécal, V., et al. (2015), A regional air quality forecasting system over europe : the macc-ii daily ensemble production, *Geoscientific Model Development*, *8*(9), 2777–2813, doi :10.5194/gmd-8-2777-2015.

Megaritis, A. G., C. Fountoukis, P. E. Charalampidis, H. A. C. Denier van der Gon, C. Pilinis, and S. N. Pandis (2014), Linking climate and air quality over europe : effects of meteorology on pm2.5 concentrations, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *14*(7), 10,345–10,391, doi :10.5194/acpd-14-10345-2014, aCPD.

Meleux, F., F. Solmon, and F. Giorgi (2007), Increase in summer european ozone amounts due to climate change, *Atmospheric Environment*, *41*(35), 7577–7587, 1352-2310 doi : 10.1016/j.atmosenv.2007.05.048.

Menut, L. (2003), Adjoint modelling for atmospheric pollution processes sensitivity at regional scale during the ESQUIF IOP2, *J. Geophys. Res.*, *108*(D17), 8562, doi :10.1029/2002JD002549.

Menut, L., et al. (2013), Chimere 2013 : a model for regional atmospheric composition modelling, *Geosci. Model Dev.*, *6*(4), 981–1028, doi :10.5194/gmd-6-981-2013, gMD.

Pachauri, R. K., and A. Reisinger (2007), Contribution of working groups i, *II and III to the fourth assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC, Geneva, Switzerland*, p. 104.

Rao, S., et al. (2017), Future air pollution in the shared socio-economic pathways, *Global Environmental Change*, *42*, 346 – 358, doi :https://doi.org/10.1016/j.gloenvcha.2016.05.012.

Riahi, K., S. Rao, V. Krey, C. Cho, V. Chirkov, G. Fischer, G. Kindermann, N. Nakicenovic, and P. Rafaj (2011), Rcp 8.5—a scenario of comparatively high greenhouse gas emissions, *Climatic Change*, *109*(1), 33, doi :10.1007/s10584-011-0149-y.

Riahi, K., et al. (2017), The shared socioeconomic pathways and their energy, land use, and greenhouse gas emissions implications : An overview, *Global Environmental Change*, *42*, 153 – 168, doi :https://doi.org/10.1016/j.gloenvcha.2016.05.009.

Rouïl, L., et al. (2009), Prev'air an operational forecasting and mapping system for air quality in europe, *Bulletin of the American Meteorological Society*, *90*(1), 73–83, doi :10.1175/2008bams2390.1, times Cited : 10.

Sadiq, M., A. P. K. Tai, D. Lombardozzi, and M. Val Martin (2017), Effects of ozone - vegetation coupling on surface ozone air quality via biogeochemical and meteorological feedbacks, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *17*(4), 3055–3066, doi :10.5194/acp-17-3055-2017.

Schar, C., P. L. Vidale, D. Luthi, C. Frei, C. Haberli, M. A. Liniger, and C. Appenzeller (2004), The role of increasing temperature variability in european summer heatwaves, *Nature*, *427*(6972), 332–336, 10.1038/nature02300.

Seinfeld, J. H., and S. N. Pandis (2012), *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*, John Wiley and Sons, Hoboken, New Jersey.

Simpson, D., et al. (2012), The emep msc-w chemical transport model–technical description, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(16), 7825–7865.

Stegehuis, A., R. Vautard, P. Ciais, A. Teuling, D. Gonzalez Miralles, and M. Wild (2015), An observation-constrained multi-physics wrf ensemble for simulating european mega heat waves, *GEOSCIENTIFIC MODEL DEVELOPMENT*, *8*(7), 2285–2298.

Thunis, P., B. Degraeuwe, E. Pisoni, F. Ferrari, and A. Clappier (), On the design and assessment of regional air quality plans : The sherpa approach, *Journal of Environmental Management*, doi :http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvman.2016.09.049.

Troen, I. B., and L. Mahrt (1986), A simple model of the atmospheric boundary layer ; sensitivity to surface evaporation, *Boundary-Layer Meteorology*, *37*(1), 129–148, doi :10.1007/BF00122760.

Valari, M., and L. Menut (2008), Does an increase in air quality models resolution bring surface ozone concentrations closer to reality ?, doi :doi:10.1175/2008JTECHA1123.1.

Van der Linden, P., and J. Mitchell (2009), Ensembles : Climate change and its impacts : Summary of research and results from the ensembles project, *Met Office Hadley Centre, FitzRoy Road, Exeter EX1 3PB, UK*, *160*.

van Vuuren, D., et al. (2011), The representative concentration pathways : an overview, *Climatic Change*, *109*(1-2), 5–31, doi :10.1007/s10584-011-0148-z.

Varotsos, K. V., C. Giannakopoulos, and M. Tombrou (2013), Assessment of the impacts of climate change on european ozone levels, *Water, Air, and Soil Pollution C7 - 1596*, *224*(6), 1–13, water Air Soil Pollut 0049-6979.

Vautard, R., C. Honoré, M. Beekmann, and L. Rouil (2005), Simulation of ozone during the august 2003 heat wave and emission control scenarios, *Atmospheric Environment*, *39*(16), 2957–2967, 1352-2310.

Vautard, R., A. Colette, R. van Meijgaard, F. Meleux, G. Jan van Oldenborgh, F. Otto, I. Tobin, and P. Yiou (2017), Attribution of wintertime anticyclonic stagnation leading to air pollution in western europe, *Bull Am Meteorol Soc, in press*, –, doi :-.

Verbeke, T., J. Lathière, S. Szopa, and N. de Noblet-Ducoudré (2015), Impact of future land-cover changes on hno_3 and o_3 surface dry deposition, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(23), 13,555–13,568, doi : 10.5194/acp-15-13555-2015.

Watson, L., et al. (2016), Impact of emissions andÂă+2oc climate change upon future ozone and nitrogen dioxide over europe, *Atmospheric Environment*, *142*, 271 – 285, doi :http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.07.051.

Willeke, K., and K. T. Whitby (1975), Atmospheric aerosols : Size distribution interpretation, *Journal of the Air Pollution Control Association*, *25*(5), 529–534, doi :10.1080/00022470.1975.10470110.

Wind, P., D. Simpson, and L. Tarrason (2004), Source-receptor calculations, chapter 2, emep status report 1/2004, *1*.

Wood, S. N. (2006), Generalized additive models : an introduction with r.

Zyryanov, D., et al. (2012), 3-d evaluation of tropospheric ozone simulations by an ensemble of regional chemistry transport model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(7), 3219–3240, doi :10.5194/acp-12-3219-2012.

Table des figures

1.1 *Les principaux polluants à l'origine de la pollution atmosphérique régionale.* . 12

1.2 *Evolution des émissions des principaux polluants atmosphériques, d'après European Environment Agency (c256acfef744411983e3f94d502f6aab)* 16

1.3 *Concentrations observées en Europe aux différentes stations de mesure pour le dioxyde d'azote en haut à gauche, les maximas d'ozone à droite et panneau du bas, les PM_{10} et $PM_{2.5}$ d'après EEA (2016).* 17

1.4 *Les différents futurs climatiques en termes de forçage radiatif au sommet de l'atmosphère (W/m2), d'après (IPCC, 2013a).* 20

1.5 *Classement des polluants en fonction de leur durée de résidence dans l'atmosphère et donc de leur étendue spatiale, d'après Seinfeld and Pandis (2012).* . 23

1.6 *Représentation de l'influence des gaz et des particules sur le bilan radiatif terrestre d'après IPCC (2013a)* 24

2.1 *Carte d'Europe avec les régions définies pour présenter les résultats moyennés spatialement. Ces zones reprennent les choix faits dans le projet Européen PRUDENCE.* 30

2.2 *Schéma logique reprenant les différentes étapes (construction et application) de la méthode statistique présentée.* 31

2.3 *Illustration de la mise en place de la construction du modèle statistique.* . . . 32

2.4 *L'épisode de pollution simulé par la plate-forme de prévision Prev'Air. Chaque carte représente les moyennes journalières de concentrations de surface de PM_{10}. Ces cartes sont des "cartes analysées" c'est à dire reposant sur une fusion des données de mesures de surface et d'une simulation avec le modèle CHIMERE (Favez and Amodeo, 2016).* 52

2.5 *Représentation de la nouvelle région de travail.* 52

2.6 *À gauche, comparaison des distributions des concentrations estimées par le modèle de chimie transport CHIMERE et le modèle statistique (GAM) sur la région Nord/Bénélux pour trois périodes comprenant les mois de décembre de : 1976-2005, 2041-2071 et 2071-2100 respectivement début, milieu et fin du siècle d'un futur sans attenuation du changement climatique. À droite, comparaison des distributions des concentrations estimées par le modèle de chimie transport CHIMERE et le maillage de modèle statistique (GAM). Chaque distribution est représentée par un boxplot avec les points extrèmes en forme de croix. La moyenne apparaît sous forme de losange afin de la comparer à la médiane (barre horizontale du milieu du boxplot).* 54

3.1 *Représentation des niveaux de pression des données d'entrées météorologiques, issu du modèle météorologique méso-échelle WRF, pour chaque configuration (points colorés) et des niveaux du modèle de chimie transport CHIMERE (ligne horizontale et carrés noirs.* 59

3.2 *Biais ($\mu g.m^{-3}$), RMSE ($\mu g.m^{-3}$) et corrélation par niveaux de modèle pour différentes configurations des données météorologiques d'entrées pour la région EA (Eastern Europe) et pour l'ozone.* 60

3.3 *Biais ($\mu g.m^{-3}$), RMSE ($\mu g.m^{-3}$) et corrélation par niveaux de modèle et pour différentes configurations des données météorologiques d'entrées pour la région EA (Eastern Europe) pour les $PM_{2.5}$.* 62

3.4 *Biais, RMSE et corrélation pour l'ozone (panneau du haut) et les $PM_{2.5}$ (panneau du bas) sur la période 2001-2010 entre les versions avec les forcages météorologiques à 3 niveaux (LR) et à 16 niveaux (HR).* 63

3.5 *Carte représentant les points choisis pour étudier les profils verticaux.* 65

3.6 *Profils verticaux de K_z, contenu en eau liquide (CLWC) et différences d'ozone et de $PM_{2.5}$ (en $\mu g.m^{-3}$) entre les simulations LR et HR. La partie gauche de la figure montre les niveaux verticaux correspondants pour les simulations LR (en rouge) et HR (en noir) dans les données météorologiques d'origine. Pour les profils de K_z, CLWC, O_3 et $PM_{2.5}$, les symboles restent les mêmes pour définir les simulations LR et HR mais représentent les 9 niveaux verticaux du modèle CHIMERE. Les zones grisées représentent la hauteur de la couche limite.* 66

3.7 *Profil schématique de la diffusivité verticale K_z dans la couche limite. En présence d'un nuage, il est possible de modifier ce profil vertical en ajoutant une diffusivité verticale supplémentaire.* 69

3.8 *Profils verticaux de K_z, sans correction sous-nuage dans CHIMERE, contenu en eau liquide (CLWC) et différences d'ozone et de $PM_{2.5}$ (en $\mu g.m^{-3}$) entre les simulations LR et HR. La partie gauche de la figure montre les niveaux verticaux correspondants pour les simulations LR (en rouge) et HR (en noir) avec les données météorologiques d'origine. Pour les profils contenant K_z, CLWC, O_3 et $PM_{2.5}$, les symboles restent les mêmes pour définir les simulations LR et HR mais représentent les 9 niveaux verticaux du modèle CHIMERE. Les zones grisées représentent la hauteur de la couche limite.* 70

3.9 *Biais pour l'ozone (figure de gauche) et les $PM_{2.5}$ (figure de droite) sur la période 2001-2010 entre les versions avec les forcages météorologiques à 3 niveaux (LR) et à 16 niveaux (HR) sans correction sous-nuage dans CHIMERE.* 71

3.10 *Biais, RMSE et corrélation pour l'ozone (panneau du haut) et les $PM_{2.5}$ (panneau du bas) sur la période 2001-2010 entre les versions avec correction additionnel de la diffusivité sous nuage et sans cette correction.* 72

3.11 *Estimation des différences entre les simulations LR et HR pour quantifier si le biais est persistent dans le temps ou non.* 74

3.12 *Différences entre les simulations "futur" (2071-2100) et "présent" (2001-2010) pour les simulations HR et LR, pour l'ozone (en haut) et pour les $PM_{2.5}$ (en bas). Les résultats sont exprimés en valeurs absolues de concentrations de surface moyennées sur les 10 ans ($\mu g.m^{-3}$).* 75

3.13 *Cartes de MFE, MFB et (MFE-MFB) entre les simulations LR et HR pour l'ozone (en haut) et $PM_{2.5}$ (en bas) et pour la période "présent" (de 2001 à 2010). Les résultats sont présentés en %.* 76

3.14 *Cartes de valeurs de la différence HR-LRD, correspondant à la simulation LR corrigée du biais moyen estimé entre HR et LR sur le présent. Les cartes sont pour la période "présent" (à gauche) et pour la période "futur" (à droite) et pour l'ozone (en haut) et les $PM_{2.5}$ (en bas).* 77

4.1 *Schéma synthétique de la méthode couramment employée dans la littérature afin d'évaluer à l'aide d'un modèle de chimie-transport l'évolution des concentrations de surface d'un polluant en fonction de la variabilité future possible des émissions anthropiques (noté E) et de la météorologie (noté M).* 81

4.2 *Vision schématique de l'évolution possible des concentrations de surface d'ozone en fonction de la variabilité future des émissions anthropiques et de la météorologie.* 83

4.3 *Représentation schématique du principe des SRM. E_{ref} sont les émissions de l'année de référence , E_{red} correspond à ces mêmes émissions réduites de 15%. C_{new} sont les concentrations que l'on cherche à quantifier avec des nouvelles émissions E_{new}.* 84

4.4 *Comparaisons entre les concentrations estimées avec les SRM et celles estimées par les modèles EMEP et CHIMERE dans le programme EuroDelta-Trends. Les résultats pour l'indicateur SOMO35 (ppb.d) et les $PM_{2.5}$ ($\mu g.m^{-3}$) sont présentés (resp. panneau du haut et du bas) pour différentes combinaisons sur les émissions : E=1990, 2000 et 2010. La météorologie (M) et les conditions aux limites chimiques (BC) restent identiques et sont celles de 2010.* 87

4.5 *Cartographie des coefficients de chaque prédicteur météorologique, de l'intercept et du R2 ajusté du maillage de modèles statistiques pour le SOMO35.* . . . 89

4.6 *Présentation des coefficients et du R2 ajusté du maillage de modèles statistiques pour les particules fines.* 92

4.7 *La colonne de gauche représente le biais entre le modèle statistique et CHIMERE sur l'ensemble test (2071-2100). Les deux autres présentent la comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations sous l'effet du changement climatique dans le modèle statistique (proxyMeteo) et le modèle de chimie-transport CHIMERE pour le SOMO35 (panneau du haut) et les particules fines (panneau du bas).* 93

4.8 *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 pour la Belgique et la France. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).* 96

4.9 *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de $PM_{2.5}$ pour la Belgique et la France. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu)* 98

4.10 *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour la Belgique et la France. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.* 100

4.11 *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de particules fines liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour la Belgique et la France. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.* 101

4.12 *Mise en perspective de l'impact du climat (2041-2060) et des réductions d'émissions entre 2050 et 2010 pour deux scénarii (CLE et MFR) sur les concentrations de SOMO35 et de particules fines pour l'ensemble des pays sélectionnés.* 103

A.1 *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 (figure de gauche) et de $PM_{2.5}$ (figure de droite) pour l'Allemagne. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).* 120

A.2 *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 (figure de gauche) et de $PM_{2.5}$ (figure de droite) pour l'Italie. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).* 121

A.3 *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 (figure de gauche) et de $PM_{2.5}$ (figure de droite) pour le Luxembourg. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).* 122

A.4 *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de SOMO35 (figure de gauche) et de $PM_{2.5}$ (figure de droite) pour les Pays-Bas. L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).* 123

A.5 *Représentation de l'impact du changement climatique et de celui des réductions d'émissions sur les concentrations de $PM_{2.5}$ pour la Pologne (figure de gauche) et la Grande-Bretagne (figure de droite). L'impact du changement climatique est calculé par rapport à la période de référence (1976-2005) à partir de l'ensemble Euro-Cordex puis moyenné spatialement et lissé par une moyenne glissante sur 30 ans : la valeur moyenne est représentée par la courbe rouge (bleu ciel) pour le RCP8.5 (RCP4.5) et l'enveloppe représente la dispersion des modèles de l'ensemble. L'impact des émissions est estimé par rapport à 2010 pour les scenarii CLE et MFR et représentés par respectivement un trait noir plein et tireté. La résultante des deux impacts (changement climatique plus réductions d'émissions) est présenté pour chacun des couples : CLE + RCP8.5 (trait plein rouge), CLE + RCP4.5 (trait plein bleu), MFR + RCP8.5 (trait tireté rouge) et MFR + RCP4.5 (trait tireté bleu).* 124

A.6 *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 (figures du haut) et $PM_{2.5}$ (figures du bas) liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour l'Allemagne. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.* 125

A.7 *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 (figures du haut) et $PM_{2.5}$ (figures du bas) liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour l'Italie. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.* . 126

A.8 *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 (figures du haut) et $PM_{2.5}$ (figures du bas) liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour le Luxembourg. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.* 127

A.9 *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de SOMO35 (figures du haut) et $PM_{2.5}$ (figures du bas) liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour les Pays-Bas. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.* . 128

A.10 *Comparaison des évolutions (Futur - Historique) des concentrations de $PM_{2.5}$ liées à l'impact du changement climatique et des émissions (figure de droite) avec l'évolution des émissions (figure de gauche) sur la même période (ici 2010-CLE et 2050-CLE) pour la Pologne et la Grande Bretagne. L'impact moyen du changement climatique est calculé avec l'ensemble Euro-Cordex sur une période de 20 ans centrée en 2050 (2041-2060) et représenté par une ligne rouge et une enveloppe grise correspondant à la dispersion des modèles de l'ensemble. L'évolution des concentrations liées aux changements d'émissions est représentée par secteur sous forme de diagramme en bâton avec la contribution de chaque précurseur et l'évolution totale (somme des contributions des précurseurs) en gris foncé. Enfin l'évolution des émissions est aussi représentée sous forme de diagramme en bâton par secteurs.* 129

Liste des tableaux

1.1 *La réglementation Européenne en matière de qualité de l'air selon la directive Européenne (2008/50/CE)* 15

1.2 *Lien entre différentes variables météorologiques de surface et qualité de l'air. Les impacts des variables sur les polluants sont résumés par (++) régulièrement positif, (+) couramment positif, (=) faible ou variable, (-) couramment négatif et (- -) régulièrement négatif d'après Jacob and Winner (2009).* . . . 25

3.1 *Liste des modèles de climat, identifiés dans le chapitre 2, ainsi que les niveaux verticaux disponibles dans l'archive EuroCordex (en niveaux de pression constante).* 57

4.1 *Biais et RMSE entre SRM, EMEP (EMEP EuroDelta-Trends) et CHIM (CHIMERE EuroDelta-Trends) des niveaux de $PM_{2.5}$ et SOMO35 estimées pour les pays présentés Figure 4.4.* 88

université PARIS-SACLAY
ÉCOLE DOCTORALE
Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)

Titre : Hiérarchisation des déterminants de la composition atmosphérique future en Europe
Mots clés : changement climatique, qualité de l'air, modélisation chimie-transport

La composition chimique atmosphérique dépend principalement des émissions de polluants, de leurs précurseurs et de la météorologie. Les stratégies de gestion de la qualité de l'air ambitionnent des réductions substantielles d'émissions à long terme. Mais il est légitime d'évaluer si l'impact du changement climatique pourrait compenser ces efforts.
Afin de répondre à cette problématique, on a recours à la modélisation qui permet de faire des projections à long terme, sous différents scénarios de sensibilité pour isoler les principaux facteurs. Se pose alors le problème des incertitudes dans la modélisation. L'approche privilégié pour les études d'impact du climat est la modélisation ensembliste. Cependant du fait de l'important coût de calcul, on constate qu'aucune étude passée d'impact du climat sur la qualité de l'air ne repose sur un ensemble large de projections climatiques. C'est pourquoi, nous avons développé une méthode statistique alternative, entrainée sur des grands ensembles de simulations, pour caractériser l'impact des émissions et de la météorologie sur la qualité de l'air dans un contexte de changement climatique. Nous avons montré qu'un modèle statistique permettait d'obtenir des réponses sur l'impact du climat sans forcément avoir à réaliser explicitement des modélisations d'ensemble. La méthode développée donne des résultats avec une incertitude faible sur le long terme, même si nous avons montré ses limites lorsqu'il s'agit de traiter des cas de pollution extrêmes.

Afin de quantifier l'erreur induite par les données climatiques des modèles actuellement conservées de manière partielle, nous avons réalisé une étude de sensibilité à la résolution verticale des modèles climatiques régionaux. Nous avons montré qu'un minimum de dix niveaux verticaux, ainsi que des variables supplémentaires à l'existant étaient indispensables si l'on voulait que l'erreur de simulation reste inférieure au signal climatique étudié.

Enfin, nous avons utilisé le modèle statistique pour confronter l'impact du changement climatique aux réductions d'émissions anthropiques attendues à l'avenir. Les résultats ont permis de mettre en évidence que le bénéfice climatique pour les particules fines, $PM_{2.5}$, était du même ordre de grandeur que les baisses réalisées dans le secteur le plus influent de chaque pays étudié. Ces baisses d'émissions vont donc être renforcées par le changement climatique. Au contraire, pour l'ozone, la pénalité climatique va contrebalancer les efforts de réductions d'émissions réalisés entre 2010 et 2050. Pour les pays analysés, on peut estimer la date approximative de l'émergence du signal induit par le changement climatique malgré la réduction des émissions attendue dans la législation actuelle.

Title : Drivers of the future european atmospheric composition
Keywords : climate change, air quality, chemistry and transport modelling

The atmospheric composition is mainly driven by the emission of primary pollutants and precursors and meteorology. Because of its sensitivity to unfavorable weather patterns, air pollution is expected to be sensitive to climate change. That is why the aim of this work is to estimate the effect of climate change over air pollution in Europe at the end of the century. To achieve this, we rely on modeling which allows to cover such timescales.
To reduce uncertainties and quantify the effect of climate change on air quality, ensemble approaches should be applied. However, the computing cost of such methods is substantial. To overcome this issue we developed a statistical method which does not require forcing a chemistry and transport model with a large ensemble of climate projections. The results obtained with this statistical method are in good agreement with full chemistry-transport models when considering long time periods. But we point out the limits of the method when focusing on extreme pollution events. The statistical model can be used to assess the uncertainty of using a comprehensive ensemble of climate forcings in terms of air quality impacts. The statistical approach can also help identifying a subset of climate forcing that should be explored in priority to drive chemistry-transport models.
Such a subset of climate models is however only available at a degraded vertical resolution on existing databases such as EuroCordex. To quantify the error induced when using a meteorological variables only saved for a few vertical levels, a sensitivity study focused on the impact of the vertical resolution of the meteorological data has been perfomed. We emphasized that a minimum of 10 vertical levels and some specific variables were required to study the impact of climate change on air quality to keep the error lower than the climate change signal.
Finally, we use the statistical method to compare the climate change effect and the future emissions reduction impact estimated also with a surrogate model. We exhibit that the magnitude of climate benefit for $PM_{2.5}$ will be comparable to the emissions reductions of the dominant sector in each country studied. These emissions decreases will therefore be reinforced by the climate change impact. On the opposite, for ozone, the climate penalty will jeopardize the emission reductions between 2010 and 2050.

Université Paris-Saclay
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128, 91190 Saint-Aubin, France