Influence de l'évolution climatique sur la qualité de l'air en Europe

Eve Lecoeur

▶ **To cite this version:**

Eve Lecoeur. Influence de l'évolution climatique sur la qualité de l'air en Europe. Sciences de la Terre. Université Paris-Est, 2013. Français. NNT : 2013PEST1176 . pastel-00966991

HAL Id: pastel-00966991
https://pastel.hal.science/pastel-00966991

Submitted on 27 Mar 2014

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

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

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Est

Présentée et soutenue publiquement le 10 décembre 2013 par

Ève LECŒUR

pour l'obtention du diplôme de
Docteur de l'Université Paris-Est

Spécialité : Sciences et Techniques de l'Environnement

Influence de l'évolution climatique sur la qualité de l'air en Europe

---

devant le jury composé de

Directeurs de thèse :	P[r] Christian Seigneur	CEREA, École des Ponts ParisTech
	D[r] Laurent Terray	CERFACS/CNRS, Toulouse
Rapporteurs :	D[r] Virginie Marécal	Météo-France, Toulouse
	D[r] Pascal Yiou	LSCE/IPSL, Paris
Examinateurs :	D[r] Isabelle Bey	C2SM, ETH Zürich
	D[r] Julien Najac	EDF R&D, Chatou
	P[r] émérite Robert Rosset*	Laboratoire d'Aérologie, Toulouse

* Absent de la soutenance

Remerciements

Je tiens ici à remercier toutes les personnes qui ont contribué, de près ou de loin, à l'aboutissement de ce travail de recherche.

Merci tout d'abord à Christian Seigneur de m'avoir proposé cette thèse et de m'avoir dirigé durant ces trois années. Sa grande disponibilité, ses constants encouragements et son savoir ont été de précieux atouts. Ses jeux photos et ses chocolats ont rythmé mes journées à chacun de ses retours de vacances. Merci également à Laurent Terray, co-directeur de cette thèse, pour ses idées et pour la grande liberté d'action dont j'ai pu bénéficier tout au long de ce travail. Je mesure la chance que j'ai eue d'avoir été encadrée par deux chercheurs (et grands voyageurs) tout aussi brillants que sympathiques.

Je remercie Pascal Yiou et Virginie Marécal d'avoir accepté la lourde tâche de rapporteur ainsi qu'Isabelle Bey d'avoir participé à ce jury.

Merci à Marie Berthelot et Julien Najac de m'avoir encouragée à poursuivre mes études ainsi que pour l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux. Merci Julien d'avoir accepté d'être examinateur de cette thèse.

J'ai bénéficié de conditions de travail exceptionnelles au CEREA, dont je tiens ici à remercier les membres. Merci à Bertrand, Luc, Maya, Raphaël B., Eric D., Hanane et Denis d'EDF R&D. Côté INRIA, merci à Vivien (pour ses conseils LaTeX et emacs) et à Anne. Merci aussi à tous mes collègues basés à l'École des Ponts : Marc (l'autre bureau allumé à 7h45), Yelva (et ses scripts Python), Karine (et les conditions aux limites MOZART-4), Jérôme (qui m'a bien aidée pour WRF), Laëtitia G. (qui a patiemment écouté toutes mes histoires), Giuliana (bon retour au pays), Nicolas Y. (encore félicitations !) et Arnaud (*a chamomile tea with soy milk, please. And I'll need more Stevia*). Un très grand merci à Sylvain d'avoir déployé toutes ses compétences et son énergie pour moi et pardon que ça n'ait finalement pas abouti. Enfin, merci à Véronique pour sa gentillesse et sa rapidité lors de la préparation de mes différentes missions. Je ne peux m'empêcher d'avoir une pensée émue pour les "anciens", que je rejoins dorénavant : Régis (et son théorème sur le RER A), Youngseob (et son inoubliable pot de thèse), Florian (merci pour ton aide lors de la prise en main de Polyphemus/Polair3D), Karim, Yongfeng et enfin Cédric (le jeune papa). Je pense aussi à Yiguo avec qui j'ai partagé mes derniers instants de rédaction. Je souhaite finalement un bon courage à ceux dont ce sera bientôt le tour (Victor, Nicolas C., Masoud, Venky, mon cher co-bureau Vincent, Charbel, Paul, Yann, Stéphanie et Shupeng), et une bonne thèse à la toute nouvelle génération (Jean-Matthieu et Laëtitia T.). Merci à vous tous pour ces bons moments passés ensemble au déjeuner, au café, au goûter, à jouer au tarot, à l'EGU, lors de courses à pied, de déménagements, de soirées Singstar et Lasergame, ... et aussi à travailler.

Cette thèse est le fruit d'une collaboration avec le CERFACS, où je me suis rendue à de nombreuses reprises. Je tiens à y remercier Christian Pagé pour sa grande gentillesse, sa super réactivé, ses précieux conseils et son aide inestimable lors de la prise en main de NCL et de Dsclim. Merci également à Marie P. et Sophie R. pour nos discussions ainsi que pour les agréables moments passés à arpenter la ville de San Francisco. Merci finalement à Mélanie, rencontrée à Stockholm puis retrouvée à Toulouse, pour son soutien et son amitié.

Viennent maintenant ceux que l'on remercie en dernier.

Une pensée mathématique pour les survivants du Master 2 d'Analyse Numérique de Paris 6, avec qui je passe toujours de bons moments : Kévin (qui avait par ailleurs infiltré le CEREA), Matthias, Alban, Fabien, Jacques, François et Alexis G.

Pour la curiosité qu'ils ont porté à ce travail, leur soutien, les pages de thèse et les posters relus, mais surtout pour leur amitié, merci à : Marjorie et Erwan (un gros bisou à la petite Louise), Audrey (je viens bientôt te voir sur ton caillou, c'est promis), Jérémy C. (complice un jour, complice toujours), Raphaël S. (tu veux du mouton ?), Raphaël G. (et toi, tu en veux ?), Madeleine (émotionnelle et conceptuelle), Claire (force et courage pour l'année qui vient), Alexis L. (tarot), Antonin (katsu curry), Émilie (la jolie future mariée), Fanny (bavardages et cafés gourmands), Jessica (hâte que tu viennes ici), Anne-Cécile, Aurélie et Mélaine (mes électriciennes et baroudeuses préférées). Un merci tout spécial à Morgane, poétesse et anarchiste du droit, qui a relu ce manuscrit dans ses moindres recoins. Dis, tu te souviens de l'époque où on prenait le train de 6h56 et où on disait qu'on ne ferait jamais de thèse ?

Merci à mes parents, Chhay-Sê et Dominique, pour leur infinie patience. Merci à Miguel, Lyliane, Agnès, Bernard, Solange, Monnie et Gérald pour leur profonde gentillesse à mon égard.

Enfin, merci Jérémy de parler couramment LaTeX, C++, Shell, Python et même NCL s'il le faut... et merci pour tout le reste. Après Stockholm et Paris, l'aventure continue dorénavant à Singapour.

Résumé

La pollution atmosphérique est le produit de fortes émissions de polluants (et de leurs précurseurs) et de conditions météorologiques défavorables. Les particules fines ($PM_{2.5}$) sont l'un des polluants les plus dangereux pour la santé publique. L'exposition répétée ou prolongée à ces particules entraîne chaque année des maladies respiratoires et cardio-vasculaires chez les personnes exposées ainsi que des morts prématurées. L'évolution du climat dans les années à venir aura un impact sur des variables météorologiques (température, vents, précipitations, ...). Ces variables influencent à leur tour divers facteurs, qui affectent la qualité de l'air (émissions, lessivage par les précipitations, équilibre gaz/particule, ...). Si de nombreuses études ont déjà projeté l'effet du changement climatique sur les concentrations d'ozone, peu se sont intéressées à son effet sur les concentrations de particules fines, en particulier à l'échelle du continent européen. C'est ce que cette thèse se propose d'étudier.

La circulation atmosphérique de grande échelle est étroitement liée aux variables météorologiques de surface. Par conséquent, il est attendu qu'elle ait également un impact sur les concentrations de $PM_{2.5}$. Nous utilisons dans cette thèse une approche statistique pour estimer les concentrations futures de $PM_{2.5}$ à partir d'observations présentes de $PM_{2.5}$, de quelques variables météorologiques pertinentes et d'outils permettant de représenter cette circulation atmosphérique (régimes et types de temps). Le faible nombre d'observations journalières de $PM_{2.5}$ et de ses composants en Europe nous a conduit à créer un jeu de données pseudo-observées à l'aide du modèle de qualité de l'air Polyphemus/Polair3D, puis à l'évaluer de façons opérationnelle et dynamique, afin de s'assurer que l'influence des variables météorologiques sur les concentrations de $PM_{2.5}$ est reproduite de manière satisfaisante par le modèle. Cette évaluation dynamique d'un modèle de qualité de l'air est, à notre connaissance, la première menée à ce jour.

Les projections de $PM_{2.5}$ sur les périodes futures montrent une augmentation systématique des concentrations de $PM_{2.5}$ au Royaume-Uni, dans le nord de la France, au Benelux et dans les Balkans, et une diminution dans le nord, l'est et le sud-est de l'Europe, en Italie et en Pologne. L'évolution de la fréquence des types de temps ne suffit pas toujours à expliquer l'évolution de ces concentrations entre les périodes historique et futures, car les relations entre circulation atmosphérique de grande échelle et types de temps, entre types de temps et variables météorologiques, et entre variables météorologiques et concentrations de $PM_{2.5}$ sont amenées à évoluer dans le futur et contribuent à l'évolution des concentrations de $PM_{2.5}$.

L'approche statistique développée dans cette thèse est nouvelle pour l'estimation de l'impact du climat et du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$ en Europe. Malgré les incertitudes qui y sont associées, cette approche est facilement adaptable à différents modèles et scénarios, ainsi qu'à d'autres régions du monde et d'autres polluants. En utilisant des observations pour définir la relation polluant-météorologie, cette approche serait d'autant plus robuste.

Mots-clés : particules fines, changement climatique, régimes de temps, types de temps, $PM_{2.5}$.

Abstract

Air pollution is the result of high emissions of pollutants (and pollutant precursors) and unfavorable meteorological conditions. Fine particulate matter ($PM_{2.5}$) is one of the pollutants of great concern for human health. Every year, a repeated or continuous exposure to such particles is responsible for respiratory and cardiovascular diseases among the concerned populations and leads to premature deaths. Climate change is expected to impact meteorological variables (temperature, wind, precipitation, ...). Those variables will influence numerous factors, which will affect air quality (emissions, precipitation scavenging, gas/particle equilibrium, ...). A large body of studies have already investigated the effects of climate change on ozone, whereas only a few have addressed its effects on $PM_{2.5}$ concentrations, especially over Europe. This is the subject we investigate in this thesis.

Large-scale circulation is closely linked to surface meteorological variables. Therefore, it is expected that it will impact $PM_{2.5}$ concentrations too. In this thesis, we develop a statistical algorithm to estimate future $PM_{2.5}$ concentrations from present $PM_{2.5}$ observations, selected meteorological variables and tools to represent this circulation (weather regimes and weather types). The lack of daily observations of $PM_{2.5}$ and its components over Europe prevents us to used observations. Consequently, we have created a pseudo-observed $PM_{2.5}$ data set, by using the Polyphemus/Polair3D air quality Chemical-Transport Model. Both operational and dynamic evaluations were conducted against EMEP measurements, to ensure that the influence of meteorological variables on $PM_{2.5}$ concentrations is correctly reproduced by the model. As far as we know, this dynamic evaluation of an air quality model with respect to meteorology is the first conducted to date.

Future $PM_{2.5}$ concentrations display an increase over the U.K., northern France, Benelux, and in the Balkans, and a decrease over northern, eastern, and southeastern Europe, Italy, and Poland compared to the historical period. The evolution of weather type frequencies is not sufficient to explain the $PM_{2.5}$ changes. The relationships between the large-scale circulation and the weather types, between the weather types and meteorological variables, and between meteorological variables and $PM_{2.5}$ concentrations evolve with future meteorological conditions and also contribute to $PM_{2.5}$ changes.

The statistical method developed in this thesis is a new approach to estimate the impact of climate and climate change on $PM_{2.5}$ concentrations over Europe. Despite some uncertainties, this approach is easily applicable to different models and scenarios, as well as other geographical regions and other pollutants. Using observations to establish the pollutant-meteorology relationship would make this approach more robust.

Keywords : fine particulate matter, climate change, weather regimes, weather types, $PM_{2.5}$.

Table des matières

Résumé **5**

Introduction générale **15**

1 Introduction **17**

1.1 Le climat . . . 17

1.1.1 La machine climatique . . . 18

1.1.2 Histoire du climat . . . 23

1.1.3 Le changement climatique . . . 26

1.1.3.1 Les changements climatiques observés et les effets constatés . . . 26

1.1.3.2 Les causes de l'évolution récente du climat . . . 28

1.1.3.3 Les changements climatiques projetés . . . 28

1.2 Les particules atmosphériques . . . 30

1.2.1 Origine et composition chimique des particules . . . 30

1.2.2 Impacts des particules . . . 31

1.2.3 Règlementation des particules . . . 32

1.3 Météorologie et concentrations de $\mathbf{PM_{2.5}}$: état de l'art . . . 34

1.3.1 Météorologie et concentrations de $\mathbf{PM_{2.5}}$ pour le climat présent . . . 35

1.3.2 Réponse des $\mathbf{PM_{2.5}}$ et de ses composants au changement climatique . . . 37

1.4 Objectifs et plan de la thèse . . . 40

2 La circulation atmosphérique de grande échelle sur la région Europe-Atlantique Nord **43**

2.1 Les régimes de temps . . . 43

2.1.1 Définitions . . . 44

2.1.2 Un peu de mathématiques . . . 45

2.1.3 Description . . . 50

2.1.4 Vagues de froid, canicules et régimes de temps . . . 52
2.2 Les types de temps . . . 54
2.2.1 Définition . . . 55
2.2.2 Description . . . 56
2.2.2.1 Quelques types de temps d'hiver . . . 56
2.2.2.2 Quelques types de temps d'été . . . 57
2.3 Les changements moyens sur l'Europe . . . 58
2.3.1 Les changements en termes de température . . . 58
2.3.2 Les changements en termes de précipitations . . . 59
Synthèse et perspectives . . . 61

3 Évaluation dynamique d'une simulation de concentrations de particules fines à l'échelle européenne 63

Résumé . . . 63
3.1 Introduction . . . 67
3.2 Model simulation . . . 68
3.2.1 Input data and model configuration . . . 68
3.2.2 **$PM_{2.5}$** spatial distribution and chemical composition over Europe . . . 70
3.3 Operational evaluation . . . 73
3.3.1 Statistical scores . . . 73
3.3.2 Comparison with other model evaluations in the context of AQMEII . . . 75
3.3.3 Comparison with the performance evaluation of 1 year simulations . . . 76
3.3.4 Discussion . . . 77
3.4 Dynamic evaluation . . . 77
3.4.1 Data sets and method . . . 77
3.4.2 Dynamic evaluation of **$PM_{2.5}$** at EMEP stations . . . 79
3.4.3 Dynamic evaluation of **$PM_{2.5}$** and its main components at EMEP stations . . . 81
3.5 Conclusions . . . 88
Synthèse et perspectives . . . 90

4 Une méthode statistique pour étudier les relations entre $PM_{2.5}$ et variables météorologiques et son application au changement climatique 93

Résumé . . . 93
4.1 Introduction . . . 97

4.2 Data and methods . . . 99
4.2.1 $PM_{2.5}$ pseudo-observations and meteorological variables over Europe . . . 100
4.2.2 Weather types . . . 101
4.2.3 The statistical algorithm . . . 103
4.2.3.1 The learning period . . . 103
4.2.3.2 Historical period . . . 105
4.2.3.3 Future meteorological conditions . . . 106
4.3 Evaluation of the algorithm over the learning period . . . 107
4.4 Application to the effect of climate change . . . 109
4.4.1 Climate change scenarios . . . 109
4.4.1.1 RCP4.5 scenario . . . 109
4.4.1.2 RCP8.5 scenario . . . 109
4.4.2 Future **$PM_{2.5}$** over Europe . . . 110
4.4.2.1 Projected **$PM_{2.5}$** for the RCP4.5 scenario in the near future . . . 110
4.4.2.2 Projected **$PM_{2.5}$** for the RCP4.5 scenario in the distant future . . . 111
4.4.2.3 Projected **$PM_{2.5}$** for the RCP8.5 scenario in the near future . . . 112
4.4.2.4 Projected **$PM_{2.5}$** for the RCP8.5 scenario in the distant future . . . 113
4.4.2.5 Comparison of **$PM_{2.5}$** response between the distant and near futures . . . 114
4.4.2.6 **$PM_{2.5}$** components driving the **$PM_{2.5}$** response . . . 115
4.4.3 Discussion . . . 115
4.4.3.1 **$PM_{2.5}$** component responses to changes in meteorological variables . . . 115
4.4.3.2 **$PM_{2.5}$** projections and weather types . . . 118
4.5 Conclusions . . . 121
Synthèse et perspectives . . . 125

5 Conclusions et perspectives **129**

Annexes **133**

A Annexes du Chapitre 3 . . . 133
A.1 Comparison with other modeling studies in the context of AQMEII . . . 133
A.2 Comparison with model performance evaluations of 1 year simulations over Europe 133
B Annexes du Chapitre 4 . . . 135
B.1 Seasonal response of **$PM_{2.5}$** under RCP4.5 . . . 135

B.2 Seasonal response of $\mathbf{PM_{2.5}}$ under RCP8.5 136
B.3 Seasonal response of meteorological variables under RCP4.5 137
B.4 Seasonal response of meteorological variables under RCP8.5 140
B.5 Comparison in annual meteorological variables between the distant and near futures 143
B.6 Range of variation of $\mathbf{PM_{2.5}}$ and its components among future periods and scenarios 144
B.7 Weather type description 148
B.7.1 DJF weather types 148
B.7.2 MAM weather types 150
B.7.3 JJA weather types 153
B.7.4 SON weather types 156
B.8 Weather type frequencies 159
B.9 Computational cost 161

Bibliographie **171**

Liste des acronymes

AO	:	*Arctic Oscillation* (Oscillation arctique)
AMO	:	*Atlantic Multidecadal Oscillation* (Oscillation multi-décennale de l' Atlantique)
AQMEII	:	*Air Quality Modelling Evaluation International Initiative*
AR	:	*Atlantic Ridge* (Dorsale Atlantique)
AR5	:	*Fifth Assessment Report* ($5^{\text{ème}}$ Rapport d'évaluation)
BC	:	*Black carbon* (carbone suie ou carbone élémentaire)
BL	:	*Blocking* (Blocage)
CMIP3	:	*Couple Model Intercomparison Project Phase 3*
CMIP5	:	*Couple Model Intercomparison Project Phase 5*
CNRM	:	Centre National des Recheches Météorologiques
CTM	:	*Chemical-Transport Model* (modèle de chimie-transport)
DJF	:	*December - January - February*
EAN	:	Europe-Atlantique Nord
ECMWF	:	*European Centre for Medium-Range Weather Forecasts*
EMEP	:	*European Monitoring and Evaluation Programme*
ENSO	:	*El Niño Southern Oscillation*
EOF	:	*Empirical Orthogonal Functions* (fonctions empiriques orthogonales)
GHG/GES	:	*Greenhouse gas*/gaz à effet de serre
GIEC	:	Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat
IPCC	:	*Intergovernmental Panel on Climate Change*
JJA	:	*June - July - August*
MAM	:	*March - April - May*
MEGAN	:	*Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature*
MFB	:	*Mean Fractional Bias*
MFE	:	*Mean Fractional Error*
MOZART-4	:	*Model for OZone And Related chemical Tracers, version 4*
MNB	:	*Mean Normalized Bias*
MNE	:	*Mean Normalized Error*
NAO	:	*North Atlantic Oscillation* (Oscillation Nord-Atlantique)
NMB	:	*Normalized Mean Bias*
NCEP	:	*National Center for Environment and Prediction*
OM	:	*Organic matter* (matière organique)
OMM	:	Organisation Météorologique Mondiale
OMS	:	Organisation Mondiale de la Santé
PDF	:	*Probability Density Function* (densité de probabilité)
PDO	:	*Pacific Decadal Oscillation* (Oscillation décennale du Pacifique)
PM	:	*Particulate matter*

PNUE	:	Programme des Nations Unies pour l'Environnement
PSL	:	*Pressure at Sea Level* (pression de surface)
RCP	:	*Representative Concentration Pathway*
RMSE	:	*Root Mean Square Error* (erreur quadratique moyenne)
SON	:	*September - October - November*
SS	:	*Sea Salt* (sels marins)
SST	:	*Sea Surface Temperature* (température de surface de la mer)
SVOC	:	*Semi-volatile organic compounds* (composés organiques semi-volatils)
TAS	:	*Temperature Air Surface* (température de surface)
VOC	:	*Volatile organic compounds* (composés organiques volatils)
WGI/II/III	:	*Working Group I/II/III* (groupes de travail I/II/III du GIEC)
WR	:	*Weather regimes* (régimes de temps)
WT	:	*Weather types* (types de temps)
ZCIT	:	Zone de convergence inter-tropicale

Introduction générale

La révolution industrielle marque le début d'une nouvelle ère pour les hommes. La société, jusque là principalement agraire et artisanale, évolue vers une société à caractère industriel. Les transports automobiles, ferroviaires et maritimes se développent, la démographie explose. Cette mutation de la société entraîne une modification de la composition chimique de l'atmosphère et du climat. En effet, depuis la fin du 19ème siècle, la température à la surface de la Terre a augmenté de 0.65 à 1.06°C et le niveau des mers de 10 à 20 cm. Ces phénomènes sont en grande partie liés aux activités humaines, qui engendrent des émissions de gaz à effet de serre (CO_2, N_2O, CH_4) et d'aérosols. Ces composés ont la propriété d'absorber le rayonnement infrarouge émis par la surface de la Terre, contribuant ainsi au réchauffement de l'atmosphère. Selon les prédictions du dernier rapport du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC), dont le premier volet a été rendu public à Stockholm le 27 septembre 2013, ces changements climatiques pourraient s'aggraver d'ici la fin du 21ème siècle. Il est attendu que la température moyenne augmente de 1.5 à 4.8°C selon les scénarios d'émissions considérés (Alexander et al., 2013).

Ces émissions de polluants nous affectent directement car ils dégradent l'air que nous respirons. Certains de ces polluants sont très dangereux pour la santé publique : c'est le cas notamment des particules fines ($PM_{2.5}$), qui, en raison de leur faible diamètre aérodynamique, peuvent pénétrer profondément dans le système respiratoire, jusque dans les cavités alvéolaires des poumons. L'exposition prolongée et/ou répétée à ces particules entraîne ainsi des maladies respiratoires et cardio-vasculaires au sein des populations exposées. Ce polluant est donc mesuré et fait l'objet de règlementations, afin de quantifier les niveaux de pollution, d'évaluer l'efficacité des mesures prises pour en limiter les émissions et d'informer la population sur la qualité de l'air. Ces règlementations évoluent au fur et à mesure de l'évolution des connaissances sur l'impact sanitaire de ce polluant.

La qualité de l'air est au cœur d'un système complexe et non linéaire, qui dépend de la quantité de polluants émis dans l'atmosphère et des phénomènes physiques et chimiques auxquels ces derniers sont soumis une fois émis (dispersion, transformation chimique, dépôts). On distingue deux types de polluants atmosphériques : les polluants primaires et les polluants secondaires. Les sources de polluants primaires sont diverses : des sources anthropiques telles que trafic automobile, industries et chauffage, et des sources naturelles telles que la végétation, les volcans et la mise en suspension sous l'action éolienne de sels marins et de poussières telluriques. Ces sources conduisent à l'émission d'oxydes d'azote et de soufre, de composés organiques volatils, ou encore de particules primaires contenant de la suie, des métaux et d'autres composés. Les polluants secondaires résultent de la transformation chimique des polluants primaires. La compréhension des divers phénomènes affectant la concentration des particules fines est devenue possible grâce au développement de nombreux modèles numériques, qui sont constamment améliorés pour permettre de simuler la qualité de l'air à diverses échelles spatiales (globales, régionales, locales) et temporelles. Ces modèles représentent de façon plus ou moins détaillée les processus physico-chimiques de l'atmosphère et calculent l'évolution spatiale et temporelle de la concentration des polluants considérés. La météorologie affecte les concentrations de $PM_{2.5}$ par son influence sur les émissions, la dispersion, la transformation chimique et les dépôts des polluants qui les composent ou mènent à leur formation. Il est par conséquent pertinent d'étudier l'impact de l'évolution climatique sur les concentrations de ces polluants.

Chapitre 1

Introduction

Sommaire

1.1 Le climat 17

1.1.1 La machine climatique 18

1.1.2 Histoire du climat 23

1.1.3 Le changement climatique 26

1.2 Les particules atmosphériques 30

1.2.1 Origine et composition chimique des particules 30

1.2.2 Impacts des particules 31

1.2.3 Règlementation des particules 32

1.3 Météorologie et concentrations de $PM_{2.5}$: état de l'art 34

1.3.1 Météorologie et concentrations de $\mathbf{PM_{2.5}}$ pour le climat présent 35

1.3.2 Réponse des $\mathbf{PM_{2.5}}$ et de ses composants au changement climatique 37

1.4 Objectifs et plan de la thèse 40

Ce premier chapitre a pour objectif de présenter le climat, les particules atmosphériques, ainsi que l'état de l'art des liens entre changement climatique et concentrations de particules fines. Nous introduisons ici des notions générales permettant d'appréhender au mieux le contexte de cette thèse.

1.1 Le climat

Le terme "climat" est dérivé du mot latin *clima*, provenant lui-même du grec *klima*, qui désigne l'inclinaison de la Terre par rapport au Soleil. L'origine du mot fait référence aux premiers découpages climatiques qui ont été établis selon l'inclinaison des rayons du Soleil par rapport à l'horizon. Ce terme désigne aujourd'hui l'ensemble des phénomènes météorologiques qui caractérisent l'état moyen de l'atmosphère en un lieu donné. Dans cette section, nous décrivons tout d'abord ces différents phénomènes (Section 1.1.1), puis les variations qu'a connues le climat au cours de son histoire (Section 1.1.2), et enfin le changement climatique observé ces dernières années (Section 1.1.3).

1.1.1 La machine climatique

La machine climatique désigne l'ensemble des mécanismes qui déterminent le climat de la Terre. Nous présentons ici ces différents mécanismes en expliquant successivement d'où provient l'énergie disponible sur Terre, comment celle-ci est convertie en chaleur et redistribuée sur l'ensemble du globe par l'atmosphère et l'océan, et, enfin, ce qu'est le phénomène de l'alternance des saisons.

La machine climatique est alimentée par le rayonnement solaire. Ce dernier se propage dans l'espace de façon uniforme et s'atténue à mesure que l'on s'éloigne du Soleil. Si cette énergie était absorbée dans son intégralité par la planète, la température à la surface de la Terre augmenterait de façon continue et infinie. Toutefois, la Terre restitue de l'énergie vers l'espace, de sorte que le système Terre-Atmosphère s'équilibre à une température moyenne. Ce mécanisme s'appelle le **bilan radiatif terrestre**. Il est défini par la différence entre la partie du rayonnement incident qui est absorbée par le sol et l'atmosphère, et le rayonnement infrarouge thermique renvoyé vers l'espace.

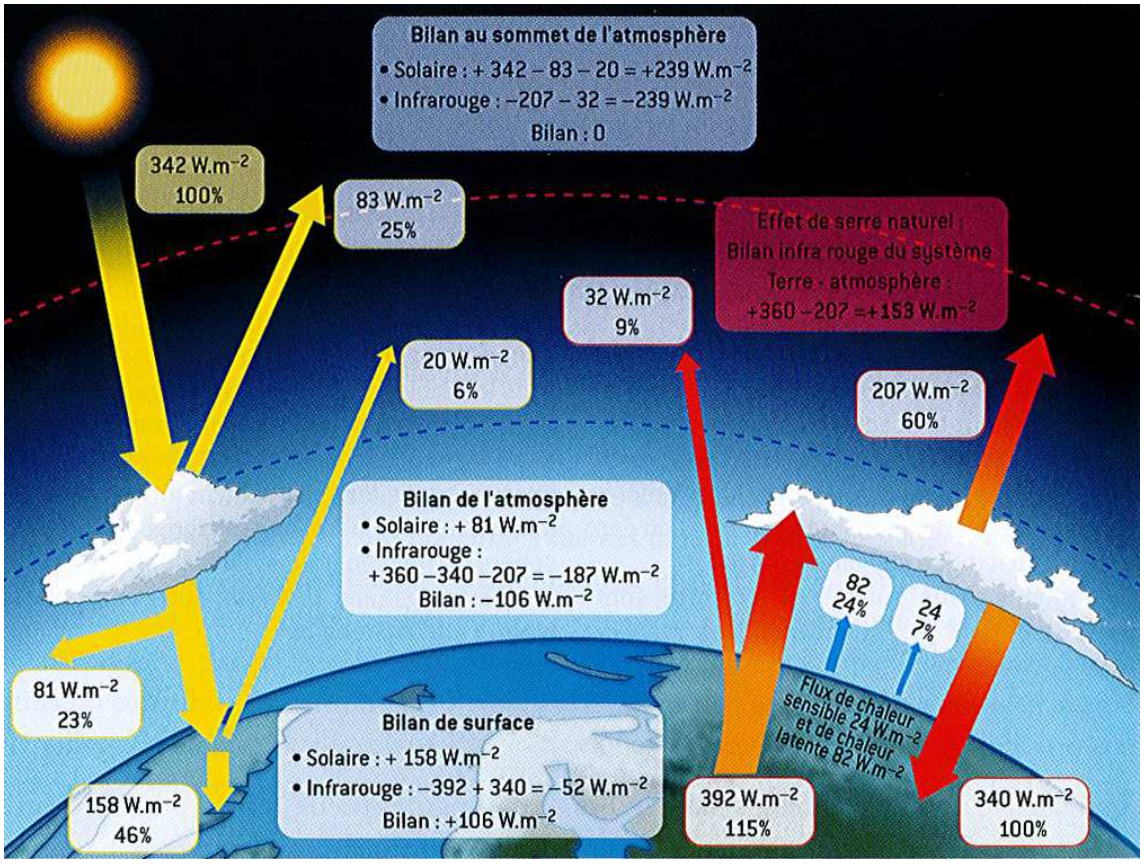


FIGURE 1.1 – Bilan radiatif global de la Terre. *Source : Delmas et al. (2007).*

Sur la Figure 1.1, le rayon solaire incident est représenté par une flèche jaune : il apporte au système Terre-Atmosphère une quantité d'énergie moyenne égale à 342 W/m^2. Une partie de ce rayonnement solaire incident est directement réfléchie en direction de l'espace par les nuages et l'atmosphère (83 W/m^2) ainsi que par la surface de la Terre (20 W/m^2). Cette partie du rayonnement ainsi réfléchie (103 W/m^2) représente 30% du rayonnement incident et définit l'albédo de la Terre. Les 70% restants (239 W/m^2) sont absorbés dans l'atmosphère par l'ozone, la vapeur d'eau, les nuages ou encore les aérosols (81 W/m^2), et par la surface de la Terre (158 W/m^2). C'est cette dernière partie du rayonnement solaire incident (158 W/m^2) qui réchauffe l'atmosphère et la surface de la Terre.

Afin de maintenir l'équilibre thermique, la Terre et l'atmosphère évacuent cette énergie en direction

de l'espace. La surface de la Terre émet ainsi 106 W/m^2 par transfert d'énergie non radiatif et 392 W/m^2 sous forme de rayons infrarouges. Une petite partie de ce rayonnement infrarouge, 32 W/m^2, s'échappe directement vers l'espace via ce que l'on appelle la "fenêtre atmosphérique". Le reste (360 W/m^2) est capté par les gaz à effet de serre présents naturellement dans l'atmosphère (vapeur d'eau, dioxyde de carbone, ...), s'ajoutant ainsi aux 106 W/m^2 précédemment cités et aux 81 W/m^2 provenant du rayonnement solaire incident. Les gaz à effet de serre émettent ensuite cette énergie sous forme de rayons infrarouges : 207 W/m^2 vers l'espace et 340 W/m^2 en direction du sol, le chauffant ainsi une deuxième fois.

Le bilan radiatif peut être établi à plusieurs niveaux (au sommet de l'atmosphère, dans l'atmosphère, à la surface de la Terre). Pour chaque niveau considéré, un flux est positif lorsqu'il correspond à un gain d'énergie (absorption), et négatif lorsqu'il correspond à une perte (émission). Au sommet de l'atmosphère, le rayonnement solaire est de $+342 - 83 - 20 = +239$ W/m^2 (342 W/m^2 reçus par le Soleil, 103 W/m^2 réfléchis vers l'espace). Le rayonnement infrarouge est de $-207 - 32 = -239$ W/m^2 (32 W/m^2 directement réémis par la surface vers l'espace via la fenêtre atmosphérique et 207 W/m^2 émis par l'atmosphère en direction de l'espace). **Le bilan des rayonnements solaire et infrarouge est donc nul au sommet de l'atmosphère**.

Au sein de l'atmosphère, le rayonnement solaire est constitué des +81 W/m^2 correspondant à la partie du rayonnement incident absorbé dans l'atmosphère. Le rayonnement infrarouge est de $+360 - 340 - 207 = -187$ W/m^2 (360 W/m^2 correspondant à l'énergie infrarouge émise par la surface, à laquelle est soustraite la partie du rayonnement qui s'échappe directement vers l'espace, 340 W/m^2 émis par l'atmosphère vers la surface et 207 W/m^2 émis par l'atmosphère vers l'espace). **Le bilan des rayonnements solaire et infrarouge dans l'atmosphère est donc de 81 + (-187) = -106 W/m^2. L'atmosphère est donc déficitaire de 106 W/m^2**.

Au niveau de la surface de la Terre, le rayonnement solaire est de +158 W/m^2 (partie du rayonnement incident absorbée par la surface) et le rayonnement infrarouge est de $-392 + 340 = -52$ W/m^2 (392 W/m^2 émis par la surface pour maintenir l'équilibre énergétique, 340 W/m^2 reçus de l'atmosphère). **Le bilan des rayonnements solaire et infrarouge à la surface est donc de +158 + (-52) = 106 W/m^2. La surface terrestre est donc excédentaire de 106 W/m^2**.

Le bilan radiatif global de la Terre est donc nul. Cependant, il existe un déséquilibre énergétique entre l'atmosphère et la surface. Ce déséquilibre (106 W/m^2) est compensé par d'autres processus n'ayant aucune origine radiative : ils font intervenir le cycle de l'eau. C'est ce que l'on appelle les flux de chaleur sensible et latente. Le flux de chaleur sensible correspond au transfert de chaleur par convection entre la surface et l'air. Le flux de chaleur sensible est donc fonction de la température de surface et augmente avec elle. Le flux de chaleur latente correspond à la quantité d'eau liquide évaporée par unité de temps, sans changement de température. La surface restitue ainsi à l'atmosphère 24 W/m^2 par conduction thermique (chaleur sensible) et 82 W/m^2 via l'évaporation de l'eau (chaleur latente). La condensation de la vapeur d'eau dans l'atmosphère, qui conduit à la formation des nuages, se traduit par la restitution de cette chaleur latente et équilibre ainsi le bilan radiatif global.

Le bilan de la seule composante infrarouge thermique due au rayonnement terrestre montre que le système Terre-Atmosphère est largement excédentaire. En effet, sur les 392 W/m^2 émis par la surface, seuls 239 W/m^2 retournent réellement dans l'espace (32 W/m^2 via la fenêtre thermique et 207 W/m^2 après absorption par l'atmosphère). La différence, $392 - 239 = 153$ W/m^2, est donc retenue dans l'atmosphère. Cet excédent d'énergie augmente ainsi la température à la surface de la Terre de 33°C par rapport à la température d'équilibre qu'elle aurait en l'absence d'atmosphère (-18°C). Ce phénomène s'appelle l'**effet de serre naturel**. Les échanges permanents entre la surface de la Terre et les gaz à effet de serre

naturellement présents dans l'atmosphère permettent ainsi à la Terre de bénéficier d'une température moyenne de 15°C et, par conséquent, de bénéficier du développement de la vie en abondance. L'effet de serre naturel constitue donc un phénomène bénéfique sans lequel la vie sur Terre telle que nous la connaissons n'aurait pas été possible.

Les mécanismes du climat ne peuvent cependant être réduits au seul bilan radiatif global détaillé précédemment. Ce dernier décrit une moyenne. Si le bilan radiatif global est nul, il ne l'est pas en un point précis du globe. La Terre étant une sphère, l'énergie qu'elle reçoit du Soleil n'est pas uniformément répartie à sa surface. Si les rayons solaires arrivant à l'équateur sont perpendiculaires à la surface, ils deviennent de plus en plus obliques à mesure que l'on s'éloigne de l'équateur vers les pôles. Donc, pour une même quantité d'énergie solaire arrivant au sol, la surface chauffée est plus petite à l'équateur qu'aux pôles (Figure 1.2). En outre, les rayons solaires parcourent une plus grande distance dans l'atmosphère au niveau des pôles qu'au niveau de l'équateur avant d'atteindre la surface et perdent donc de l'énergie : la quantité d'énergie reçue est, par exemple, deux fois plus importante à l'équateur qu'à 60° de latitude. Il revient ensuite à l'atmosphère et à l'océan d'assurer la redistribution de ces flux sur le globe.

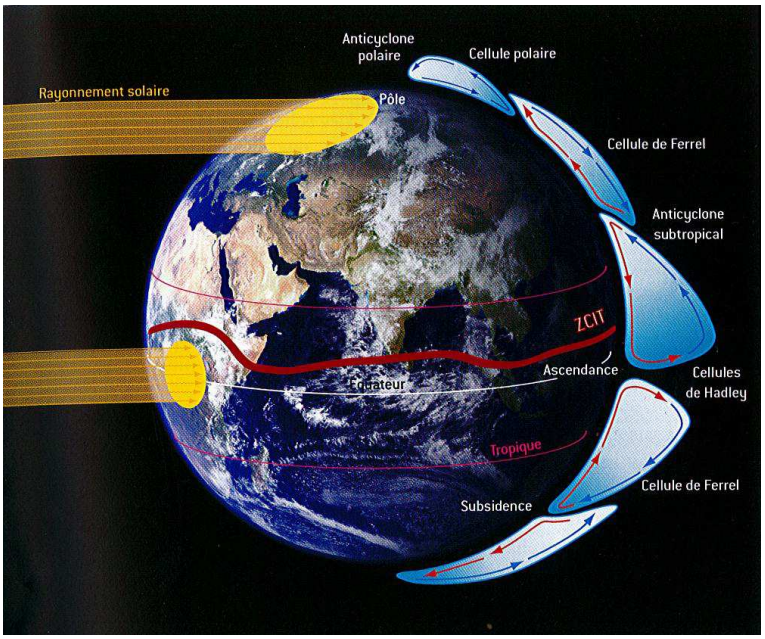


FIGURE 1.2 – Schéma simplifié de la circulation atmosphérique méridienne. *Source : Delmas et al. (2007).*

Le moteur principal des mouvements atmosphériques est le Soleil. Celui-ci réchauffe la surface de la Terre, qui à son tour réchauffe l'air ambiant. Les masses d'air se réchauffent au contact de la Terre et ont tendance à monter sous l'effet de la poussée d'Archimède car l'air chaud est moins dense que l'air froid. En s'élevant, la pression diminue, l'air chaud se refroidit donc par détente adiabatique. Il revient alors près du sol où il se réchauffe à nouveau. Cette circulation en boucles s'organise à l'échelle planétaire depuis les hautes pressions polaires vers les basses pressions équatoriales au niveau du sol, le retour se faisant en haute atmosphère. Pour chaque hémisphère, trois cellules organisées en bandes composent cette circulation. L'air chaud et humide dans les régions de basses pressions équatoriales s'élève du sol et se déplace vers les pôles de part et d'autre de l'équateur en se refroidissant. Vers 30° de latitude, cet air tropical rencontre l'air froid polaire : il redescend alors en surface vers l'équateur sous forme d'alizés. Cette cellule, appelée cellule de Hadley, transfère donc la chaleur de l'équateur vers les tropiques. Entre 30° et 60° de latitude, une cellule inverse se met en place, marquée par des vents du sud au nord (cellule de Ferrel). Plus au nord, l'air froid et dense s'écoule vers les latitudes tempérées, formant

ainsi la troisième cellule, appelée cellule polaire. La rotation terrestre (accélération de Coriolis) affecte également le déplacement de ces masses d'air. Les vents soufflant des hautes pressions vers les basses pressions sont déviés sur leur droite dans l'hémisphère Nord et sur leur gauche dans l'hémisphère Sud.

Le transfert d'énergie thermique de l'équateur vers les pôles est également assuré par l'océan. Un système de courant contre-balance l'inégale répartition de l'énergie thermique reçue en surface. Deux types de circulation océanique s'organisent : la circulation de surface et la circulation profonde. La circulation de surface est principalement déterminée par la circulation des vents et est affectée comme eux par la Force de Coriolis due à la rotation terrestre. Elle est représentée en rouge sur la Figure 1.3. La circulation profonde, ou thermohaline est induite, comme son nom l'indique, par les différences de densité, de température et de salinité des masses d'eau (en bleu sur la Figure 1.3).

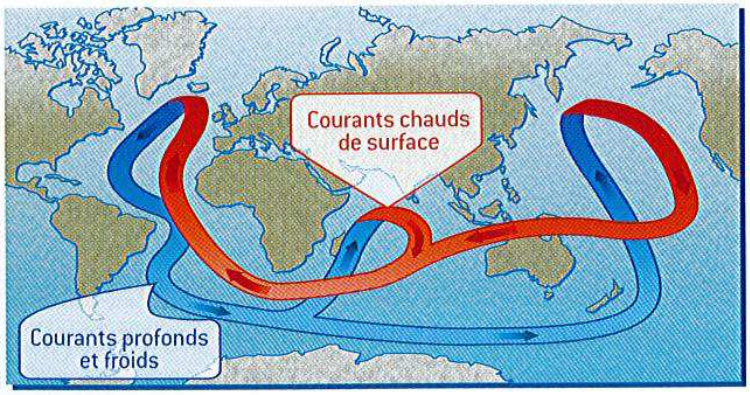


FIGURE 1.3 – Schéma simplifié de la circulation océanique globale. *Source : Delmas et al. (2007).*

Si la forme sphérique de la Terre explique les différences d'énergies reçues entre deux points du globe, elle n'explique pas à elle seule le phénomène des saisons. Celui-ci est dû également à deux autres phénomènes : la révolution de la Terre autour du Soleil et l'inclinaison de son axe de rotation par rapport au plan de l'écliptique (le plan contenant l'orbite). La Terre tourne autour du Soleil sur une orbite en forme d'ellipse, mais son excentricité est si faible qu'elle est assimilable à un cercle. La Terre effectue le tour complet de ce cercle en une année. Si l'axe de rotation nord-sud de la Terre était perpendiculaire au plan de l'écliptique, la quantité d'énergie reçue à un point donné de la Terre serait constante toute l'année. Or, son axe de rotation étant incliné d'un angle de 23.5°, appelé obliquité (ou déclinaison) de la Terre (Figure 1.4), la température en un point donné du globe n'est donc pas constante toute l'année : c'est le phénomène de l'alternance des saisons.

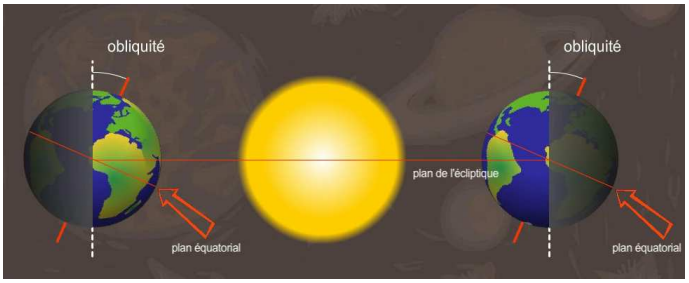
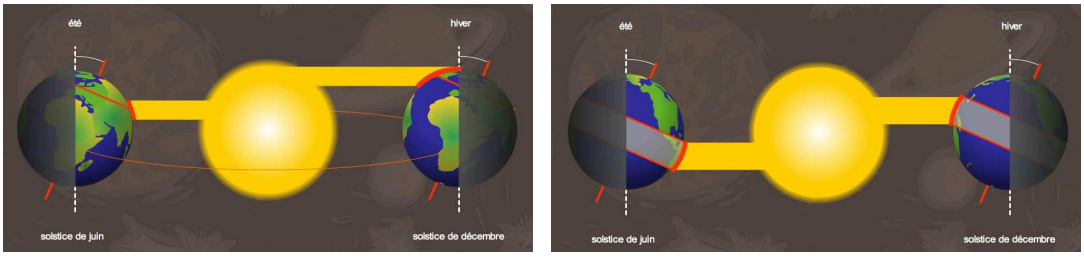


FIGURE 1.4 – Obliquité de la Terre par rapport au plan de l'écliptique. *Source : www.cnrs.fr.*

La latitude à laquelle se trouve Paris est représentée par un cercle rouge sur la Figure 1.5a. En hiver, les rayons du Soleil arrivent très inclinés au niveau de cette latitude. La quantité d'énergie reçue par unité de surface est donc faible. En été, les rayons arrivent de façon beaucoup plus perpendiculaire à la surface. La quantité d'énergie reçue par unité de surface est donc plus élevée. Dans d'autres zones du



(a) Latitude de Paris (b) Zone inter-tropicale

FIGURE 1.5 – Quantité d'énergie solaire reçue au niveau de la latitude de Paris (à gauche) et dans la zone intertropicale (à droite) en été et en hiver. *Source : www.cnrs.fr.*

globe, telle que la région entre les deux tropiques, représentée par une bande sur la Figure 1.5b, cette différence marquée n'existe pas entre hiver et été. Le soleil est toujours suffisamment proche et la Terre suffisamment peu inclinée par rapport à son orbite pour que les rayons arrivent perpendiculairement à la surface. La différence de température entre été et hiver est donc faible. Il n'y a alors souvent que deux saisons au sens climatique : une saison des pluies et une saison sèche.

La quantité d'éclairement reçue par chaque région terrestre varie donc au cours de l'année et détermine ainsi la succession des saisons, dont le cycle est inversé entre l'hémisphère Nord et l'hémisphère Sud. Le climat d'une région est alors défini par les valeurs moyennes des données météorologiques et leur variation. La classification de Wladimir Köppen, établie en 1900 puis modifiée successivement en 1918 et 1936, est l'une des plus fréquemment utilisées. Cette classification repose sur l'hypothèse que le meilleur traceur des paramètres climatiques est l'implantation naturelle de la végétation. Elle prend en compte les moyennes annuelles et mensuelles de la température et des précipitations, ainsi que la variation saisonnière de ces variables. Les températures sur Terre évoluent avec les saisons, les lieux et les moments de la journée. Elles s'échelonnent de -80°C durant la nuit polaire en Antarctique à +60°C dans certaines zones désertiques à midi en été. La pluie est, quant à elle, principalement gouvernée par la circulation atmosphérique. D'autres paramètres entrent également en compte : la répartition des océans et des continents, les circulations atmosphérique et océanique, le cycle de l'eau, la topographie.

La Figure 1.6 présente tous les climats de la Terre selon la classification de Köppen. Leurs noms se composent pour la plupart de trois lettres. La première de ces trois lettres désigne l'un des cinq grands groupes climatiques, au sein desquels il y a lieu de distinguer plusieurs sous-types, définis par le régime pluviométrique (deuxième lettre) et les variations de température (troisième lettre). Les cinq grands groupes climatiques sont les suivants :

- groupe A : tropical. La température moyenne est supérieure à 18°C et les précipitations sont fortes toute l'année ;
- groupe B : aride. Les précipitations sont très faibles toute l'année ;
- groupe C : tempéré. La température moyenne durant le mois le plus chaud est supérieure à 10°C, et est comprise entre -3°C et 18°C durant les trois mois les plus froids ;
- groupe D : continental. La température moyenne durant le mois le plus chaud est supérieure à 10°C et inférieure à -3°C durant le mois le plus froid ;
- groupe E : polaire. La température moyenne est inférieure à -3°C tout au long de l'année.

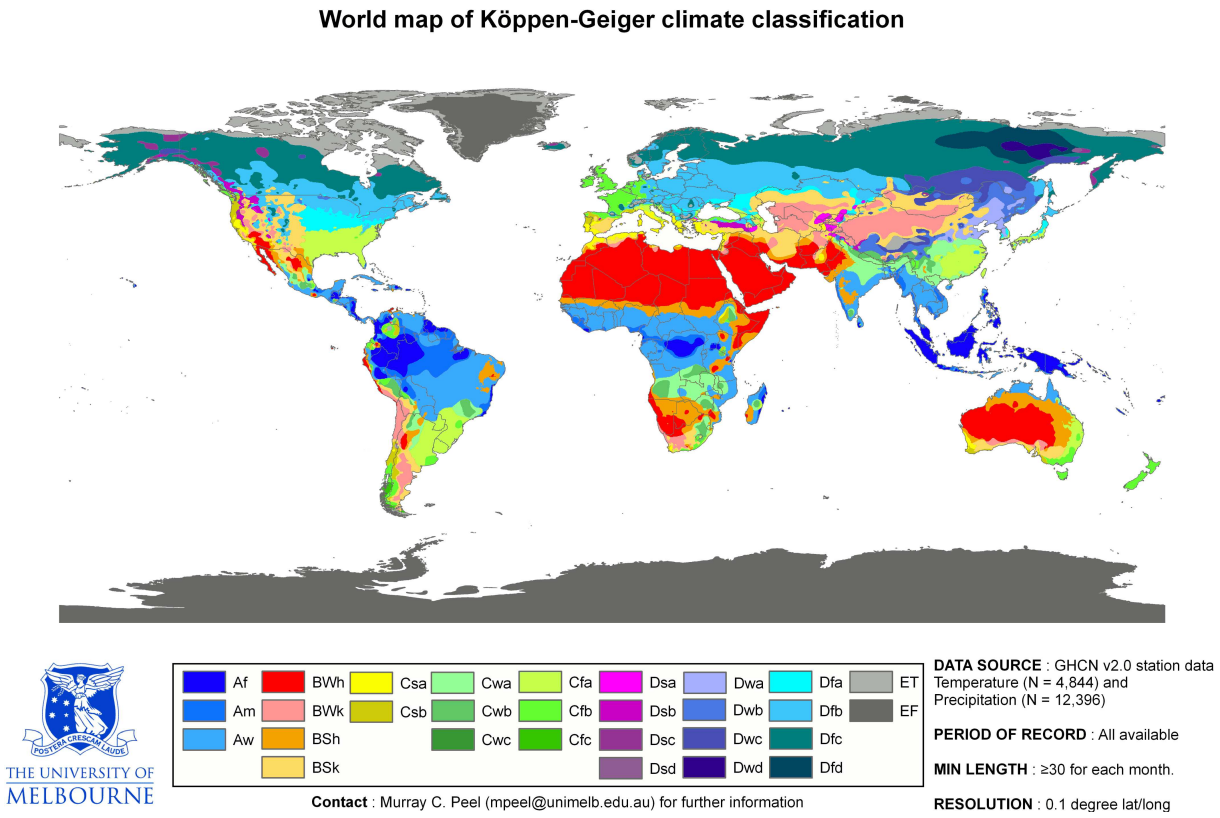


FIGURE 1.6 – Carte des climats de Köppen-Geiger (Peel et al., 2007). La première lettre du nom du climat traduit le groupe grand climatique auquel il appartient, la seconde le régime pluviométrique et la troisième les variations de température.

Le climat sur Terre résulte donc principalement de trois phénomènes : l'énergie solaire, l'effet de serre et les circulations atmosphérique et océanique. La réparation géographique et saisonnière de l'énergie solaire dépend, quant à elle, de la forme sphérique de la Terre, de sa révolution autour du Soleil, ainsi que de l'inclinaison de son axe de rotation par rapport au plan contenant son orbite. La machine climatique est en perpétuelle évolution, car tous les phénomènes que nous venons de décrire sont instables. Pour comprendre les changements climatiques dont il est question aujourd'hui, il est important d'analyser d'abord la variabilité naturelle de la Terre.

1.1.2 Histoire du climat

Depuis la formation de la Terre, il y a 4.6 milliards d'années, l'histoire de son environnement a été marquée par de profonds bouleversements géologiques. Le climat sur Terre a suivi ou accompagné ces bouleversements.

Les premières glaciations se sont produites entre -2.3 et -0.1 milliards d'années, conséquences de la dérive des continents, dont l'extension et la position sur le globe ont profondément modifié l'albédo de la Terre. Durant la glaciation du néoprotérozoïque, entre -760 et -700 millions d'années, la température sur Terre est inférieure à -50°C, causant le gel des océans et du sol sur plusieurs centaines de mètres de profondeur. Durant l'Ère secondaire, entre -245 et -65 millions d'années, la Terre connaît la période la plus chaude de son existence. C'est au cours de la période du Trias (entre -245 et -205 millions d'années), époque à laquelle la température est élevée sur tout le globe, que les mammifères et les dinosaures font leur apparition. Vers -65 millions d'années, la chute d'une météorite a entraîné

un important bouleversement du climat et de la vie sur Terre. La grande quantité de poussière injectée dans l'atmosphère par la météorite a fait écran au rayonnement solaire, causant successivement une chute brutale des températures, une baisse de 200 mètres du niveau de la mer, et la disparition de 75% des animaux terrestres et de 15% des invertébrés marins. Entre -50 millions et -3 millions d'années, la Terre se refroidit de nouveau, les températures sont très froides des latitudes moyennes aux pôles. Ces bouleversements climatiques à très longue échelle de temps sont pour la plupart une conséquence de la dérive des continents. La position des continents sur Terre modifie non seulement son albédo et par voie de conséquence son bilan radiatif, mais également la redistribution de la chaleur provenant du Soleil par les courants marins.

À plus courte échelle de temps, la variabilité du climat est attribuée à deux principaux facteurs : la variation des paramètres orbitaux de la Terre et l'activité du Soleil. Les périodes des paramètres orbitaux sont : 100 000 ans pour l'excentricité de l'écliptique, 41 000 ans pour l'obliquité de l'écliptique et 20 000 ans pour la précession des équinoxes (changement de direction de l'axe de rotation de la Terre). L'activité solaire, dont la variabilité semble s'étendre sur de larges gammes de temps, se caractérise principalement par des tâches visibles à la surface du Soleil. Des corrélations significatives ont été trouvées entre le nombre de tâches visibles et les précipitations régionales en Afrique du Sud, le changement de la mousson en Inde, la température de l'air à la surface du continent nord-américain, la température hivernale aux Pays-Bas, ... La quasi-absence de tâches solaires pendant les périodes de Spörer (1400-1510) et de Maunder (1645-1715) correspond, par ailleurs, à une avancée des glaciers dans l'hémisphère Nord.

La composition chimique des atmosphères passées, déduite de l'analyse des inclusions d'air dans les calottes glaciaires, est un traceur des évolutions climatiques. Le forage réalisé à la station russe de Vostok en Antarctique dans les années 1980, dont les résultats des analyses sont un classique de la littérature scientifique (Barnola et al., 1987), est l'un des plus célèbres. Les résultats montrent notamment qu'il existe une corrélation entre les teneurs en dioxyde de carbone (CO_2) et méthane (CH_4), et les grands changements climatiques passés. Durant chaque transition glaciaire-interglaciaire (période de réchauffement climatique), les concentrations de CO_2 passent de 180 à 280-330 ppmv (10^{-6} mole/mole d'air) et celles du CH_4 de 320-350 à 650-770 ppbv (10^{-9} mole/mole d'air). Cependant, l'interprétation de ces variations n'est pas chose aisée : une différence dans la réponse du CO_2 par rapport à celle du CH_4 apparaît systématiquement durant les quatre transitions glaciaires-interglaciaires observées. Le CO_2 augmente régulièrement avec la température pendant toute la transition, alors que le CH_4 augmente durant la première moitié de la même manière, puis beaucoup plus rapidement durant la seconde moitié. Ces résultats sont également visibles dans les analyses du forage Epica (Augustin et al., 2004), plus récent, également réalisé en Antarctique.

À notre échelle de temps, trois facteurs peuvent changer le climat : les éruptions volcaniques, les moussons et les variations cycliques de la pression atmosphérique. Lors d'une éruption volcanique explosive, beaucoup de dioxyde de soufre (SO_2) et de poussières peuvent être injectées dans l'atmosphère jusque dans la stratosphère (20 à 50 km d'altitude), où le nuage de poussières s'étale alors en nappe. Le SO_2 est oxydé dans l'atmosphère en acide sulfurique (H_2SO_4), qui est présent sous forme de particules. Ces particules solides et liquides réfléchissent la lumière du Soleil et la température peut alors baisser de 0.1°C à 1°C car la surface de la Terre reçoit 5 à 10% d'énergie en moins. Un tel effet peut durer deux à trois ans selon l'importance de l'éruption et se propage depuis les tropiques jusqu'aux latitudes moyennes. L'éruption du volcan indonésien le Tambora, le 10 avril 1815, a éjecté 200 millions de tonnes de souffre dans la stratosphère et a entraîné l'absence d'été en Europe et en Amérique du Nord l'année suivante. À titre de comparaison, l'éruption du volcan philippin Pinatubo, qui est la plus grosse éruption volcanique du 20ème siècle, a rejeté 20 millions de tonnes de souffre (Bluth et al., 1992).

La mousson est un phénomène météorologique associé au déplacement en latitude de la zone de convergence intertropicale (ZCIT), qui provoque une modification des flux d'air sur les zones continentales. Au printemps et en été, quand l'hémisphère Nord se réchauffe, la ZCIT remonte vers le nord, les vents du sud-est traversent l'équateur et apportent des masses d'air humide sur les continents, entraînant ainsi de fortes précipitations. Un tel phénomène est amplifié sur le continent indien car les masses d'air chargées d'humidité sont bloquées par la chaîne himalayenne. L'intensité de la mousson est conditionnée notamment par la température de surface de l'océan, mais sa variabilité reste encore mal comprise.

Les variations cycliques de la pression atmosphérique conditionnent le climat sur diverses régions du globe. Dans les zones tropicales de l'océan Pacifique, l'ENSO (El Niño Southern Oscillation) est le phénomène qui constitue un des plus forts signaux climatiques actuels. Les deux phases de l'ENSO, El Niño et la Niña, exercent principalement leur influence sur l'Afrique, l'Australie, l'Asie du Sud et l'Amérique. El Niño peut notamment avoir des incidences climatiques très fortes sur ces régions (inondations violentes, sécheresses extrêmes).

Le nord de l'océan Atlantique est, lui, affecté par un autre phénomène climatique : la NAO (North Atlantic Oscillation). Celui-ci se caractérise par un va-et-vient des masses d'air entre les régions arctique et islandaise d'une part, et la ceinture subtropicale au voisinage des Açores d'autre part. Il est piloté par deux centres d'action : les dépressions d'Islande et de Sibérie d'une part, et l'anticyclone des Açores d'autre part. Les différences de pression au sol entre ces deux centres entraînent des changements périodiques dans les conditions atmosphériques en Europe et dans l'Atlantique Nord (voir Chapitre 2).

Enfin, l'Arctique connaît également une oscillation, appelée AO (Arctic Oscillation), dont les caractéristiques sont à peu près les mêmes que celle de la NAO, mais dont l'influence s'étend à tout l'hémisphère Nord.

D'autres variations cycliques conditionnent le climat et peuvent même moduler le réchauffement climatique d'origine anthropique, en particulier aux échelles régionales. Il s'agit notamment des Oscillations Multi-décennale de l'Atlantique (notée AMO, pour Atlantic Multidecadal Oscillation) et Décennale du Pacifique (notée PDO, pour Pacific Decadal Oscillation).

L'Oscillation Multi-décennale de l'Atlantique se caractérise par des variations de température à la surface de la mer (notée SST pour Sea Surface Temperature) sur des périodes de 50 à 70 ans, avec une anomalie positive sur environ 40 ans, puis une anomalie négative sur environ 20 ans. Ces deux phases ont chacune des effets sur le climat en Europe et en Amérique du Nord (Knight et al., 2006). Durant les périodes où l'anomalie de SST est positive, la circulation océanique est plus rapide, entraînant le déplacement vers le nord des vents d'ouest des moyennes latitudes (les *westerlies*) et le réchauffement de l'océan par les alizés (rétroaction), favorisant ainsi la formation des cyclones sur l'Atlantique Nord. Cette relation entre AMO et cyclones, bien qu'observée, est toutefois encore remise en question. Sur le continent nord-américain, cette phase positive de l'AMO se caractérise par des précipitations moins importantes. Les plus grandes sécheresses survenues sur le continent américain, notamment celle du Midwest au milieu des années 1950 se sont produites durant la phase positive de l'AMO. Il en est de même pour le *Dust Bowl*, nom donné à la série de tempêtes de poussières qui ont sévi dans les régions des Grandes Plaines aux États-Unis et au Canada dans les années 1930 (Enfield et al., 2001). À l'inverse, la Floride voit ses précipitations augmenter durant cette phase.

L'Oscillation Décennale du Pacifique est également une variation cyclique de la SST sur une période de plusieurs décennies, typiquement 20 à 30 ans (Mantua & Hare, 2002). Elle exerce son influence sur la température et les précipitations d'hiver en Amérique du Nord, ainsi que sur les écosystèmes le long des

côtes du Pacifique. Cette influence est similaire à celle d'El Niño et de la Niña, mais est moins extrême (Latif & Barnett, 1996; Mantua et al., 1997; Minobe, 1997). La phase positive de la PDO est associée à des épisodes de sécheresse dans l'est de l'Australie et de la Russie, en Corée et au Japon, et à des épisodes de pluie intense dans le golfe d'Alaska, dans le sud-ouest du Mexique et des États-Unis, l'ouest de l'Australie, le sud-est du Brésil et le sud de l'Amérique centrale.

Le climat a ainsi connu et connaît encore de nombreuses variations, dont les causes sont différentes selon l'échelle de temps considérée. Pour une longue échelle de temps, outre l'évolution initiale de la luminosité solaire, la principale cause est la dérive des continents. À une échelle de temps plus proche de nous, la variabilité du climat est avant tout déterminée par deux grands facteurs : les variations des paramètres orbitaux de la Terre et l'activité solaire. À l'échelle d'une vie humaine, ce sont les éruptions volcaniques, la mousson et les variations cycliques de la pression atmosphérique qui peuvent changer le climat. La révolution industrielle, survenue à la fin du 18$^{\text{ème}}$ siècle, marque le début d'une nouvelle ère qui se caractérise par l'influence prédominante de l'Homme sur le système climatique. Cette nouvelle époque géologique est appelée l'Anthropocène, terme popularisé par Paul Crutzen, prix Nobel de chimie en 1995.

1.1.3 Le changement climatique

Outre les facteurs naturels de l'équilibre du climat et de sa variabilité décrits précédemment, un nouveau facteur intervient dorénavant dans l'équilibre climatique : l'Homme. Au vu des changements climatiques observés durant la deuxième moitié du 20$^{\text{ème}}$ siècle, l'Organisation Météorologique Mondiale (OMM) et le Programme des Nations Unies pour l'Environnement (PNUE) ont créé en 1988 le Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat (GIEC). Le GIEC a pour mission d'évaluer les informations scientifiques relatives au changement climatique, d'en mesurer les conséquences environnementales et socioéconomiques, et de formuler des stratégies de parades réalistes. Depuis, celui-ci a fait paraître quatre Rapports d'évaluation (en 1990, 1995, 2001 et 2007), chacun composé des contributions de trois Groupes de Travail. Le Groupe de Travail I (WGI) étudie les principes physiques du changement climatique. Le Groupe de Travail II (WGII) se concentre sur les impacts, la vulnérabilité et l'adaptation au changement climatique. Le Groupe de Travail III (WGIII) a pour but d'étudier les moyens d'atténuer le changement climatique. Le prochain Rapport (AR5) est prévu en 2014, mais le premier volet de celui-ci, correspondant à la contribution du WGI, a été présenté à Stockholm le 27 septembre 2013. Un Résumé pour les décideurs (Alexander et al., 2013) a ainsi été récemment révélé au grand public.

Nous détaillons ici quelques aspects de ce Résumé ainsi que du quatrième et dernier Rapport du GIEC (Pachauri & Reisinger, 2007) : les changements climatiques observés et les effets constatés (Section 1.1.3.1), les causes de l'évolution du climat (Section 1.1.3.2) et, enfin, les changements climatiques projetés et les effets attendus (Section 1.1.3.3).

1.1.3.1 Les changements climatiques observés et les effets constatés

Les changements climatiques suivants ont d'ores et déjà été recensés par l'OMM. Les trois dernières décennies ont successivement été les plus chaudes depuis 1850, date à laquelle ont débuté les relevés de température à la surface du globe. Dans l'hémisphère Nord, ces trois décennies auraient même été les plus chaudes depuis 1400 ans (*degré de confiance moyen*, i.e., $p > 0.5$). Le Résumé du WGI pour les décideurs (Alexander et al., 2013) précise que l'augmentation linéaire de la température de surface

(terre et océan) pour la période 1880-2012 est de 0.85 [0.65-1.06]°C (i.e., 0.85 est la meilleure estimation de cette tendance et il y a 90% de chances que la valeur soit comprise entre 0.65 et 1.06). De plus, les températures ont augmenté partout dans le monde et particulièrement aux latitudes élevées de l'hémisphère Nord (voir Figure 1.7). Ce Résumé précise également que sur l'ensemble de la planète, l'élévation du niveau de la mer concorde avec ce réchauffement. Il est *très probable* ($p > 0.9$) que cette élévation ait été respectivement de 1.7 [1.5-1.9] mm/an entre 1901 et 2010, de 2.0 [1.7-2.3] mm/an entre 1971 et 2010, et de 3.2 [2.8-3.6] mm/an entre 1993 et 2010. Un recul de l'étendue des zones couvertes de neige et de glace est également observé ces dernières années : de 3.5 à 4.1% de moins par décennie dans l'océan Arctique entre 1979 et 2012. Ce recul est plus marqué en été : de 9.4 à 13.6% de moins par décennie (Alexander et al., 2013). Le dernier Rapport du GIEC affirme qu'une forte hausse des précipitations a été observée dans l'est du continent Américain, le nord de l'Europe et le centre de l'Asie, tandis qu'une baisse a été observée au Sahel, en Méditerranée, en Afrique australe et dans une partie de l'Asie du Sud entre 1990 et 2005. Il précise également que 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* ($p > 0.66$) accrue (Pachauri & Reisinger, 2007).

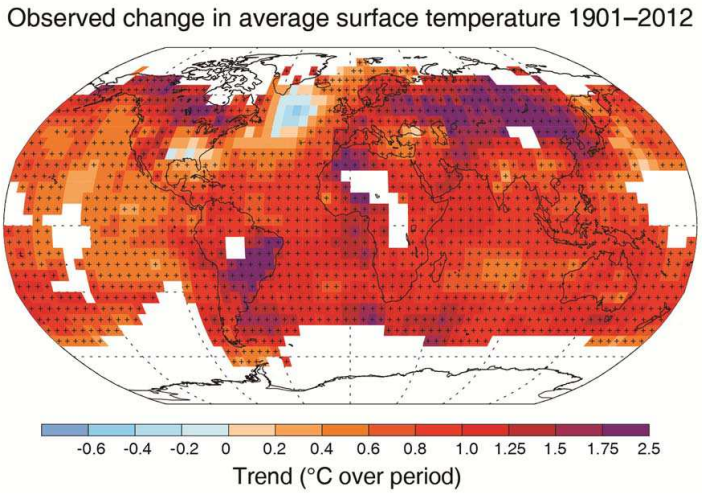


FIGURE 1.7 – Évolution de la température sur la période 1901-2012, exprimée en °C. *Source : Alexander et al. (2013).*

D'après les observations météorologiques, ces changements climatiques, et en particulier la hausse des températures, ont eu des incidences sur plusieurs systèmes naturels. Les experts affirment avec un *degré de confiance élevé* ($p > 0.8$) que certains systèmes hydrologiques ont été perturbés par l'intensification du ruissellement et la précocité des crues de printemps, conséquence de la fonte des glaciers et de la neige. Le réchauffement récent est également associé, avec un *degré de confiance très élevé* ($p > 0.9$), à la migration des espèces animales et végétales vers les pôles. La hausse de la température de l'eau est liée, avec un *degré de confiance élevé*, à la modification de sa salinité, de sa teneur en oxygène et de sa circulation. Elle est ainsi à l'origine du déplacement des aires de répartition et des variations du degré d'abondance des algues, du plancton et des poissons. Les changements climatiques régionaux commencent également à avoir des effets sur l'environnement humain (*degré de confiance moyen*), avec, par exemple, des effets sur les milieux agricole et forestier (pratiques agricoles, incendies, parasites, ...) ou encore des effets sur la santé (mortalité associée aux vagues de chaleur en Europe, allergies, maladies infectieuses, ...) (Pachauri & Reisinger, 2007).

1.1.3.2 Les causes de l'évolution récente du climat

Selon le dernier Rapport d'évaluation du GIEC (Pachauri & Reisinger, 2007), les concentrations de gaz à effet de serre (GES) dans l'atmosphère imputables aux activités humaines ont augmenté depuis l'ère industrielle. Cette hausse a notamment été de 70% entre 1970 et 2004. Plus précisément, les rejets annuels dans l'atmosphère de CO_2, le plus important gaz à effet de serre anthropique, ont progressé de plus de 80% entre 1970 et 2004 (voir Figure 1.8). Cependant, cette tendance s'est inversée à partir des années 2000. Le Rapport stipule également que les concentrations atmosphériques de CO_2 et de CH_4 se sont fortement accrues depuis 1750 (début des activités humaines). En 2005, les concentrations atmosphériques de CO_2 (379 ppmv) et de CH_4 (1774 ppbv) ont largement excédé l'intervalle de variation naturelle des 65 000 dernières années. La cause première de la hausse du CO_2 est l'utilisation de combustibles fossiles. Pour le CH_4, il est *très probable* que l'augmentation observée provienne majoritairement de l'agriculture et de l'utilisation des combustibles fossiles. Un ralentissement de cette progression a d'ailleurs été observé à partir des années 1990, concordant avec le fait que les émissions totales (anthropiques et naturelles) aient été quasi constantes durant cette période.

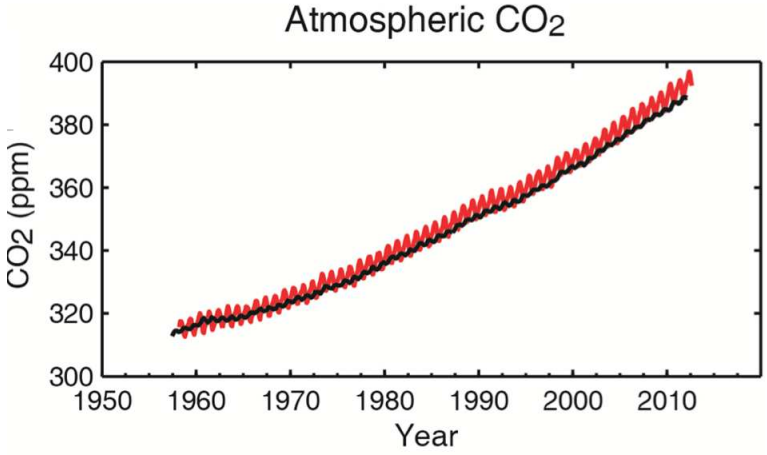


FIGURE 1.8 – Concentrations de CO_2 dans l'atmosphère depuis 1958 au pôle Sud (89.98°N, 24.8°W, en noir) et à Mauna Loa (19.53°N, 155.57°W, en rouge), exprimées en ppm. *Source : Alexander et al. (2013).*

Les experts affirment donc avec un *degré de confiance très élevé* que les activités humaines depuis 1750 ont eu pour effet net d'augmenter les températures. Il est *probable* que tous les continents, à l'exception de l'Antarctique, aient subi un réchauffement anthropique marqué depuis cinquante ans. En outre, les activités humaines ont *très probablement* contribué à l'élévation du niveau de la mer au cours de la deuxième moitié du 20ème siècle et *probablement* concouru au changement de la configuration des vents. Le fait que la variabilité naturelle puisse expliquer à elle seule ces changements est *très improbable* ($p < 0.1$). Il est cependant impossible d'imputer totalement la réaction observée des systèmes naturels au réchauffement climatique, en raison notamment de la durée insuffisante de la plupart des études d'impact et de la variabilité naturelle accrue du climat à l'échelle régionale.

1.1.3.3 Les changements climatiques projetés

Les changements climatiques présentés dans le Résumé du WGI ont été réalisés dans le cadre de l'exercice CMIP5 (*Coupled Model Intercomparison Project Phase 5*). Ce projet a utilisé une nouvelle famille de scénarios, les *Representative Concentration Pathways* (RCP), qui remplaceront dorénavant les

six scénarios (A1T, A1B, A1FI, A2, B1 et B2) présentés dans le Rapport spécial du GIEC en 2000. Tous comme leurs prédécesseurs, les scénarios RCP se basent sur des hypothèses d'émissions anthropiques au 21ème siècle. Les conséquences, en terme de forçage radiatif à l'horizon 2100 par rapport à l'année 1750, définissent les noms de ces scénarios. Ils reposent ainsi sur de nombreuses hypothèses, liées à des facteurs impliquant notamment le comportement humain et les décisions des politiques. Les principaux paramètres pris en compte sont la croissance démographique, les développements économiques et sociaux, ainsi que les choix technologiques. Cette section s'attache à décrire cette nouvelle famille de scénarios, ainsi que les changements climatiques qui leur sont associés (voir Tableau 1.1).

La famille de scénarios RCP comprend un scénario de mitigation conduisant à un très faible forçage (RCP2.6), deux scénarios de stabilisation (RCP4.5 et RCP6), et un scénario avec de très fortes émissions de gaz à effet de serre (RCP8.5). Le scénario RCP2.6 décrit un monde où le réchauffement global est limité à 2°C d'ici la fin du siècle. Pour ce faire, ce scénario prévoit une augmentation rapide du prix du carbone (\$7 par tonne de CO_2 en 2010, \$60 en 2020 et \$160 en 2050) pour encourager le développement et l'utilisation des énergies nucléaire et renouvelables (solaire, éolienne, hydraulique, géothermique, biomasse). En conséquence, les émissions de gaz à effet de serre sont réduites de 70% en 2100 par rapport à 2010, conduisant à un forçage radiatif de 2.6 W m^{-2} à la fin du siècle (van Vuuren et al., 2011). Dans le scénario RCP4.5, le forçage radiatif se stabilise à 4.5 W m^{-2} en 2100, conduisant ainsi à une augmentation moyenne de température de 1.8°C (c.f. Tableau 1.1). Sous ce scénario, la population globale atteint un maximum de plus de 9 milliards de personnes en 2065, pour ensuite décliner à environ 8.7 milliards en 2100. Ce scénario suppose également que les politiques sont déterminés à limiter le réchauffement climatique et les émissions anthropiques, notamment par l'utilisation massive des énergies renouvelables (Thomson et al., 2011). Le scénario RCP6 décrit un monde où les croissances économique et démographique entraînent une importante demande en énergie et en nourriture, conduisant ainsi à une augmentation de 26% de la surface des terres agricoles, avec des politiques de réduction d'émissions plus souples que pour les deux premiers scénarios. Au sein de ce scénario, le forçage radiatif se limite ainsi à 6 W m^{-2} (Masui et al., 2011), conduisant à une augmentation moyenne de température de 2.2 °C et à une élévation moyenne de 0.48 m du niveau de la mer (c.f. Tableau 1.1). Enfin, le scénario RCP8.5 dépeint un monde très hétérogène, où la population mondiale atteint 12 milliards en 2100. Sous la forte demande en énergie, nourriture et en l'absence de politiques de réduction des émissions anthropiques, ce scénario conduit à un forçage radiatif de 8.5 W m^{-2} à la fin du 21ème siècle (Riahi et al., 2011). Ce scénario est le plus pessimiste des scénarios de la famille RCP. L'augmentation moyenne de la température pour un tel scénario est de 3.7°C et pourrait atteindre 4.8°C. De même, si l'élévation moyenne du niveau de la mer est de 0.63 m, elle pourrait atteindre 0.82 m (c.f. Tableau 1.1).

TABLE 1.1 – Anomalies globales de température et d'élévation du niveau de la mer (valeur moyenne et intervalle d'incertitude [5-95%]), exprimées en °C et en m, pour la période 2081-2100 par rapport à 1986-2005. *Source : Alexander et al. (2013).*

Scénario	Variation de température (en °C)		Élevation du niveau de la mer (en m)	
	Moyenne	Intervalle d'incertitude	Moyenne	Intervalle d'incertitude
RCP2.6	1.0	[0.3-1.7]	0.40	[0.26-0.55]
RCP4.5	1.8	[1.1-2.6]	0.47	[0.32-0.63]
RCP6	2.2	[1.4-3.1]	0.48	[0.33-0.63]
RCP8.5	3.7	[2.6-4.8]	0.63	[0.45-0.82]

Le quatrième Rapport d'évaluation du GIEC a listé une série de changements anticipés à l'échelle régionale. Un réchauffement maximal des terres émergées et un réchauffement minimal au-dessus de

l'océan Austral et d'une partie de l'Atlantique Nord sont ainsi attendus d'ici la fin du 21ème siècle. Ces réchauffements devraient s'accompagner d'une diminution de la couverture neigeuse et de l'étendue des glaces de mer. Selon certaines projections, les eaux de l'Arctique seraient pratiquement libres de glace à la fin de l'été d'ici 2050, ce qui est d'ores et déjà l'objet de conflits entre les différents pays bordant ces eaux. Les experts affirment également qu'il est *très probable* que la fréquence des températures extrêmement élevées, des vagues de chaleur ainsi que des épisodes de fortes précipitations augmente. Enfin, il est *probable* que l'intensité des cyclones tropicaux augmente avec, cependant, une baisse de leur fréquence (Henderson-Sellers et al., 1998; McCabe et al., 2001; Webster et al., 2005; Ulbrich et al., 2009; Knutson et al., 2010; Bender et al., 2010). Ces résultats sont encore associés à de grandes incertitudes. Il est donc estimé avec un *degré de confiance élevé*, que d'ici le milieu du 21ème siècle, le débit annuel moyen des cours d'eau et la disponibilité des ressources en eau augmenteront aux hautes latitudes (et dans certaines régions tropicales humides), et qu'ils diminueront dans certaines régions sèches des latitudes moyennes et des tropiques.

Ces changements régionaux auraient donc des incidences sur divers écosystèmes (terrestres, marins et côtiers), sur les pratiques agricoles (modification de la pluviosité, faibles ressources en eau dans certaines régions), sur les basses terres littorales (élévation du niveau de la mer, risque accru d'évènements météorologiques extrêmes). En conséquence, les populations et l'état sanitaire des pays disposant d'une faible capacité d'adaptation seraient impactés. Si certaines régions seraient probablement plus sévèrement touchées que d'autres (Arctique, Afrique, les petites îles et les grands deltas asiatiques), d'autres régions, mêmes prospères, connaîtront des incidences dues au changement climatique.

En Europe, les experts s'attendent notamment à ce que les changements climatiques amplifient les disparités en matières de ressources naturelles et de moyens économiques. Un risque croissant d'inondations éclairs est à prévoir à l'intérieur des terres, de même qu'une plus grande fréquence des inondations côtières. Les régions montagneuses sont également concernées, puisqu'elles devront faire face au recul des glaciers, à la réduction de la couverture neigeuse et à la possible disparition de certaines espèces. Dans le sud, des températures élevées et des sècheresses sont attendues, entraînant, par ailleurs, un risque sanitaire pour les populations (vagues de chaleur, risques d'incendies).

1.2 Les particules atmosphériques

L'atmosphère désigne la fine couche de gaz qui enveloppe la Terre et qui permet d'y préserver la vie. Elle est principalement constituée d'azote (environ 78%), d'oxygène (environ 21%) et de vapeur d'eau (environ 0.33%), mais contient également d'autres gaz, comme par exemple certains gaz à effet de serre. En outre, l'atmosphère contient aussi des particules atmosphériques. Nous décrivons dans cette section l'origine et la composition chimique de ces particules (Section 1.2.1), leurs impacts (Section 1.2.2), ainsi que leur règlementation (Section 1.2.3).

1.2.1 Origine et composition chimique des particules

Les particules atmosphériques sont des petites particules de matière solide ou liquide, en suspension dans l'atmosphère. Elles se caractérisent par leur distribution en taille, en forme et en composition chimique. Ces particules et leurs origines peuvent ainsi être classées de plusieurs façons.

Les particules sont dites **primaires** lorsqu'elles sont directement émises dans l'atmosphère en tant que telles. Il s'agit, par exemple, des sels marins, des poussières minérales, du carbone élémentaire (ou

black carbon, noté BC), de certains composés organiques. Les particules dites **secondaires** sont formées dans l'atmosphère par des réactions chimiques qui peuvent avoir lieu en phase aqueuse, en phase gazeuse, ou de manière hétérogène à la surface des particules ou des gouttelettes. Elles comprennent notamment les particules de sulfate (formées par l'oxydation du SO_2), de nitrate (formées par l'oxydation du dioxyde d'azote, NO_2) et d'ammonium (formées par réaction et condensation de l'ammoniac, NH_3, présent dans l'atmosphère), ou encore des composés organiques (formés par l'oxydation de nombreux composés organiques volatils et semi-volatils émis dans l'atmosphère).

Les particules peuvent également être classées "spatialement" car leurs caractéristiques peuvent varier sensiblement et de façon cohérente en fonction de leur environnement : on peut parler par exemple des particules urbaines, périurbaines, continentales, désertiques, marines, volcaniques, ou encore stratosphériques. Cependant, ces distinctions ne sont pas forcément rigoureuses. En effet, la durée de vie des particules étant généralement de plusieurs jours, elles sont transportées sur de longues distances durant ce temps et peuvent donc changer d'environnement.

Elles peuvent ensuite être classées en fonction de leur source et de celle de leurs précurseurs. Parmi elles, il y a lieu de distinguer les sources **naturelles** des sources **anthropiques**. Les sources naturelles comprennent les émissions par l'océan, les sols, les volcans, les feux ou encore la végétation. Les sources anthropiques comprennent, quant à elles, la combustion des combustibles fossiles (charbon, pétrole), des biocarburants (agrocarburants, bois, déchets d'animaux), des feux de végétation provoqués par l'Homme, ainsi que des activités agricoles et industrielles.

Enfin, les particules peuvent être classées en fonction de leur taille. Elles sont alors notées PM_x, où x définit leur diamètre aérodynamique maximal en μm. On distingue notamment : les particules ultrafines, ou nanoparticules ($PM_{0.1}$), les particules très fines ($PM_{1.0}$), les particules fines ($PM_{2.5}$), et les PM_{10}, qui regroupent les particules fines et une partie des particules grossières ; certaines particules grossières pouvant avoir un diamètre aérodynamique supérieur à 10 μm. Les particules primaires sont principalement grossières, tandis que les les particules secondaires sont principalement fines. Ce sont ces dernières qui, en raison de leur impact sur la santé publique et de leur dépendance à la météorologie, nous intéresseront particulièrement dans le cadre de cette thèse.

La composition chimique des particules dépend de leur environnement. Par exemple, à la station de fond urbaine de Villemomble, située dans la petite couronne de la région parisienne, les $PM_{2.5}$ sont composées de sels marins (3%), sulfate (13%), nitrate (19%), ammonium (10%), matière organique (39%), carbone élémentaire (BC, 8%), particules minérales (3%), autres ions (1%), les 4% restant étant non déterminés (Airparif, 2011).

1.2.2 Impacts des particules

Les particules atmosphériques ont des impacts sur la visibilité, la détérioration du bâti, le climat et la santé.

La dégradation de la visibilité peut être perçue comme un indicateur de la mauvaise qualité de l'air. Cette baisse de la visibilité (ou de la portée visuelle) est due à la capacité des particules fines à diffuser le rayonnement lumineux et à certains composants des particules (notamment le BC) à l'absorber. La distinction des objets distants deviens ainsi plus difficile.

L'impact du dépôt des particules sur le bâti se traduit par l'apparition de salissures, qui détériorent à la fois l'aspect esthétique des bâtiments et leur solidité.

Les particules ont également des effets sur le climat. En premier lieu, elles ont la capacité de diffuser et d'absorber le rayonnement solaire. La diffusion du rayonnement solaire vers l'espace cause un refroidissement du système climatique, tandis que l'absorption du rayonnement solaire s'accompagne d'un réchauffement dans la couche des aérosols. C'est l'effet **direct** des particules. L'éruption du volcan Pinatubo en 1993 est un bon exemple de de cet effet. En effet, l'éruption a entraîné l'injection dans l'air de 20 millions de tonnes de SO_2, qui ont réagi avec l'eau pour former de l'acide sulfurique dans les mois qui suivirent l'éruption. Cet acide sulfurique a absorbé et réfléchi le rayonnement solaire. L'absorption a entraîné un réchauffement accru des températures dans la stratosphère. La réflexion du rayonnement solaire a engendré une diminution de la luminosité de l'ordre de 10% à la surface de la Terre, causant un refroidissement à l'échelle mondiale de l'ordre de 0.4°C (Self et al., 1996). Des études récentes ont également montré que les aérosols organiques sont aussi une source importante d'absorption du rayonnement solaire. La fraction des aérosols organiques responsable de cette absorption est appelée brown carbon en raison de sa couleur. Elle est formée via différentes sources (bioaérosols, matière organique du sol, combustion).

L'absorption du rayonnement solaire modifie le profil vertical de la température, ce qui a un impact sur l'humidité relative, la stabilité de l'atmosphère et donc sur la formation des nuages. C'est l'effet **semi-direct** des particules.

Enfin, les particules peuvent servir de noyaux de condensation dans les nuages d'eau liquide. Ils contrôlent donc en partie les propriétés physiques et optiques des nuages. Les particules influencent donc la distribution granulométrique des gouttelettes des nuages et, par conséquent, les propriétés radiatives et la durée de vie de ces nuages. D'une part, un accroissement de la concentration en particules peut engendrer un accroissement de la concentration en noyaux de condensation. Cela entraîne l'accroissement du nombre de gouttelettes d'eau nuageuse, conduisant ainsi à la réduction de la taille des gouttelettes et à l'augmentation de la réflexivité des nuages. Cet effet engendre un refroidissement du système climatique. D'autre part, la modification des propriétés microphysiques des nuages peut entraîner une dynamique différente dans la génération de pluie par le nuage, ainsi que des différences dans l'évolution et la durée de vie du nuage. Ce sont les effets **indirects** des particules.

Selon le GIEC, ces effets direct et indirect auraient tendance à refroidir le climat, malgré l'absorption du rayonnement par les particules carbonées. Paul Crutzen a ainsi proposé d'injecter du SO_2 dans l'atmosphère pour former des particules de sulfate afin de refroidir le système climatique.

Néanmoins, l'impact des particules sur le climat reste très incertain. Il est donc nécessaire d'améliorer les connaissances sur la composition des particules et leurs propriétés radiatives afin d'améliorer notre connaissance sur leur effet concernant l'évolution du climat.

Enfin, les particules ont un impact sur la santé, que nous détaillons dans la section suivante.

1.2.3 Règlementation des particules

L'effet des particules sur la santé varie selon leur taille et peut-être aussi selon d'autres facteurs tels que leur composition chimique. Les particules dont le diamètre est supérieur à 10 μm ont peu de chance de pénétrer dans le système respiratoire ; elles sont retenues par les voies aériennes supérieures (nez, bouche). En revanche, les PM_{10} peuvent atteindre la trachée et les bronches. Les particules les plus dangereuses pour la santé publique sont les particules fines $PM_{2.5}$ qui, en raison de leur faible diamètre aérodynamique, peuvent s'introduire plus profondément dans le système respiratoire, jusque dans les cavités alvéolaires des poumons. Certaines pourraient même atteindre la circulation sanguine. Une

exposition à ces particules risque d'entraîner des problèmes respiratoires et cardiaques. En effet, une exposition aux $PM_{2.5}$ sur le court terme peut aggraver des maladies du poumon, engendrant ainsi asthme et bronchites. En outre, ces particules sont susceptibles d'augmenter les infections respiratoires, ainsi que les crises cardiaques et les arythmies chez les personnes sujettes à de tels problèmes. Une exposition sur le long terme risque, quant à elle, d'engendrer la réduction des fonctions pulmonaires, le développement de bronchites chroniques, et des morts prématurées. Par conséquent, les concentrations en masse des PM_{10} et $PM_{2.5}$ sont réglementées au Mexique, aux États-Unis, au Canada et en Europe depuis respectivement 1993, 1997, 1998 et 2008.

L'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) recommande que les concentrations annuelles de particules n'excèdent pas 20 μg m^{-3} pour les PM_{10} et 10 μg m^{-3} pour les $PM_{2.5}$, et que les concentrations journalières ne dépassent pas plus de 3 jours par an 50 μg m^{-3} pour les PM_{10} et 25 μg m^{-3} pour les $PM_{2.5}$.

TABLE 1.2 – Concentrations annuelles de $PM_{2.5}$ (en μg m^{-3}) et gain d'espérance de vie (en mois) pour une personne de 30 ans et plus si la recommandation de l'OMS (concentration annuelle de $PM_{2.5}$ inférieure à 10 μg m^{-3}) était respectée sur 25 des plus grandes villes européennes. *Source : Pascal et al. (2013).*

Villes	Concentrations annuelles des $PM_{2.5}$	Gains d'espérance de vie
Bucarest	38.2	22.1
Budapest	33.7	19.3
Ljubljana	29.4	14.5
Athènes	29.4	12.8
Barcelone	27.0	13.7
Valence	23.0	9.9
Séville	22.9	10.2
Vienne	21.6	9.3
Grenade	21.4	9.3
Rome	20.9	11.6
Bruxelles	19.0	7.0
Marseille	18.5	7.5
Lille	16.6	5.8
Strasbourg	16.6	5.7
Lyon	16.5	5.7
Paris	16.4	5.8
Bordeaux	15.7	5.0
Bilbao	15.7	4.9
Rouen	15.3	4.6
Le Havre	14.5	4.2
Toulouse	14.2	3.6
Londres	13.1	2.5
Malaga	12.8	2.2
Dublin	10.5	0.4
Stockholm	**9.4**	**0**

Afin de mieux comprendre la menace que représentent ces particules et de favoriser la planification ainsi que la mise en œuvre de mesures de protection de la santé publique, le projet Aphekom (Pascal et al., 2013) a rassemblé de juillet 2008 à mars 2011 plus de 60 chercheurs qui ont évalué l'impact sanitaire des $PM_{2.5}$ sur l'espérance de vie des habitants de 25 grandes villes européennes (39 millions d'habitants dans 12 pays). L'étude a montré que le non-respect du seuil recommandé par l'OMS cause

près de 19 000 décès par an, dont 15 000 liés à des affections cardio-vasculaires. Sur les 25 villes européennes étudiées (stations de fond), seule Stockholm (moyenne annuelle de 9.4 μg m^{-3}) respecte le seuil recommandé par l'OMS (Tableau 1.2). La ville où la concentration annuelle en $PM_{2.5}$ est la plus élevée est Bucarest, en Roumanie (38.2 μg m^{-3}). En France, aucune des villes étudiées ne respecte la norme OMS. Toulouse obtient le meilleur résultat (14.2 μg m^{-3}) et Marseille le plus mauvais (18.5 μg m^{-3}). Bordeaux, Lyon, Lille et Paris ont des concentrations annuelles proches (15.5 μg m^{-3}).

Cette étude a également estimé le gain potentiel d'espérance de vie pour une personne exposée âgée de 30 ans et plus, dans l'hypothèse où le seuil recommandé par l'OMS était respecté. Des données ont d'abord été utilisées afin d'estimer, sur une période donnée de m années, le nombre de décès ${}_nD_m$ au sein de la tranche d'âge $[n;n+5]$ de la population exposée (cas de référence). Le nombre de décès conséquent à une diminution Δx des concentrations de $PM_{2.5}$ est estimé par ${}_nD_m^{\text{impacted}} = {}_n\,D_m\,e^{\beta\Delta x}$, où β est le coefficient de réponse du polluant, calculé en fonction du risque relatif R qu'il présente par tranche de 10 μg m^{-3} $\big(\beta = 0.1 \times \ln(R)\big)$. La nouvelle espérance de vie pour chaque tranche d'âge est ensuite calculée en utilisant une table de mortalité et comparée avec celle du cas de référence. Si le seuil OMS était respecté, l'espérance de vie pour une personne âgée de 30 ans et plus pourrait alors être augmentée respectivement de 22.1 mois, 7.5 mois et 3.6 mois à Bucarest, Marseille et Toulouse. En France, plus de 3 000 décès prématurés et plus de 1 000 hospitalisations pourraient également être évités chaque année.

L'Union Européenne, via sa directive 2008/50/CE, impose de ramener les concentrations annuelles de $PM_{2.5}$ en-dessous de 25 μg m^{-3} d'ici 2015, et en-dessous de 20 μg m^{-3} d'ici 2020. De telles politiques de réduction d'émissions sont difficiles à mettre en œuvre car les particules sont formées de nombreux composés chimiques dont l'évolution des concentrations est dictée par des phénomènes physiques et chimiques complexes.

1.3 Météorologie et concentrations de $PM_{2.5}$: état de l'art

Nous avons vu dans la section précédente que les particules fines sont un des polluants les plus dangereux pour la santé publique et qu'elles font l'objet de règlementations en Europe et en Amérique du Nord. Cependant, ces politiques de réduction d'émissions de ces particules sont difficiles à mettre en œuvre car les particules sont formées de nombreux composés chimiques, qui répondent chacun à des phénomènes physiques et chimiques complexes. En particulier, les variables météorologiques influencent des facteurs tels que les émissions de polluants, la cinétique chimique, l'équilibre gaz/particules, le lessivage des polluants, les périodes de stagnation, le transport à longue distance, qui affectent à leur tour les concentrations de ces particules. Les effets de ces variables météorologiques sont complexes car certains conduiraient plutôt à une augmentation des concentrations de $PM_{2.5}$, tandis que d'autres mèneraient plutôt à leur diminution. L'évolution du climat, conséquence du réchauffement global, va avoir un impact sur ces variables météorologiques et a fortiori sur les concentrations de $PM_{2.5}$.

Cette section propose donc un état de l'art des études effectuées sur les liens entre les variables météorologiques et les concentrations de $PM_{2.5}$ (Section 1.3.1), ainsi que sur la réponse des $PM_{2.5}$ au changement climatique (Section 1.3.2).

1.3.1 Météorologie et concentrations de $PM_{2.5}$ pour le climat présent

Avant d'étudier l'impact du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$, il est important d'identifier les variables météorologiques dont les perturbations affectent le plus les concentrations de $PM_{2.5}$ ainsi que celles de ses principaux composants. Nous détaillons ici les diverses approches utilisées dans la littérature et les principaux résultats mis en avant.

Dawson et al. (2007) ont étudié la sensibilité des $PM_{2.5}$ à diverses variables météorologiques dans l'est des États-Unis selon une approche modélisatrice. La température, la vitesse du vent, les précipitations, la hauteur de la couche de mélange, la couverture nuageuse et l'humidité absolue ont individuellement été perturbées sur les périodes de juillet 2001 et janvier 2002. La réponse des $PM_{2.5}$ et de ses composants à ces perturbations a été étudiée au cas par cas.

En réponse aux perturbations de la variable température (+0.5, +1, +1.5, +2.5, +4 et +5 K), les concentrations de $PM_{2.5}$ diminuent de 2.9 % K^{-1} en janvier. En janvier, la diminution des concentrations de $PM_{2.5}$ est principalement dominée par celle du nitrate (-19 % K^{-1}), qui se volatilise à des températures plus élevées. En juillet, les concentrations de $PM_{2.5}$ diminuent également mais de façon plus atténuée (0.23 % K^{-1}). Ceci est dû au fait que les températures élevées en été entraînent à la fois la volatilisation du nitrate et des composés organiques, et à la fois une augmentation des concentrations de sulfate (1.3 % K^{-1}) grâce à une oxydation plus rapide du SO_2. De plus, les concentrations de nitrate sont plus faibles en été qu'en hiver.

Les différentes perturbations du vent (-5, +5 et +10 %) affectent l'ensemble des composants des $PM_{2.5}$; une augmentation de la vitesse du vent conduit généralement à une plus forte dispersion des $PM_{2.5}$ et donc des concentrations plus faibles. À l'inverse, une diminution de la vitesse du vent favorise l'accumulation des particules dans l'atmosphère et donc des concentrations plus élevées de $PM_{2.5}$.

Perturber l'humidité absolue (-5, +5, +10 et +20 %) influence principalement les concentrations de nitrate et d'ammonium. Leurs concentrations augmentent avec l'humidité absolue qui favorise le transfert de l'acide nitrique et de l'ammoniac vers la forme particulaire, conduisant ainsi à une augmentation des concentrations de nitrate d'ammonium. Cet effet est plus marqué en juillet qu'en janvier : les concentrations de $PM_{2.5}$ augmentent de 0.24 %$\%^{-1}$ en janvier contre 0.29 %$\%^{-1}$ en juillet.

Changer la hauteur de la couche de mélange, qui varie initialement de quelques centaines de mètres à quelques kilomètres, affecte tous les composants des $PM_{2.5}$: l'augmenter favorise notamment la dilution des espèces, ce qui entraîne la diminution des concentrations de $PM_{2.5}$ (-1.3 % $(100\ m)^{-1}$ en janvier, -3 % $(100\ m)^{-1}$ en juillet).

Perturber l'intensité des précipitations affecte également tous les composants des $PM_{2.5}$, mais cette diminution est plus marquée en juillet (-0.2 %$\%^{-1}$) qu'en janvier (-0.02 %$\%^{-1}$). En revanche, les concentrations de $PM_{2.5}$ et de ses composants sont très peu impactées par des changements dans la teneur en eau liquide dans les nuages, ou bien par des modifications de la couverture nuageuse.

Tai et al. (2010) ont étudié les corrélations entre les concentrations mesurées de $PM_{2.5}$ et les observations de huit variables météorologiques (dont la température de surface, l'humidité relative, les précipitations, la couverture nuageuse, la hauteur de géopotentiel à 850 hPa, la vitesse et la direction du vent) sur l'ensemble des États-Unis. Contrairement à ce qui a été présenté par Dawson et al. (2007), les auteurs trouvent des corrélations positives entre température et concentrations de $PM_{2.5}$, et ce particulièrement en Californie et dans le nord-est des États-Unis. Deux explications sont avancées afin de justifier ce résultat : l'augmentation des concentrations de sulfate et les conditions météorologiques associées aux fortes températures. Tout d'abord, les concentrations de sulfate augmentent sous l'ef-

fet de températures plus élevées (oxydation plus rapide du SO_2). Toutefois, ce phénomène n'est pas nécessairement l'élément qui domine l'augmentation des concentrations $PM_{2.5}$ d'après les auteurs. Ceux-ci soulignent le fait que les températures élevées sont associées aux États-Unis à des périodes de stagnation, situations favorisant l'accumulation des polluants dans l'atmosphère.

Tai et al. (2010) trouvent des corrélations de signes différents entre le nitrate et la température selon la région observée : elle est positive sur la côte ouest et dans le nord du pays, et négative sur la côte est et dans le sud. La corrélation positive contraste aussi avec d'autres études de sensibilité (notamment Dawson et al. (2007)) car il est généralement admis que le nitrate décroît sous l'effet de températures élevées à cause de la volatilisation du nitrate d'ammonium. Tai et al. (2010) expliquent cette corrélation positive par l'association des fortes températures aux périodes de stagnation, soulignant le fait que tout comme pour le sulfate, la chimie n'est pas l'élément dominant. De plus, la corrélation positive dans les Grandes Plaines pourrait aussi refléter la dépendance de la températures aux émissions de NO_x provenant de l'agriculture.

La corrélation entre la température et les concentrations de matière organique (OM) et de BC est positive sur tout le territoire américain. La corrélation température/OM sur l'année est le reflet de la corrélation observée sur les mois d'été, qui est due à l'augmentation des émissions biogéniques et aux feux de forêts. La corrélation température/BC suggère, en revanche, un rôle prépondérant de la chimie, mais cette corrélation est faible et les mesures de BC sont sujettes à de grandes erreurs.

La corrélation entre l'humidité relative et les concentrations de sulfate et nitrate est positive sur la plupart du territoire. Ceci s'explique pour le sulfate par l'oxydation du SO_2 dans les nuages, et pour le nitrate par la dépendance du nitrate d'ammonium vis-à-vis de l'humidité relative. En effet, la production de nitrate peut être déterminée par l'humidité relative dans des régions où l'ammoniac est en excès, comme par exemple dans le Midwest et les Grandes Plaines. La corrélation entre humidité relative et les concentrations de OM/BC est négative, particulièrement dans l'ouest et le sud-est. Ceci s'explique par l'association des concentrations élevées de OM/BC aux feux de forêts.

La corrélation entre les composants des $PM_{2.5}$ et le vent montre que le Midwest industrialisé est une source de sulfate pour l'ensemble du pays, et que le nitrate est généralement plus élevé dans les régions vers lesquelles ont été transportées les émissions d'ammoniac dues à l'agriculture. De même, les concentrations de OM sont élevées dans les régions vers lesquelles ont été transportées les émissions biogéniques. Des perturbations dans le vent affecteraient ainsi la distribution et la composition des $PM_{2.5}$ aux États-Unis.

En Europe, Galindo et al. (2011) ont regardé l'influence de plusieurs variables météorologiques (vitesse du vent, température, rayonnement solaire) sur les concentrations observées de $PM_{2.5}$ durant un an (d'octobre 2008 à octobre 2009) à Elche, dans le sud-est de l'Espagne, près de la Mer Méditerranée. Les résultats montrent notamment que le vent est la variable météorologique qui influence le plus les concentrations de $PM_{2.5}$ à cet endroit. La corrélation entre le vent et les concentrations de $PM_{2.5}$ est de -0.496, ce qui suggère que le rôle du vent est avant tout de disperser les particules. De forts vents sont ainsi associés à une faible pollution, tandis que des vents faibles permettent l'accumulation de pollution dans l'atmosphère. Les résultats montrent également que cette réponse diffère quelque peu lorsque ces résultats sont analysés saison par saison. En hiver, la corrélation est très fortement négative (-0.798), mais en été elle est positive (0.439). Une telle analyse est donc plus difficile à interpréter.

Ces études facilitent l'identification des divers processus chimiques et physiques qui déterminent la variabilité des concentrations de $PM_{2.5}$ et de ses composants. Toutefois, si les effets individuels des variables météorologiques sur ces polluants sont bien décrits et traduisent un certain consensus, la

réponse des $PM_{2.5}$ une fois tous ces changements additionnés n'est pas "simplement" la somme de ces effets individuels. Il est donc nécessaire d'identifier quels processus sont les plus dominants lorsque l'ensemble de ces variables est perturbé pour bien comprendre la réponse des $PM_{2.5}$ au climat actuel et, a fortiori, au changement climatique. D'autres études ont ainsi cherché à considérer le climat non pas comme un ensemble de variables météorologiques que l'on peut perturber, mais plutôt comme une succession d'états de l'atmosphère, chaque état étant associé à des conditions météorologiques locales particulières.

Thishan Dharshana et al. (2010) ont étudié les relations entre la variabilité de quelques variables météorologiques (la pression à la surface de la mer, la température et les précipitations) et les concentrations mesurées de $PM_{2.5}$ aux États-Unis. Les résultats de leur étude montrent que les fortes (resp. basses) anomalies de $PM_{2.5}$ sont formées dans le sillage de système de hautes (resp. basses) pressions, qui se propagent d'ouest en est. Les régions se situant derrière un anticyclone (resp. cyclone) qui se propage sont généralement stables (resp. instables), avec peu de vent et de précipitations (resp. beaucoup de vent et de précipitations). De telles conditions favorisent donc l'accumulation (resp. le retrait) des $PM_{2.5}$ dans cette région. Les auteurs expliquent également que le flanc ouest des systèmes anticyloniques (resp. cycloniques) se caractérise par une advection chaude (resp. froide). Les températures chaudes (resp. froides) coïncident donc spatialement avec une pollution élevée (resp. faible) en $PM_{2.5}$. Tai et al. (2012a) ont réalisé une analyse en composantes principales afin de trouver les modes météorologiques qui influencent le plus les concentrations de $PM_{2.5}$ aux États-Unis. Ils ont ainsi trouvé que 20 à 40 % des $PM_{2.5}$ observés pouvaient être expliqués grâce à une unique situation synoptique : le passage des fronts froids dans l'est américain et le flux maritime à l'ouest. Ces situations synoptiques expliquent toutes les corrélations des composants des $PM_{2.5}$ avec la température et l'humidité relative (sauf dans le sud-est). La variabilité inter-annuelle des $PM_{2.5}$ dans le Midwest est donc très corrélée avec la fréquence des cyclones.

Ménégoz et al. (2010) ont étudié les interactions en hiver entre concentrations de sulfate et de BC d'une part, et les régimes de temps (voir Chapitre 2 pour une définition plus précise) sur une période de six ans (2000-2005) sur la région Nord Atlantique, d'autre part. Les résultats montrent que les régimes de temps ont un impact sur les concentrations de sulfate et de BC. Les résultats rejoignent ceux présentés par Thishan Dharshana et al. (2010) et Tai et al. (2010). Les régimes de temps caractérisés par une situation anticyclonique sont associés à des concentrations élevées de BC et de sulfate, tandis que ceux caractérisés par une situation dépressionnaire sont associés à des concentrations plus faibles de BC et de sulfate.

1.3.2 Réponse des $PM_{2.5}$ et de ses composants au changement climatique

Jacob & Winner (2009) ont résumé les études qui ont examiné l'impact du changement climatique seul sur la qualité de l'air. Toutes ces études gardent donc constantes les émissions anthropiques entre les simulations dans le présent et dans les projections. À l'horizon 2100 selon le scénario A2, une augmentation des $PM_{2.5}$ est observée en Europe centrale (+1 $\mu g\,m^{-3}$ pour le sulfate, +0.5 à +1 $\mu g\,m^{-3}$ pour la matière organique) et dans l'est des États-Unis (+1 $\mu g\,m^{-3}$ pour le sulfate) (Liao et al., 2006; Racherla & Adams, 2006). Sous le scénario A1B, Heald et al. (2008) trouvent des concentrations de composés organiques secondaires plus élevées à l'horizon 2100 que sur la période présente dans l'est des États-Unis (+0.5 $\mu g\,m^{-3}$). À l'horizon 2050, sous le scénario A1B, les résultats divergent selon les études : Tagaris et al. (2007) trouvent une diminution de 10% des $PM_{2.5}$, Pye et al. (2009) trouvent une diminution du nitrate (jusqu'à -0.2 $\mu g\,m^{-3}$), et une réponse variable du sulfate (-0.3 à +0.3 $\mu g\,m^{-3}$) sur le territoire américain. En été, les concentrations de composés carbonés augmentent de +0.5 $\mu g\,m^{-3}$

dans l'ouest des États-Unis (Spracklen et al., 2009). Finalement, à l'horizon 2030 et sous le scénario B1, Unger et al. (2006) trouvent une augmentation du sulfate (+0.1 à +1 μg m^{-3}) dans le sud de l'Europe.

Zhang et al. (2008) ont étudié l'impact du changement climatique seul sur les concentrations de $PM_{2.5}$ en été d'après le scénario A1B. Les résultats présentent des concentrations de $PM_{2.5}$ moins élevées sur la plupart du domaine par rapport au climat présent. Elles diminuent de 0 à -8.7 μg m^{-3} (soit de 0 à -40%), en conséquence de la diminution des concentrations de sulfate (de 0 à -4.3 μg m^{-3}, i.e., de 0 à -45%) et de OM (de 0 à -1.8 μg m^{-3}, i.e., de 0 à -44%). Cependant, comme le soulignent les auteurs, ces résultats sont difficiles à interpréter puisqu'ils se fondent sur des simulations réalisées sur une petite période de temps (quelques mois). Idéalement, la période de simulation devrait être plus longue, les paramètres choisis (ne serait-ce que les années) pouvant engendrer de larges différences dans les résultats.

Dawson et al. (2009) ont également examiné l'impact du changement climatique seul sur les concentrations de $PM_{2.5}$ dans l'est des États-Unis pour les mois de janvier et juillet, en suivant les projections données par le scénario A2. En janvier, les concentrations de $PM_{2.5}$ diminuent sur la plus grande partie du domaine (de 0 à -5 μg m^{-3}) et augmentent dans le nord-est (de 0 à +3 μg m^{-3}). En moyenne sur le domaine, les concentrations diminuent de 0.3 μg m^{-3}, c'est-à-dire d'environ 5 %. Cette réponse se retrouve pour tous les composants étudiés (sulfate, nitrate, ammonium, aérosols organiques primaires et secondaires), suggérant ainsi que l'effet du climat en janvier serait plus influencé par des processus physiques que des processus chimiques. Dans les projections utilisées, les précipitations augmentent de +2 à +85 % selon les régions, ce qui contribue à relier cette augmentation au processus physique qu'est le lessivage. En juillet, les concentrations de $PM_{2.5}$ croissent sur la majeure partie du domaine (de 0 à +8 μg m^{-3}), à l'exception du nord-est des États-Unis où elles diminuent légèrement (de 0 à -2 μg m^{-3}). En moyenne sur le domaine, les concentrations augmentent de 2.5 μg m^{-3}, soit d'environ 42 %. Un tel résultat est la conséquence d'une augmentation de +1.37 μg m^{-3} (i.e., +54 %) des concentrations de sulfate, de +0.50 μg m^{-3} (i.e., +55 %) de celles d'ammonium, et de +0.54 μg m^{-3} (i.e., +38 %) de celles des aérosols organiques secondaires. Les composants des $PM_{2.5}$ répondant de manière différente en fonction des perturbations des variables météorologiques (Dawson et al., 2007), l'effet sur les concentrations de $PM_{2.5}$ n'est pas aussi direct que celui des précipitations en hiver. Les changements dans les concentrations de sulfate ont été les plus importants. Elles ont augmenté sur tout le domaine considéré. Dans le nord-est, les concentrations de nitrate ont, en revanche, diminué. Une telle diminution s'explique par la volatilisation du nitrate d'ammonium, consécutive aux températures plus élevées, mais également par une augmentation des concentrations de sulfate grâce à une oxydation plus rapide du SO_2. Sur cette région, les concentrations d'ammonium et d'aérosols organiques secondaires ont également beaucoup augmenté. L'oxydation est donc un phénomène plus important que la volatilisation.

Mahmud et al. (2010) ont étudié deux périodes de sept ans (2000-2006 et 2047-2053) sous le scénario A1B pour analyser l'impact du changement climatique seul sur les concentrations de $PM_{2.5}$ en Californie. La température de surface, l'humidité relative, le taux de précipitations et la vitesse du vent augmentent entre les deux périodes considérées, tandis que le rayonnement solaire diminue. Ceci entraîne la réduction des concentrations de $PM_{2.5}$ de -0.6 à -1.1 μg m^{-3} dans la métropole de Los Angeles. Mahmud et al. (2010) observent que la variabilité inter-annuelle des $PM_{2.5}$ dans les prédictions ont joué un plus grand rôle que les changements introduits par le climat lui-même. Les auteurs suggèrent qu'il faudrait ajouter d'autres effets à ces perturbations, tels que la couverture nuageuse due aux émissions d'aérosols, pour pouvoir prédire correctement l'impact du climat sur les concentrations de $PM_{2.5}$.

En Europe, la seule étude similaire à toutes celles décrites plus haut a été menée par Jiménez-Guerrero et al. (2012), qui se sont concentrés sur la péninsule Ibérique. Deux périodes (1991-2010 et 2071-

2100) ont été simulées sous le scénario A2 afin d'étudier l'impact du changement climatique seul sur les concentrations de divers aérosols. Jiménez-Guerrero et al. (2012) observent une réponse différente des divers aérosols face à l'augmentation de la température. Les concentrations de sulfate augmentent sur la majeure partie de la péninsule Ibérique en réponse à une augmentation de température (de 0 à +2 μg m^{-3}). Ce résultat n'est pas observé sur les côtes nord et sud sur les mois d'été (juin, juillet et août), où elles diminuent d'environ 0.5 μg m^{-3}. La réponse de l'ammonium suit celle du sulfate ; les concentrations augmentent jusqu'à 1.2 μg m^{-3}, en raison des plus nombreux épisodes de stagnation dans les projections futures. Les concentrations de nitrate diminuent, quant à elles, avec l'augmentation de la température, mais l'intensité de la réponse varie selon les saisons et reste difficile à expliciter. En outre, les concentrations des aérosols organiques primaires changent peu sous l'effet du climat futur, tandis que celles des aérosols organiques secondaires augmentent de manière plus nette. En dépit des températures plus élevées favorisant le passage des aérosols organiques secondaires en phase gazeuse, et donc la diminution de leurs concentrations, ces derniers augmentent pourtant de façon marquée. Les processus chimiques importent donc plus que la semi-volatilité des espèces.

D'autres études ont voulu comparer l'impact du changement climatique seul et l'impact du changement climatique associé aux projections des émissions anthropiques sur les concentrations de $PM_{2.5}$. Kelly et al. (2012) ont réalisé trois simulations portant chacune sur dix étés consécutifs sur le continent nord-américain. La première, considérée comme la simulation de référence, porte de 1997 à 2006. La seconde utilise des projections météorologiques du scénario A2 sur la période 2041-2050, tout en gardant les émissions anthropiques constantes, contrairement à la troisième qui a considéré les projections des émissions anthropiques du scénario RCP6 (forçage du bilan radiatif de 6 W/m^2. Dans le cas où les émissions anthropiques ont été gardées constantes, les concentrations de $PM_{2.5}$ ont augmenté entre 1997-2006 et 2041-2050 sur la plupart du domaine (de 0 à +2 μg m^{-3}), sauf dans le nord-ouest du continent où elles ont diminué de 0 à 1 μg m^{-3}. Dans le cas où les émissions suivent le scénario RCP6, les concentrations de $PM_{2.5}$ diminuent de 0 à 11 μg m^{-3} sur tout le territoire nord-américain, sauf dans le nord du Canada, et dans certaines régions de l'ouest des États-Unis où elles augmentent de 0 à +2 μg m^{-3}. Ce résultat s'explique notamment par la présence, au sein du scénario RCP6, de politiques de réduction d'émissions de polluants. Une telle analyse est cohérente avec celle de Lam et al. (2011), qui ont réalisé des simulations sur trois régions des États-Unis en adaptant les émissions futures au scénario A1B du GIEC utilisé pour la météorologie. Dans cette étude, les concentrations de $PM_{2.5}$ sont réduites de 40 à 50% grâce aux réductions opérées dans les émissions anthropiques.

Colette et al. (2013) ont étudié l'impact du changement climatique en Europe à l'horizon 2050. Les deux scénarios utilisés pour cette étude sont les deux extrêmes de la famille de scénarios RCP : RCP2.6 et RCP8.5, qui considèrent respectivement un forçage radiatif de 2.6 W/m^2 et 8.5 W/m^2. Les émissions anthropiques suivent ces scénarios et considèrent des diminutions respectives de 76% et 44% des émissions des composés primaires des $PM_{2.5}$ par rapport à la simulation historique. Les concentrations d'aérosols secondaires diminuent fortement en réponse à ces diminutions des émissions des composés primaires. Ainsi, les concentrations de $PM_{2.5}$ diminuent respectivement de 65% et de 79% pour les scénarios RCP2.6 et RCP8.5. La réduction des émissions anthropiques est responsable de respectivement 92% et 95% de cette diminution. Les auteurs précisent finalement que l'impact du climat sur les $PM_{2.5}$ reste encore incertain.

Enfin, Tai et al. (2012b) ont projeté les changements de fréquence des modes météorologiques qui influencent le plus les concentrations de $PM_{2.5}$ (Tai et al., 2010) sur le scénario A1B pour la période 2000-2050 sur les États-Unis. Les résultats montrent, d'une part, des concentrations de $PM_{2.5}$ supérieures d'environ 0.1 μg m^{-3} dans l'est comparées à la période présente (1955-2010), et, d'autre part, une diminution d'environ 0.3 μg m^{-3} des concentrations de $PM_{2.5}$ dans le nord-ouest. L'augmentation

projetée des concentrations de $PM_{2.5}$ s'explique par l'augmentation de la fréquence des conditions météorologiques favorisant une atmosphère stable dans l'est du pays. De la même manière, la diminution des concentrations des $PM_{2.5}$ est due à l'augmentation des phénomènes météorologiques associés à une augmentation du vent en provenance de la mer dans le nord-ouest du pays. Bien que cette étude se soit concentrée sur les effets des modes météorologiques, les auteurs précisent que d'autres effets potentiels du changement climatique sur les $PM_{2.5}$ peuvent venir des changements dans la température, dans les émissions biogéniques et dans les feux de forêts. Ils concluent en disant qu'il est cependant improbable que le changement climatique seul puisse affecter les concentrations de $PM_{2.5}$ de plus de 0.5 μg m^{-3} en concentration annuelle.

Les études portant sur l'impact du climat/du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$ se sont multipliées ces dernières années. Les effets individuels des variables sur les concentrations de $PM_{2.5}$ semblent avoir atteint un certain consensus auprès de la communauté scientifique, mais les résultats des diverses projections divergent. De plus, en raison de la date d'entrée en vigueur de la législation portant sur les concentrations de $PM_{2.5}$, ces études ont été majoritairement menées aux États-Unis et portent ainsi pour la plupart sur le continent nord-américain. L'impact du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$ en Europe reste donc encore peu étudié à ce jour.

1.4 Objectifs et plan de la thèse

Comme nous l'avons vu dans ce chapitre, des concentrations élevées de $PM_{2.5}$ sont à l'origine de maladies cardio-vasculaires et respiratoires. Le non-respect du seuil recommandé par l'OMS conduit, directement ou indirectement, à la mort prématurée de milliers de personnes à travers le monde chaque année, et diminue l'espérance de vie des personnes exposées de plusieurs mois à plusieurs années. Nous avons également vu que les concentrations de $PM_{2.5}$ sont très dépendantes des conditions météorologiques ; il est donc attendu qu'elles évoluent en réponse au réchauffement global que nous observons actuellement. Dans ce contexte, cette thèse se propose d'étudier de façon systématique l'effet du changement climatique sur la formation des $PM_{2.5}$ en Europe.

Le Chapitre 2 décrit les liens entre la circulation atmosphérique de grande échelle et les variables affectant le plus les concentrations de particules fines. Nous y définissons en particulier les notions de **régimes de temps** et de **types de temps**. Chaque jour de la période présente (2000-2008) et des périodes projetées (1975-2004, 2020-2049 et 2070-2099) est associé à l'une de ces classes spécifiques de jours partageant une circulation atmosphérique similaire.

Dans le Chapitre 3, nous créons, à l'aide du modèle Polyphemus/Polair3D, une base de données de concentrations de $PM_{2.5}$ à l'échelle européenne. Cette base de données est évaluée de façon opérationnelle et dynamique par comparaison avec les observations fournies par le réseau européen EMEP. Les liens entre trois variables météorologiques (température de surface, précipitations et vitesse du vent de surface) et les concentrations de $PM_{2.5}$ et de ses principaux composants inorganiques (sulfate, nitrate et ammonium) sont étudiés à diverses stations de mesures européennes, selon la disponibilité des données fournies par ces dernières.

Dans le Chapitre 4, nous proposons une méthode statistique pour estimer les concentrations de $PM_{2.5}$ en Europe à partir d'observations de $PM_{2.5}$, des types de temps et de quatre variables météorologiques de surface rigoureusement choisies (pression, température, précipitations et vitesse du vent). Cette méthode est évaluée sur une période dite d'apprentissage, puis appliquée sur une période historique (1975-2004) et deux périodes futures (2020-2049 et 2070-2099), ainsi que pour deux scénarios

de climat futur donnés par le modèle CNRM-CM5 (RCP4.5 et RCP8.5).

Le Chapitre 5 rappelle les principaux résultats de cette thèse et présente des perpectives pour des travaux futurs.

Chapitre 2

La circulation atmosphérique de grande échelle sur la région Europe-Atlantique Nord

Sommaire

2.1 Les régimes de temps . . . 43
2.1.1 Définitions . . . 44
2.1.2 Un peu de mathématiques . . . 45
2.1.3 Description . . . 50
2.1.4 Vagues de froid, canicules et régimes de temps . . . 52
2.2 Les types de temps . . . 54
2.2.1 Définition . . . 55
2.2.2 Description . . . 56
2.3 Les changements moyens sur l'Europe . . . 58
2.3.1 Les changements en termes de température . . . 58
2.3.2 Les changements en termes de précipitations . . . 59
Synthèse et perspectives . . . 61

Ce chapitre est consacré à l'étude des liens entre la circulation atmosphérique de grande échelle sur la région Europe-Atlantique Nord (notée EAN), et les différentes variables météorologiques de surface ayant un impact sur les concentrations de $PM_{2.5}$. Nous présenterons le concept des régimes de temps (Section 2.1) et des types de temps (Section 2.2), outils facilitant la description de ces liens dans les climats actuel et futur. Nous exposerons également les changements moyens projetés en Europe dans le cadre de l'exercice CMIP5 (Section 2.3).

2.1 Les régimes de temps

Nous avons vu dans le Chapitre 1 que l'Oscillation Nord-Atlantique (NAO), phénomène résultant des variations cycliques de la pression de surface, affecte le climat en Europe et sur le nord de l'Atlantique. Si les différences de pression au sol entre les deux centres d'action de la NAO orchestrent des changements périodiques dans les conditions atmosphériques, l'ensemble de la variabilité climatique de

la région Europe-Atlantique Nord (20°N-80°N, 90°W-30°E) ne peut cependant pas être expliquée par cette seule oscillation. En effet, les interactions entre ondes planétaires et synoptiques modulent la NAO et par conséquent les variables météorologiques de surface sur le continent européen. La variabilité atmosphérique sur la région EAN s'organise ainsi autour d'un certain nombre de structures spatiales préférentielles, appelées *régimes de temps* (Vautard, 1990).

Cette section est dédiée à la définition (Sections 2.1.1 et 2.1.2) de ces états préférentiels, et à la description de leurs liens avec les variables météorologiques de surface (Section 2.1.3), notamment les extrêmes de températures récemment observés (Section 2.1.4).

2.1.1 Définitions

Introduit au milieu du 20ème siècle par Rex (1950), le concept des régimes de temps repose sur le principe que le nombre d'états possibles que peut prendre l'atmosphère est, dans une certaine mesure, fini. Il n'existe pas de définition universelle des régimes de temps, mais au contraire plusieurs définitions générant chacune des structures spatiales différentes. Ces définitions se basent généralement sur l'une des trois propriétés caractéristiques des régimes de temps : la récurrence, la persistance et la quasi-stationnarité (Michelangeli et al., 1995). Dans le cas de la récurrence, les régimes de temps sont définis comme les états de l'atmosphère ayant la plus forte probabilité d'occurrence. Dans le cas de la persistance, ils sont définis comme les états associés sur une ou plusieurs régions-clés à des anomalies (par rapport à la moyenne saisonnière) pendant au moins un nombre donné de jours consécutifs. Enfin, dans le cas de la quasi-stationnarité, les régimes de temps sont définis comme les états au sein desquels la circulation atmosphérique de grande échelle est stationnaire en moyenne, au sens statistique. En d'autres termes, les régimes de temps sont les états associés, sur des périodes plus ou moins longues, à des anomalies météorologiques similaires. L'être humain les perçoit comme des groupes de jours partageant "le même temps". Ces groupes de jours sont perturbés par des fluctuations synoptiques, qui peuvent être interprétées comme des périodes de transition entre ces régimes.

Les analyses en régimes de temps possèdent de nombreux avantages. Tout d'abord, les régimes de temps permettent de caractériser certains modes dominants de la circulation atmosphérique de grande échelle (Vautard, 1990). Ensuite, ils sont un outil efficace pour décrire les liens entre circulation de grande échelle et climats régionaux (Yiou & Nogaj, 2004; Cassou et al., 2005; Cattiaux et al., 2009). Enfin, les modifications de la circulation atmosphérique pourraient s'expliquer par des modifications de fréquence d'occurrence des régimes de temps, sans que de nouveaux régimes n'apparaissent (Corti et al., 1999). Cependant, les analyses en régimes de temps possèdent également quelques limites. En premier lieu, l'hypothèse avancée par Corti et al. (1999) est encore débattue au sein de la communauté scientifique. Il est en effet possible que les liens entre régimes de temps et climat régional puissent évoluer dans le futur et/ou que des changements apparaissent au sein des régimes. En second lieu, la construction des régimes de temps dépend d'un certain nombre de paramètres (méthodologie utilisée, variable classifiée, nombre de régimes de temps considérés, choix des saisons), qui modifient les structures spatiales obtenues. Étudier la fréquence des régimes de temps et leur évolution demeure néanmoins un moyen à la fois simple et efficace de caractériser les principaux changements de circulation atmosphérique de grande échelle (Boé, 2007).

2.1.2 Un peu de mathématiques

Les régimes de temps, construits pour être représentatifs de la circulation atmosphérique de grande échelle, sont généralement déterminés à l'aide d'algorithmes de classification d'une variable témoin de cette circulation, typiquement la pression de surface ou le géopotentiel (Michelangeli et al., 1995). Nous utilisons ici la pression de surface (PSL), fournie par les réanalyses NCEP sur la période 1950-2008. L'information contenue dans un tel champ de données météorologiques est très importante et est, par conséquent, très lourde à étudier. Afin de pallier ce problème, il est nécessaire de réduire l'information contenue à quelques paramètres pour pouvoir, par la suite, extraire leurs modes de variation temporelle. Une telle opération revient à déterminer les Fonctions Orthogonales Empiriques, notées EOF pour l'anglais *Empirical Orthogonal Functions*, qui maximisent la variance du champ spatio-temporel considéré. Les EOF d'un champ peuvent être calculés soit à l'aide de sa matrice de corrélation, soit à l'aide de sa matrice de covariance. S'ils sont calculés à partir de la matrice de corrélation, les EOF permettent d'identifier les structures de même variance. S'ils sont calculés à partir de la matrice de covariance, comme nous le faisons dans cette thèse, alors ils favorisent l'étude des grandes variances.

Le champ de PSL sur la région Europe-Atlantique Nord et la période 1950-2008 peut être représenté par la matrice F de dimensions (n, p), où n est le nombre de jours de la période 1950-2008 et p le nombre de points géographiques situés dans cette région (voir Équation 2.1). Chaque colonne de la matrice F représente ainsi une série temporelle de PSL en un lieu donné. De la même façon, chaque ligne de cette matrice représente une carte de PSL un jour donné.

$$F = \begin{pmatrix} f_{1,1} & f_{1,2} & \cdots & f_{1,p} \\ f_{2,1} & f_{2,2} & \cdots & f_{2,p} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ f_{n,1} & f_{n,2} & \cdots & f_{n,p} \end{pmatrix} \tag{2.1}$$

Dans la suite, nous admettrons que le champ de PSL contient des anomalies décentrées, c'est-à-dire que la moyenne de chaque colonne de la matrice F lui a été soustraite. De plus, chaque élément de la matrice F est pondéré par le cosinus de la latitude de son lieu géographique, afin de prendre en compte la taille des mailles selon leur position par rapport à l'équateur. Le décentrage de ces anomalies permet alors de définir la matrice R de covariance de F par $R = {}^tFF$.

Chaque ligne f_i de la matrice F peut ainsi être considérée comme un point situé dans un espace de dimension p, dont les coordonnées sont $\left(f_{i,1}, f_{i,2}, \cdots, f_{i,p}\right)$. Le but de l'analyse en EOF est de trouver un nouveau système de coordonnées de dimension p, tel que chaque point de l'espace de départ (i.e., chaque ligne de F) puisse y être représenté. En d'autres termes, nous cherchons une base de vecteurs $(e_i)_{i=1,\cdots,p}$ orthonormaux qui maximisent la projection de f_i sur cette base de vecteurs. Mathématiquement parlant, le problème revient à maximiser, pour $m = 1, \cdots, p$:

$$\sum_{i=1}^{n} (e_m f_i)^2 \tag{2.2}$$

avec la contrainte d'orthonormalité sur e_m :

$${}^te_i e_j = \delta_{ij} \tag{2.3}$$

Soit $m \in [\![1,p]\!]$, et soit $i \in [\![1,n]\!]$ quelconque mais fixé. Par calcul, nous obtenons :

$$e_m \times f_i = \sum_{j=1}^{p} (e_m)_j \times f_{i,j}.$$

La fonction à maximiser peut donc être exprimée de la façon suivante :

$$\sum_{i=1}^{n} (e_m f_i)^2 = \sum_{i=1}^{n} \left(\sum_{j=1}^{p} (e_m)_j \times f_{i,j} \right)^2.$$

Remarquons maintenant que $e_m\,{}^tF$ et $F\,{}^te_m$ sont deux vecteurs de dimension n, dont les i-ème composantes sont égales à :

$$(e_m\,{}^tF)_i = \sum_{j=1}^{p} (e_m)_j \times ({}^tf)_{j,i} = \sum_{j=1}^{p} (e_m)_j \times f_{i,j}$$

et :

$$(F\,{}^te_m)_i = \sum_{j=1}^{p} f_{i,j} \times (e_m)_j.$$

Ainsi, $e_m\,{}^tFF\,{}^te_m$ est égal à :

$$e_m\,{}^tFF\,{}^te_m = \sum_{i=1}^{n} \left((e_m\,{}^tF)_i \times (F\,{}^te_m)_i \right),$$

Soit :

$$e_m\,{}^tFF\,{}^te_m = \sum_{i=1}^{n} \left(\left(\sum_{j=1}^{p} (e_m)_j \times f_{i,j} \right) \times \left(\sum_{j=1}^{p} f_{i,j} \times (e_m)_j \right) \right).$$

Finalement :

$$\boxed{e_m\,{}^tFF\,{}^te_m = \sum_{i=1}^{n} \left(\sum_{j=1}^{p} f_{i,j} \times (e_m)_j \right)^2 = \sum_{i=1}^{n} (e_m f_i)^2 = e_m R\,{}^te_m.}$$

La maximisation de l'Équation 2.2 avec la contrainte donnée par l'Équation 2.3 revient donc à résoudre le système suivant :

$$\nabla({}^txRx) = \lambda \nabla({}^txx), \tag{2.4}$$

où ∇ est l'opérateur gradient et λ un multiplicateur de Lagrange. Exprimons chacun des termes de cette équation. D'une part, ${}^txx = \sum_{i=1}^{p} x_i^2$. Donc $\lambda\nabla({}^txx)$ est un vecteur de taille p, de coordonnées $(2\lambda x_1, 2\lambda x_2, \cdots, 2\lambda x_p)$. D'autre part :

$$^t xRx = \sum_{j=1}^{p} x_j \left(\sum_{i=1}^{p} x_i \times r_{i,j} \right),$$

ce qui donne :

$$^t xRx = \sum_{j=1}^{p} x_j \left(\sum_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^{p} (x_i \times r_{i,j}) + (x_j \times r_{j,j}) \right),$$

puis :

$$^t xRx = \sum_{j=1}^{p} \left(x_j^2 \times r_{j,j} \right) + \sum_{j=1}^{p} x_j \left(\sum_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^{p} (x_i \times r_{i,j}) \right).$$

$\nabla(^t xRx)$ est donc un vecteur de taille p, dont la k-ème coordonnée est la dérivée selon x_k de $^t xRx$. Exprimons cette dérivée :

$$\left(\nabla(^t xRx)\right)_k = \frac{\partial}{\partial x_k} \left(\sum_{j=1}^{p} \left(x_j^2 \times r_{j,j} \right) + \sum_{j=1}^{p} x_j \left(\sum_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^{p} (x_i \times r_{i,j}) \right) \right).$$

Par linéarité de l'opérateur dérivée, cette équation devient :

$$\left(\nabla(^t xRx)\right)_k = \frac{\partial}{\partial x_k} \left(\sum_{j=1}^{p} \left(x_j^2 \times r_{j,j} \right) \right) + \frac{\partial}{\partial x_k} \left(\sum_{j=1}^{p} x_j \left(\sum_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^{p} (x_i \times r_{i,j}) \right) \right),$$

puis :

$$\left(\nabla(^t xRx)\right)_k = \sum_{j=1}^{p} \left(\frac{\partial}{\partial x_k} \left(x_j^2 \times r_{j,j} \right) \right) + \sum_{j=1}^{p} \frac{\partial}{\partial x_k} \left(x_j \left(\sum_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^{p} (x_i \times r_{i,j}) \right) \right). \tag{2.5}$$

La dérivée selon x_k du premier terme de l'Équation 2.5 est nulle, sauf lorsque $j = k$. Donc :

$$\sum_{j=1}^{p} \left(\frac{\partial}{\partial x_k} \left(x_j^2 \times r_{j,j} \right) \right) = \frac{\partial}{\partial x_k} \left(x_k^2 \times r_{k,k} \right) = 2x_k \times r_{k,k}.$$

Lorsque $j = k$, la dérivée selon x_k du second terme de l'Équation 2.5 vaut :

$$\frac{\partial}{\partial x_k} \left(x_k \left(\sum_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^{p} (x_i \times r_{i,j}) \right) \right) = \sum_{\substack{i=1 \\ i \neq k}}^{p} (x_i \times r_{i,k}).$$

Lorsque $j \neq k$, la dérivée selon x_k du second terme de l'Équation 2.5 est nulle sauf lorsque $i = k$. On obtient donc :

$$\frac{\partial}{\partial x_k} \left(x_j \left(\sum_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^{p} (x_i \times r_{i,j}) \right) \right) = \frac{\partial}{\partial x_k} \left(x_j \times x_k \times r_{k,j} \right) = x_j \times r_{k,j}.$$

L'Équation 2.5 devient ainsi :

$$\left(\nabla({}^t xRx)\right)_k = (2x_k \times r_{k,k}) + \sum_{\substack{i=1 \\ i\neq k}}^{p} (x_i \times r_{i,k}) + \sum_{\substack{j=1 \\ j\neq k}}^{p} (x_j \times r_{k,j}).$$

Par symétrie de la matrice de covariance R :

$$\left(\nabla({}^t xRx)\right)_k = (2x_k \times r_{k,k}) + \sum_{\substack{i=1 \\ i\neq k}}^{p} (x_i \times r_{i,k}) + \sum_{\substack{j=1 \\ j\neq k}}^{p} (x_j \times r_{j,k}).$$

La k-ème coordonnée de $\nabla({}^t xRx)$ est donc :

$$\left(\nabla({}^t xRx)\right)_k = (2x_k \times r_{k,k}) + 2\sum_{\substack{i=1 \\ i\neq k}}^{p} (x_i \times r_{i,k}).$$

Résoudre l'Équation 2.4 revient ainsi à résoudre, pour tout $k = 1, \cdots p$:

$$(2x_k \times r_{k,k}) + 2\sum_{\substack{i=1 \\ i\neq k}}^{p} (x_i \times r_{i,k}) = 2\lambda x_k,$$

soit, pour tout $k = 1, \cdots p$:

$$\sum_{i=1}^{p} x_i \times r_{i,k} = \lambda x_k.$$

La maximisation de l'Équation 2.2 avec la contrainte donnée par l'Équation 2.3 revient donc à résoudre le problème aux valeurs propres suivant :

$$Rx = \lambda x. \tag{2.6}$$

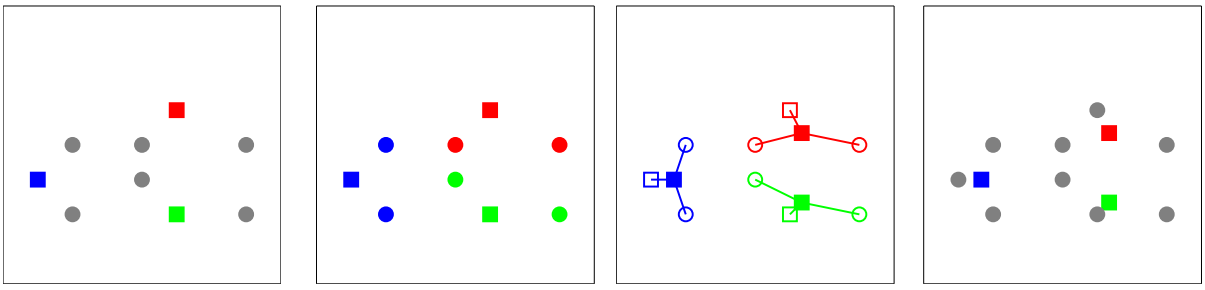
Soit Λ la matrice diagonale contenant les p valeurs propres de R, notées $(\lambda_i)_{i=1,\cdots,p}$. Puisque R est une matrice de covariance, ses valeurs propres sont réelles et strictement positives. Supposons qu'elles soient classées de façon décroissante, de sorte que $\lambda_1 > \lambda_2 > \cdots > \lambda_p$. Ces valeurs propres sont les EOF cherchées. Soient $(c_i)_{i=1,\cdots,p}$ les vecteurs propres associés aux valeurs propres $(\lambda_i)_{i=1,\cdots,p}$. La matrice R peut ainsi être décomposée de la façon suivante :

$$R = \sum_{i=1}^{p} \lambda_i c_i \, {}^t c_i. \tag{2.7}$$

Pour tout $i = 1, \cdots, p$, le réel $\frac{\lambda_i}{\sum_{i=1}^{p} \lambda i}$ correspond au pourcentage de la variance de F expliquée par la i-ème EOF. Bien souvent, une petite partie des λ_i domine les autres. Ceci signifie que la plus grande partie de la variance de F peut être expliquée en ne gardant qu'une petite partie des vecteurs propres de la base. Nous pouvons ainsi réduire la dimensionnalité des données et séparer les mécanismes indépendants en ne gardant que les N premières EOF, de sorte qu'elles représentent au moins un certain pourcentage de la variance totale (au moins 80% dans le cadre de cette thèse). Chacune des EOF gardées représente ainsi une oscillation de la PSL, dont l'évolution temporelle est définie, pour $i = 1, \cdots, N$, par : $a_i = Fc_i$. Les vecteurs $(a_i)_{i=1,\cdots,N}$ sont les composantes principales de F.

À l'issue de cette analyse en EOF, nous avons donc été capables, d'un point de vue mathématique, de réduire l'information contenue dans le champ de PSL, permettant ainsi d'en faciliter l'étude, sans que les données retirées ne soient essentielles d'un point de vue physique.

Les régimes de temps peuvent à présent être déterminés en classifiant les anomalies de la PSL projetées dans l'espace des composantes principales (i.e., la matrice dont les colonnes sont les vecteurs a_i, pour $i = 1, \cdots, N$). Nous appliquons l'algorithme du k-means, tel qu'il a été décrit par Michelangeli et al. (1995). Cet algorithme permet de trouver de façon itérative la répartition en k groupes (ou clusters) qui minimise le ratio de la variance à l'intérieur des régimes sur la variance entre les centroïdes des régimes. Le centroïde d'un régime est la moyenne de la variable classifiée dans l'espace réduit de classification. Ce terme sera toujours utilisé ici pour désigner la variable classifiée, tandis que le terme composite sera employé pour différentes variables. Le nombre k doit être choisi en amont de la classification. Ce choix est essentiel pour la pertinence des clusters créés. Nous choisissons ici de classifier les anomalies de la PSL en $k = 4$ groupes (Vautard, 1990). L'algorithme du k-means se déroule alors de la façon suivante. Tout d'abord, quatre centroïdes sont placés de façon aléatoire parmi les observations dans l'espace des composantes principales (Figure 2.1a). Chaque observation est ensuite affectée au centroïde le plus proche, en termes de distance euclidienne dans l'espace des composantes principales (Figure 2.1b). Pour chaque groupe créé, le centroïde est recalculé en faisant la moyenne des observations situées en son sein (Figure 2.1c). Les nouveaux centroïdes ne coïncident donc pas nécessairement avec les observations (Figure 2.1d). Les étapes 2 et 3 sont répétées de manière itérative jusqu'à la condition d'arrêt. Cette condition d'arrêt peut être définie dès le départ en fixant un nombre d'itérations maximal, ou, comme dans notre cas, se produit lorsque les centroïdes se stabilisent d'une itération à l'autre (i.e., lorsque la distance entre deux centroïdes obtenus à deux itérations successives est nulle).



(a) Étape 1 : initialisation des centroïdes (b) Étape 2 : création des clusters (c) Étape 3 : création des nouveaux centroïdes (d) Étape 4 : début de la nouvelle itération

FIGURE 2.1 – Les étapes de l'algorithme du k-means avec $k = 3$.

La circulation atmosphérique de grande échelle étant différente aux moyennes latitudes selon les périodes de l'année, les régimes de temps doivent être construits séparément pour chaque saison (Michelangeli et al., 1995). L'analyse en EOF et la classification à l'aide de l'algorithme du k-means doivent donc être effectuées pour chaque saison. Les études considèrent généralement soit un hiver et un été étendus (respectivement de novembre à mars et de mai à septembre), soit les quatre saisons classiques (hiver, printemps, été et automne). Dans cette thèse, nous considèrerons les quatre saisons classiques, dorénavant notées DJF pour l'hiver (Décembre-Janvier-Février), MAM pour le printemps (Mars-Avril-Mai), JJA pour l'été (Juin-Juillet-Août) et SON pour l'automne (Septembre-Octobre-Novembre). À l'issue de ces opérations, nous obtenons quatre groupes d'anomalies (quatre saisons) répertoriées chacune en $k = 4$ classes, donnant finalement quatre régimes de temps par saison.

Les régimes de temps obtenus sont identiques à ceux de la littérature (Vautard, 1990). Nous retrouvons notamment les quatre régimes classiques d'hiver (Atlantic Ridge, NAO^+, NAO^- et Blocage) et les

quatre régimes classiques d'été (Atlantic Low, Atlantic Ridge, NAO$^-$ et Blocage), que s'attache à décrire la section suivante.

2.1.3 Description

La Figure 2.2 présente les anomalies composites de PSL (hPa), de température (°C) et de précipitations (%) des quatre régimes d'hiver sur la période 1950-2008. Les anomalies de température et de précipitations proviennent du jeu de données E-OBS pour la période 1950-2008.

Le régime Atlantic Ridge (première colonne) est caractérisé par une anomalie positive de la PSL sur l'Atlantique Nord et par une anomalie négative sur l'Europe centrale et orientale. Cette configuration favorise des flux du nord (froids) sur la majeure partie de l'Europe. De plus, l'anomalie positive de la PSL favorise une situation anticyclonique sur la partie occidentale de l'Europe, tandis que l'anomalie négative de la PSL favorise une situation dépressionnaire sur le centre et l'est de l'Europe. Ce régime est donc associé à des anomalies froides sur l'ensemble du continent européen, et à des anomalies sèches en Europe de l'Ouest et humides en Europe de l'Est.

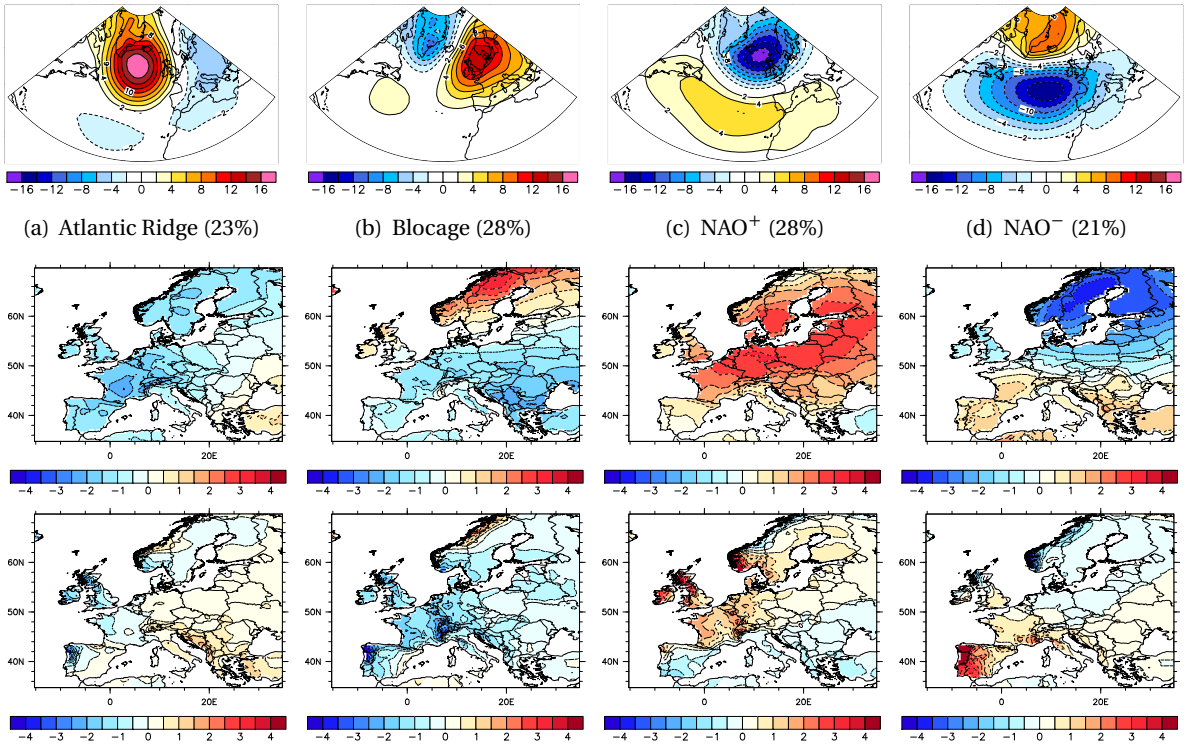


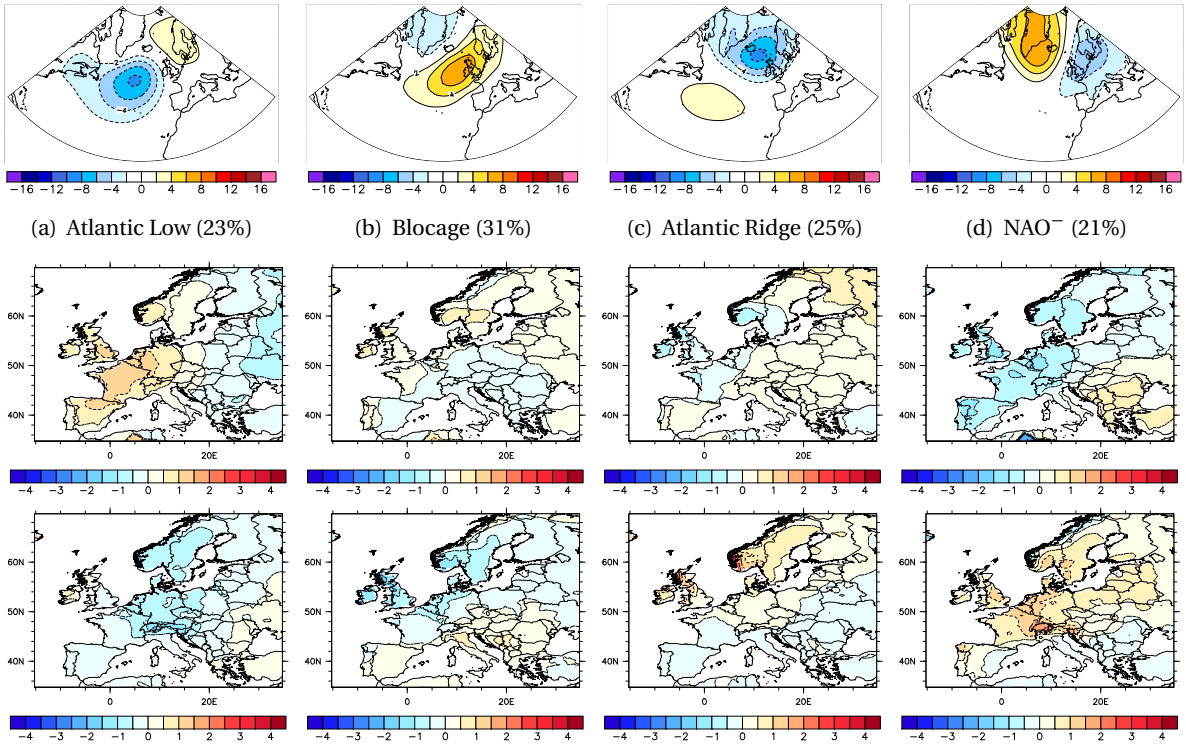
FIGURE 2.2 – Anomalies composites de PSL (première ligne, exprimées en hPa), de température (deuxième ligne, exprimées en °C) et de précipitations (troisième ligne, exprimées en %) des quatre régimes d'hiver sur la période 1950-2008. La fréquence d'occurrence de chaque régime est indiquée à côté du régime correspondant.

Le régime Blocage (deuxième colonne) présente une anomalie positive de la PSL sur l'ensemble du continent européen et une anomalie négative sur le Groenland. L'anomalie positive favorise des flux provenant du nord et protège le continent des situations dépressionnaires. L'anomalie négative de la PSL favorise quant à elle des flux provenant de l'océan (chauds) sur le nord de l'Europe. Ce régime est donc associé à de faibles précipitations, et à des températures supérieures à la moyenne sur le nord de l'Europe et inférieures à la moyenne partout ailleurs.

La phase positive de la NAO (troisième colonne) est caractérisée par une anomalie négative de la PSL dans le nord de la zone Europe-Atlantique-Nord et par une anomalie positive de la PSL dans le sud de cette zone. L'anomalie négative favorise les situations dépressionnaires sur la majeure partie de l'Europe et des flux provenant de l'océan. Ce régime est associé à des anomalies chaudes et humides sur l'ensemble de l'Europe, à l'exception du sud de l'Europe, protégé par l'anomalie positive de la PSL, où les précipitations faibles.

La phase négative de la NAO (quatrième colonne) présente des anomalies de PSL opposées à celle de la NAO^+. L'anomalie positive de la PSL protège le nord de l'Europe des situations dépressionnaires et engendre des flux froids provenant du nord. L'anomalie négative de la PSL favorise des flux chauds provenant de l'océan. Ce régime de temps est donc associé à des anomalies froides et sèches dans le nord de l'Europe, et à des anomalies chaudes et humides dans le sud.

La Figure 2.3 présente les anomalies composites de PSL (hPa), de température (°C) et de précipitations (%) des quatre régimes d'été sur la période 1950-2008. Le régime Atlantic Low (première colonne) est caractérisé par une anomalie négative de la PSL sur l'Atlantique et par une anomalie positive de la PSL sur la Scandinavie. L'anomalie positive favorise les situations anticycloniques sur le nord de l'Europe, tandis que l'anomalie positive favorise les flux provenant de l'océan. Ce régime est donc associé à des températures supérieures à la moyenne sur la moitié ouest de l'Europe, et à des températures inférieures à la moyenne sur la moitié est. Les précipitations sont inférieures à la moyenne sur l'ensemble de l'Europe, excepté dans les parties les plus occidentales (Royaume-Uni et Irlande) et orientales (Ukraine, Roumanie, Bulgarie, Grèce et Turquie).



(a) Atlantic Low (23%) (b) Blocage (31%) (c) Atlantic Ridge (25%) (d) NAO^- (21%)

FIGURE 2.3 – Anomalies composites de PSL (hPa), de température (°C) et de précipitations (%) des quatre régimes d'été sur la période 1950-2008. La fréquence d'occurrence de chaque régime est indiquée à côté du régime correspondant.

Le régime Blocage (deuxième colonne) est caractérisé par une anomalie positive de la PSL centrée sur le nord du Royaume-Uni et par une anomalie négative sur le Groenland. L'anomalie positive favorise

les situations anticycloniques sur le nord-ouest de l'Europe. Ce régime est donc associé à des anomalies froides et sèches dans le nord et l'ouest de l'Europe, et à des anomalies chaudes et humides dans le sud et l'est. De telles anomalies ne correspondent pas à l'idée que l'on se fait du Blocage en été (Cassou et al., 2005). La paramétrisation de la classification menée ici ne requiert pas un nombre minimum de jours consécutifs pour attribuer un jour à un régime de temps. De nombreux jours qui auraient été ainsi comme des jours de transition ont donc été attribués au régime de Blocage.

Le régime Atlantic Ridge (troisième colonne) est caractérisé par une anomalie négative de la PSL centrée sur le nord des îles Britanniques. Il est associé à des anomalies froides et humides dans le nord-ouest de l'Europe et à des anomalies chaudes et sèches dans le sud et l'est.

Le régime NAO^- (quatrième colonne) est caractérisé par une anomalie positive de la PSL sur le Groenland et par une anomalie négative sur l'Europe. L'anomalie positive de la PSL engendre des flux de nord sur la majeure partie du continent, tandis que l'anomalie négative favorise les situations dépressionnaires. Ce régime de temps est donc associé à des anomalies froides et humides sur tout le continent européen, à l'exception du sud-est qui présente des anomalies chaudes et sèches.

2.1.4 Vagues de froid, canicules et régimes de temps

Tempêtes, inondations, sécheresses, vagues de froid ou encore canicules ..., tous ces noms sont associés dans nos esprits à d'importantes conséquences matérielles, humaines et financières. Ces termes se regroupent tous sous le terme plus général d'évènement météorologique extrême/exceptionnel. Yiou & Nogaj (2004) rappellent que le caractère exceptionnel d'un évènement météorologique peut se définir aussi bien par l'ampleur de l'anomalie d'une variable météorologique par rapport à la moyenne saisonnière (température supérieure au $90^{\text{ème}}$ centile ou inférieure au $10^{\text{ème}}$ centile), que par la durée sur laquelle cette déviation a lieu (canicules, vagues de froid, sécheresse, ...).

Nous avons exposé dans la section précédente les anomalies moyennes de température et de précipitations associées aux quatre régimes de temps d'hiver et d'été de l'Atlantique Nord. Nous avons ainsi remarqué que certains régimes sont associés, sur certaines régions d'Europe, à de fortes anomalies de températures. C'est le cas par exemple dans le nord de l'Europe, où les températures sont inférieures de 2 à 4°C par rapport à la moyenne saisonnière durant le régime NAO^- d'hiver, ou encore en Europe occidentale, où les températures sont supérieures d'environ 2°C durant le régime Atlantic Low d'été. Si les probabilités d'occurrence de chaque régime sont quasi-égales lorsqu'elles sont calculées sur de longues périodes de temps (typiquement 50 ans), elles ne le sont pas nécessairement d'une année à l'autre, où un régime de temps peut dominer une saison. Nous nous intéresserons donc dans cette section aux récents extrêmes de température observés en France/Europe, que nous mettrons en lien avec les fréquences d'occurrence des régimes de temps durant ces périodes.

Météo-France définit une vague de froid comme *"un épisode de temps froid caractérisé par sa persistance, son intensité et son étendue géographique"*. Un tel épisode persiste au moins deux jours durant lesquels les températures atteignent des valeurs nettement inférieures aux normales saisonnières sur la (les) région(s) concernée(s). Nous avons vu dans la section précédente que parmi les quatre régimes d'hiver, deux sont associés à des températures nettement inférieures aux moyennes saisonnières en France : les régimes Atlantic Ridge et Blocage, tandis que les régimes NAO^+ et NAO^- sont associés à des anomalies positives de température.

Le Tableau 2.1 présente les quatre plus importantes vagues de froid recensées par Météo-France entre 1950 et 2008. Durant la vague de froid observée au mois de février 1956, il apparaît que les deux

TABLE 2.1 – Dates, durée, anomalie moyenne de température (jeu de données E-OBS pour la période 1950-2008) et nombre de jours classés dans chaque régime de temps durant les quatre vagues de froid les plus importantes en France entre 1950 et 2008.

Dates	Durée (jours)	Δ	A.R.	BL	NAO^+	NAO^-
01/02/1956 au 27/02/1956	27	-9.5°C	14	11	0	2
12/01/1963 au 06/02/1963	26	-8°C	16	7	0	3
03/01/1985 au 17/01/1985	15	-9.8°C	0	6	0	9
08/01/1987 au 23/01/1987	16	-7.5°C	1	9	0	6

régimes de temps majoritairement observés (25 jours sur 27) sont Atlantic Ridge et Blocage, régimes associés à des températures inférieures à la moyenne saisonnière (Tableau 2.1). De même en 1963, où ces deux régimes sont observés durant 23 jours sur les 26 jours de la vague de froid. Durant les deux autres vagues de froid, la fréquence des régimes de temps semble être moins liée aux températures observées. En 1985, le régime Atlantic Ridge n'est par exemple, pas observé, tandis que le régime NAO^-, associé à de faibles anomalies négatives sur le nord de la France est observé durant 9 jours, les 6 jours restant appartenant au régime de Blocage. De même, en 1987, sur 16 jours de vague de froid, le régime NAO^- est observé 6 jours, les 10 jours restant appartenant aux régimes Atlantic Ridge et Blocage. Notons tout de même que durant ces quatre vagues de froid, le régime NAO^+, associé à de fortes anomalies chaudes, n'est jamais observé.

À une échelle plus continentale, Yiou & Nogaj (2004) précisent que le contraste entre anomalies chaudes et froides observé entre le nord et le sud de l'Europe durant les mois d'hiver de 1958 à 2003, serait davantage contrôlé par l'alternance des régimes Blocage et NAO^+, plutôt que par l'alternance des deux phases de la NAO. Ainsi, le régime de Blocage est associé à des anomalies chaudes en Islande et en Scandinavie, tandis qu'il est synonyme d'anomalies froides partout ailleurs en Europe. À l'inverse, le régime NAO^- est associé à de fortes anomalies froides sur la moitié nord de l'Europe, tandis que les températures observées sur la moitié sud sont supérieures à la moyenne saisonnière.

Météo-France définit la canicule comme *"un épisode de températures élevées, de jour comme de nuit, sur une période prolongée"*. En été, le régime Atlantic Low a surtout une influence sur le nord-ouest de la France, tandis que l'influence du régime de Blocage augmente progressivement du bassin méditerranéen au nord-ouest de la France. De la même façon, le régime NAO^- exerce son influence sur toute la France, tandis que le régime Atlantic Ridge n'a pas trop d'influence sur le sud-est. Plus globalement, durant les mois d'été, les régimes Atlantic Low et Blocage sont associés à des températures supérieures à la moyenne en France, tandis que les régimes Atlantic Ridge et NAO^- sont associés à des températures inférieures à la moyenne (Cassou et al., 2005).

TABLE 2.2 – Dates, durée, anomalie moyenne de température (jeu de données E-OBS pour la période 1950-2008) et nombre de jours classés dans chaque régime de temps durant les cinq vagues de chaleur les plus importantes en France entre 1950 et 2008.

Dates	Durée (jours)	Δ	A.L.	BL	A.R.	NAO^-
22/06/1976 au 06/07/1976	15	+5.5°C	8	7	0	0
09/07/1983 au 31/07/1983	23	+4.3°C	4	11	1	7
22/07/1994 au 09/08/1994	19	+3.8°C	4	8	7	0
02/08/2003 au 19/08/2003	18	+6.4°C	3	14	1	0
10/07/2006 au 30/07/2006	21	+5°C	11	9	1	0

Pendant les cinq plus grandes vagues de chaleur observées entre 1950 et 2008, le Tableau 2.2 montre que les régimes Atlantic Low et Blocage ont été les plus observés (15 jours sur 15 en 1976, 15 jours sur

23 en 1983, 12 jours sur 19 en 1994, 17 jours sur 19 en 2003, 20 jours sur 21 en 2006). À l'exception de l'année 1983, le régime NAO$^-$ n'est jamais observé durant ces vagues de chaleur. Cassou et al. (2005) font remarquer que durant les cinq étés les plus chauds en Europe observés entre 1950 et 2003, les régimes Atlantic Ridge et Blocage avaient une plus forte occurrence (entre 43% et 62% des jours) que les autres régimes (entre 14% et 32% des jours). En particulier, durant l'été 2003, le régime Atlantic Ridge n'est pour ainsi dire jamais observé, tandis que le régime Atlantic Low a une fréquence de 40%. Ce dernier a particulièrement dominé le mois de juin, tandis que le régime de Blocage a dominé les premières semaines du mois d'août. Une telle configuration de la circulation Nord-Atlantique suggère une influence de l'océan Atlantique tropical, augmentant la fréquence des régimes de temps associés à des températures élevées en Europe. En plus de ce facteur synoptique, une combinaison de facteurs tels que l'humidité, la sécheresse des sols ou encore l'anomalie de température de surface le long des côtes, a probablement contribué à amplifier la hausse des températures en Europe (Cassou et al., 2005).

Ainsi, la variation inter-annuelle de la fréquence d'occurrence des régimes de temps définit le caractère plutôt chaud ou plutôt froid d'une saison par rapport à la moyenne. Corti et al. (1999) avaient ainsi suggéré que le réchauffement observé ces 30 dernières années pouvait être la réponse de changements dans la circulation de grande échelle, hypothèse également soutenue par Scaife et al. (2008). Cependant, Yiou et al. (2007) démontrent des incohérences entre la dynamique atmosphérique et l'automne-hiver 2006/2007 anormalement chaud en Europe. Nous pouvons également observer d'autres incohérences de ce type dans le Tableau 2.1 où, durant les vagues de froid observées en 1985 et 1987, le régime NAO$^-$, associé à des températures supérieures à la moyenne sur la majeure partie de la France est observé respectivement 9 jours sur 15 en 1985 et 6 jours sur 16 en 1987. De même, le Tableau 2.2 montre que le régime NAO$^-$ est observé durant 7 jours sur les 23 jours qu'a duré la vague de chaleur en juillet 1983. Pour cette saison anormalement chaude en Europe (+1.39°C par rapport à la moyenne), un équilibre entre nombre de régimes de temps chauds/froids est observé. Ces incohérences entre température et fréquence des régimes de temps suggèrent que si la variation inter-annuelle des régimes de temps explique en grande partie le caractère chaud ou froid d'une saison par rapport à la moyenne, elle ne domine pas l'évolution des paramètres météorologiques sur le long terme (Yiou et al., 2007; Vautard & Yiou, 2009).

2.2 Les types de temps

Les régimes de temps tels que nous les avons présentés dans la section précédente sont fréquemment utilisés et servent notamment à caractériser la variabilité de la circulation atmosphérique sur la zone Europe-Atlantique-Nord ainsi qu'à étudier ses liens avec les variables de surface à l'échelle régionale ou continentale (température, précipitations, vent). Cependant, cette approche devient limitée pour une étude d'impact, ou bien si l'étude requiert une résolution spatiale plus fine (Najac, 2008). Une méthode alternative consiste alors, pour une variable spécifique donnée, à utiliser des régimes de temps ad hoc. En effet, plusieurs éléments intervenant dans la classification, tels que le domaine géographique, la variable classifiée ou encore le nombre de clusters, peuvent être modifiés de sorte que les régimes de temps obtenus soient plus adaptés à la variable d'étude (i.e., les $PM_{2.5}$ dans le cadre de cette thèse). Dans la suite, nous utiliserons l'expression *types de temps* pour désigner ces régimes, tandis que l'expression *régimes de temps* sera réservée aux régimes de temps dits classiques.

2.2.1 Définition

Nous adoptons ici une démarche similaire à celle de Boé et al. (2006), implémentée dans le logiciel DSCLIM (Pagé et al., 2009). Les types de temps sont définis à l'aide de deux variables : une variable météorologique témoin de la circulation atmosphérique de grande échelle et une variable météorologique locale dont la variabilité influence celle de la variable d'étude. Nous utilisons ici la PSL comme variable de grande échelle et les précipitations (ENSEMBLES), responsables du lessivage des $PM_{2.5}$ (voir Chapitre 1), comme variable météorologique locale.

Tout comme pour les régimes de temps et du fait des différences de dynamique atmosphérique entre les saisons aux moyennes latitudes, la construction des types de temps se fait saison par saison. Nous considérons également ici les quatre saisons classiques (DJF, MAM, JJA et SON). Pour chacune d'entre-elles, les types de temps sont calculés à l'aide de l'algorithme du k-means (Michelangeli et al., 1995). Ainsi, pour une saison donnée, la construction se fait de la façon suivante :

1. calcul et normalisation des EOF des anomalies (décentrées et pondérées) de la PSL (réanalyses NCEP) et des précipitations (observations ENSEMBLES) sur la période 1950-2008 ;

2. création d'un espace composé des EOF de la PSL et de ceux des précipitations ;

3. classification des anomalies de la PSL dans cet espace (algorithme du k-means) ;

4. calcul des distances normalisées entre chaque jour classifié et les k clusters ;

5. attribution de chaque jour de la période au cluster qui lui est le plus proche.

Lors de l'application de l'algorithme du k-means, le nombre k de clusters, i.e., de types de temps doit être choisi en amont (Michelangeli et al., 1995). Ce nombre varie généralement entre 10 et 20 dans la littérature (Philipp, 2009; Philipp et al., 2010), et les auteurs choisissent d'utiliser le nombre qui a généré les "meilleurs" types de temps selon leurs critères. Par rapport à toutes ces études, notre variable d'intérêt, les $PM_{2.5}$, a fortement "simplifié" les critères pour choisir ce nombre k car nous ne disposons pas, contrairement aux variables météorologiques, d'observations de $PM_{2.5}$ sur toute l'Europe et sur une longue période de temps.

Il a été en effet indispensable de construire les types de temps sur une longue période, ici 1950-2008, pour qu'ils soient les plus robustes possibles. Or, l'analyse en types de temps (Chapitre 4) sera appliquée dans un premier temps uniquement sur la période 2000-2008, période sur laquelle nous ne disposons uniquement que de *pseudo-observations* de $PM_{2.5}$ (Chapitre 3). Si les types de temps générés sont quasi-équiprobables sur la période 1950-2008, ils ne le sont pas nécessairement sur la période 2000-2008. Nous avons ainsi testé toutes les valeurs de k comprises entre 10 et 20 et finalement retenu $k = 14$, seul nombre pour lequel chaque type de temps est suffisamment représenté sur la période 2000-2008.

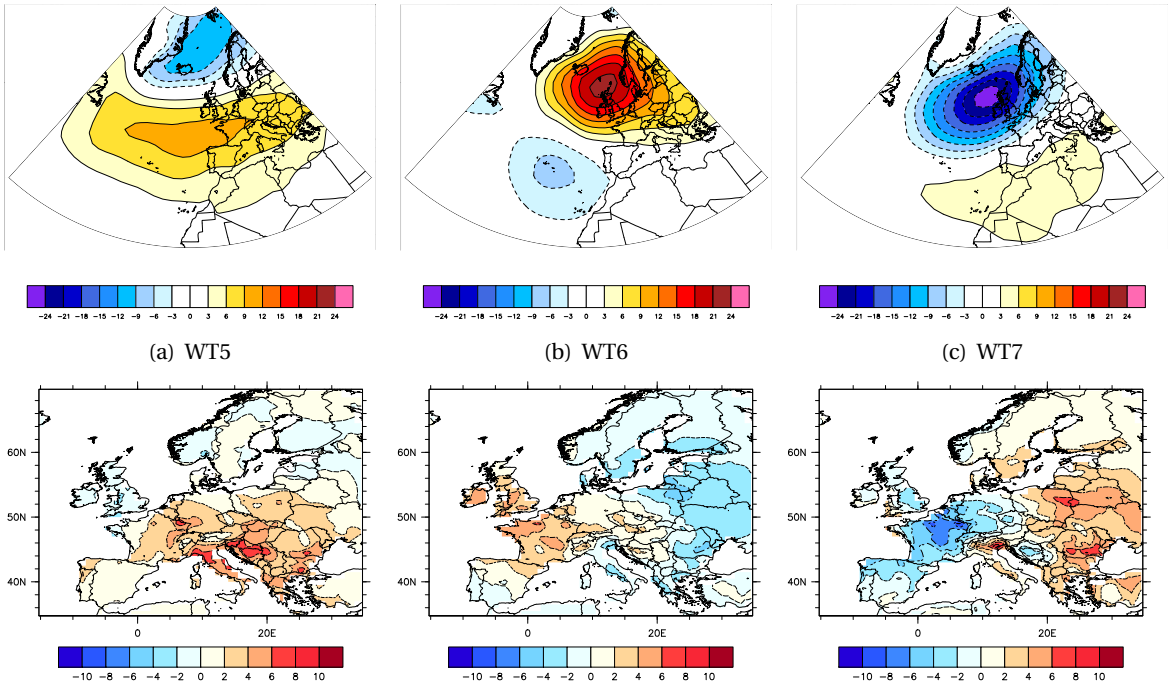
Cette façon de représenter la météorologie s'applique facilement à un scénario futur. En effet, pour savoir dans quel type de temps appartiennent les jours d'une période future donnée, il suffit de classifier les anomalies de la PSL données par un scénario futur, dans l'espace composé des EOF de la PSL et des précipitations de la période présente. L'utilisation du même espace de classification garantit que chaque jour de la période future soit attribué à l'un des types de temps de la période présente. Dans ce cas, il est donc supposé que les types de temps construits vérifient l'hypothèse de quasi-stationnarité.

2.2.2 Description

Cette section décrit les types de temps précédemment construits et les concentrations de $PM_{2.5}$ qui leur sont associées. Nous décrirons ici uniquement quelques types de temps d'hiver et d'été associés à de fortes concentrations de $PM_{2.5}$ sur une ou plusieurs régions d'Europe. L'ensemble des types de temps et des concentrations associées sont décrits en Annexe B.7.

2.2.2.1 Quelques types de temps d'hiver

Le type de temps WT5 (Figure 2.4, première colonne) est caractérisé par une anomalie négative de la PSL centrée sur la mer du Groenland et par une anomalie positive des côtes québécoises jusqu'au sud-est de l'Europe. L'anomalie positive de la PSL entraîne des anomalies sèches sur une grande partie du territoire, seules exceptions : les côtes norvégiennes et le Royaume-Uni où ces anomalies sont humides. Nous observons également des anomalies chaudes sur tout le territoire européen, excepté le sud-est. Au sein de ce type de temps, les concentrations de $PM_{2.5}$ sont supérieures à la moyenne (0 à +10 $\mu g\,m^{-3}$) sur la majeure partie de l'Europe (centrale, sud, est). Elles sont inférieures à la moyenne en Europe du Nord et au Royaume-Uni (0 à -4 $\mu g\,m^{-3}$).



(a) WT5 (b) WT6 (c) WT7

FIGURE 2.4 – Anomalies composites de PSL (hPa) et de $PM_{2.5}$ ($\mu g\,m^{-3}$) sur la période 2000-2008 des types de temps WT5 (première colonne), WT6 (deuxième colonne) et WT7 (troisième colonne). Les champs de PSL sont issues des réanalyses NCEP, ceux de $PM_{2.5}$ des résultats de la simulation de Lecœur & Seigneur (2013).

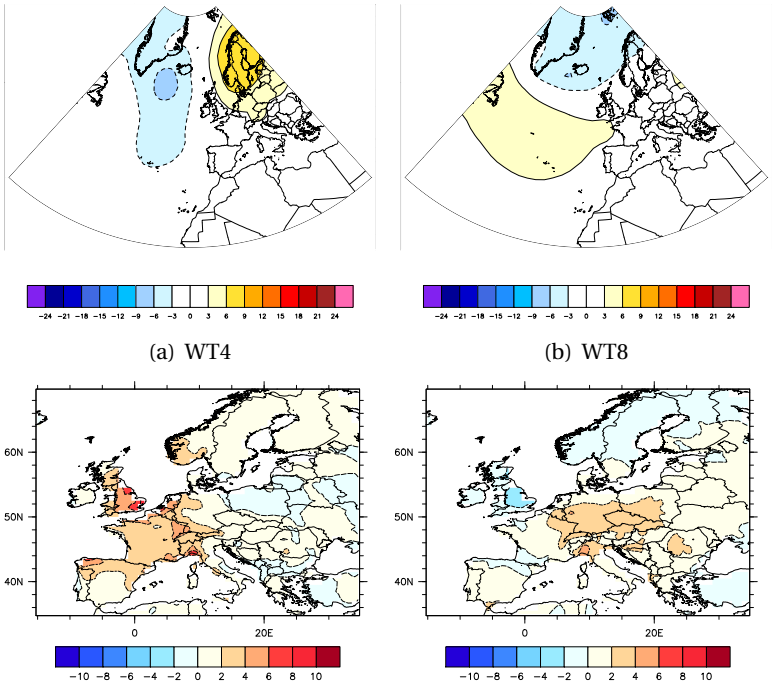
Le type de temps WT6 (Figure 2.4, deuxième colonne) est caractérisé par une anomalie positive de la PSL centrée sur le nord du Royaume-Uni. Cette anomalie favorise des flux de nord, entraînant des anomalies froides et sèches sur la majeure partie du territoire, excepté le nord de la Scandinavie où nous observons des anomalies chaudes et humides. Au sein de ce type de temps, les concentrations de $PM_{2.5}$ sont supérieures à la moyenne en Europe de l'Ouest et Europe centrale (0 à +6 $\mu g\,m^{-3}$) et inférieures à la moyenne partout ailleurs (0 à -6 $\mu g\,m^{-3}$).

Le type de temps WT7 (Figure 2.4, troisième colonne) est caractérisé par une forte anomalie négative de la PSL centrée sur le nord des îles Britanniques. Cette anomalie négative entraîne des anomalies chaudes et humides sur la majeure partie du continent. Seuls le sud-est de l'Europe et les côtes norvégiennes présentent des anomalies sèches. Au sein de ce type de temps, les concentrations de $PM_{2.5}$ sont inférieures à la moyenne en Europe de l'Ouest et en Europe centrale (0 à -10 μg m^{-3}), et supérieures à la moyenne partout ailleurs (0 à +8 μg m^{-3}).

2.2.2.2 Quelques types de temps d'été

Le type de temps WT4 (Figure 2.5, première colonne) est caractérisé par une anomalie négative de la PSL s'étendant du Groenland à l'archipel des Açores et par une anomalie positive centrée sur la Scandinavie. Cette anomalie entraîne des anomalies sèches sur tout le continent, excepté le sud-est. Les températures sont supérieures à la moyenne sur tout le continent, à l'exception du sud-est et de l'est. Au sein de ce type de temps, les concentrations de $PM_{2.5}$ sont supérieures à la moyenne sur la majeure partie du territoire (0 à +10 μg m^{-3}). Elles sont inférieures à la moyenne (0 à -2 μg m^{-3}) dans quelques régions localisées du centre, du sud et de l'est de l'Europe.

Le type de temps WT8 (Figure 2.5, deuxième colonne) est caractérisé par une faible anomalie négative de la PSL centrée sur la mer du Groenland et par une faible anomalie positive qui s'étend des côtes québécoises à la France. Ce type de temps est associé à des anomalies humides dans le nord de l'Europe, en Italie, en Autriche et en République tchèque, et à des anomalies sèches partout ailleurs. Les températures sont inférieures à la moyenne sur la façade Atlantique, et supérieures à la moyenne partout ailleurs. Au sein de ce type de temps, les concentrations de $PM_{2.5}$ sont supérieures à la moyenne dans le centre de l'Europe (0 à +6 μg m^{-3}) et inférieures à la moyenne partout ailleurs (0 à -6 μg m^{-3}).



(a) WT4 (b) WT8

FIGURE 2.5 – Anomalies composites de PSL (hPa) et de $PM_{2.5}$ (μg m^{-3}) sur la période 2000-2008 des types de temps d'été WT4 (première colonne) et WT8 (deuxième colonne). Les champs de PSL sont issues des réanalyses NCEP, ceux de $PM_{2.5}$ des résultats de la simulation de Lecœur & Seigneur (2013).

2.3 Les changements moyens sur l'Europe

Dans cette dernière section, nous présentons les changements moyens sur l'Europe en termes de température (Section 2.3.1) et de précipitations (Section 2.3.2) pour le 21ème siècle, mis en lien avec la dynamique atmosphérique de la région Europe-Atlantique Nord. Les changements présentés sont moyennés sur les 60 simulations effectuées par les 25 modèles de l'exercice CMIP5 pour le scénario RCP8.5. Ils sont projetés sur deux périodes futures de 30 ans (2020-2049 et 2070-2099) et comparés à une période de référence (1900-1929).

2.3.1 Les changements en termes de température

La première ligne de la Figure 2.6 présente les changements en terme de température sur la période 2020-2049, par comparaison à la période 1900-1929, en hiver (a) et en été (b). Nous observons en hiver un gradient zonal. Le réchauffement est croissant de l'Atlantique (+0 à +1.5 K) vers le nord et le nord-est de l'Europe (+4 à +6 K). En été, le réchauffement est croissant de la Scandinavie (+1 à +3.5 K) au bassin méditerranéen (+3 à +4 K). Les projections sur la période 2070-2099 (deuxième ligne) suivent la même distribution spatiale avec un réchauffement plus marqué (de +3 K sur l'Atlantique à +8 K dans le nord de l'Europe en hiver, et de +4 K en Scandinavie à +8 K dans le bassin méditerranéen en été). Ces résultats montrent également que les mécanismes conduisant à ces projections diffèrent largement d'une saison à une autre.

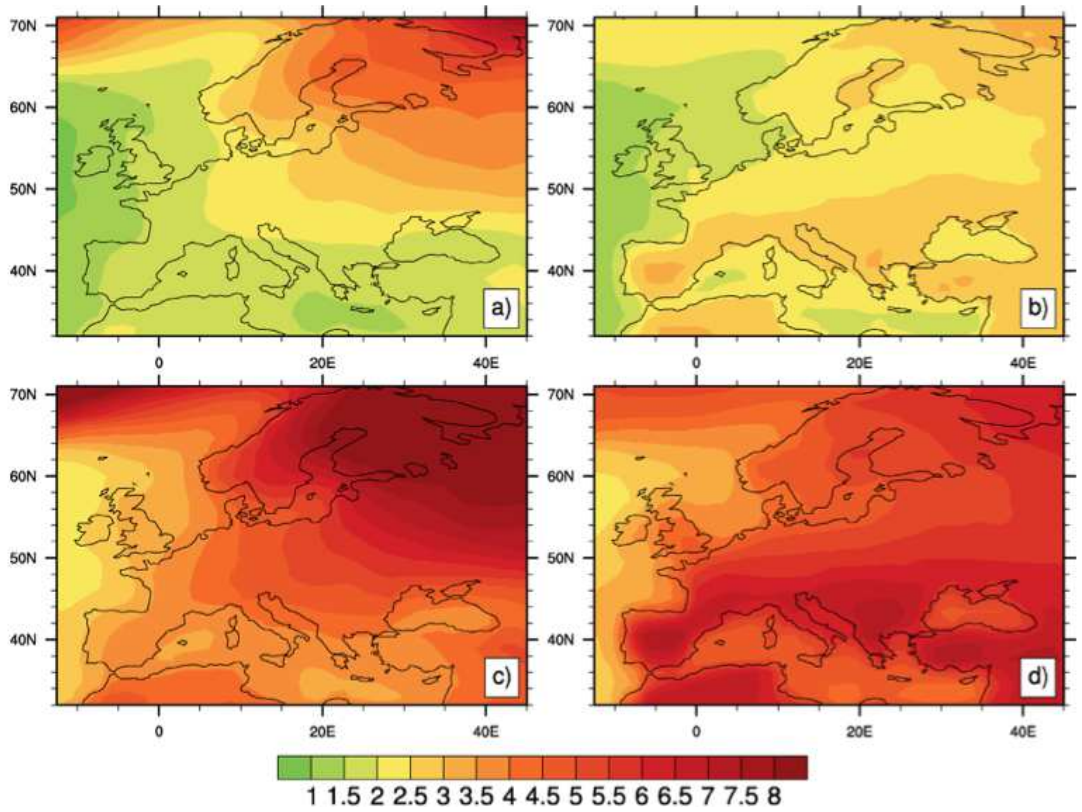


FIGURE 2.6 – Évolution de la température de surface (en K) pour les périodes 2020-2049 (première ligne) et 2070-2099 (deuxième ligne) par rapport à la période 1900-1929, en hiver (première colonne) et en été (deuxième colonne) pour le scénario RCP8.5. *Source : Terray & Boé (2013).*

En hiver, les changements en termes de température résultent principalement de la diminution

de la couverture neigeuse. La neige ayant un albédo très élevé, la diminution de son étendue entraîne successivement la modification du bilan radiatif et la diminution de la rétroaction neige-albédo. Cette réduction de la couverture neigeuse pourrait ainsi prévenir l'Europe des vagues de froid, voire amplifier les températures printanières en cas de fonte précoce des neiges (Cattiaux et al., 2012; Terray & Boé, 2013).

En été, les changements en termes de température semblent être davantage liés à la diminution de la couverture nuageuse simulée par les modèles CMIP5, diminution particulièrement marquée en région méditerranéenne. Cette diminution de la couverture nuageuse entraîne ainsi une augmentation des flux radiatifs (solaire et infrarouge) et par conséquent une augmentation de l'énergie disponible à la surface. L'équilibre du bilan radiatif par les flux de chaleur sensible et latente diffère alors selon les régions. Dans le sud de l'Europe, le flux de chaleur latente (évapotranspiration) est contraint par l'humidité au sol. Or, la diminution de la couverture neigeuse entraîne un assèchement des sols, qui entraîne à son tour une diminution du flux de chaleur latente et une augmentation du flux de chaleur sensible. Dans le nord de l'Europe, le contrôle de l'évapotranspiration se fait majoritairement par l'énergie incidente. L'excès d'énergie disponible à la surface se traduit alors par une diminution du flux de chaleur sensible et une augmentation du flux de chaleur latente. La température de surface augmentant linéairement avec le flux de chaleur sensible, le réchauffement est ainsi plus marqué dans le sud de l'Europe que dans le nord (Fischer & Schär, 2009; Cattiaux et al., 2012; Terray & Boé, 2013). L'été 2003 pourrait ainsi devenir un été standard en termes de températures dans les années à venir.

Il apparaît ainsi que la majeure partie du réchauffement simulé par les modèles soit dissociée de la dynamique atmosphérique, sans que la relation dynamique-température ne soit modifiée. En effet, les tendances récentes des températures en Europe ne peuvent s'expliquer par des modifications de la dynamique atmosphérique sur la région EAN (Cattiaux et al., 2009, 2010, 2011). Les processus énergétiques, liés aux transferts radiatifs et aux échanges de chaleur sont les processus apparaissant comme les acteurs majeurs du réchauffement climatique de surface. En automne et en hiver, le rôle de la température de surface de l'océan Atlantique est un élément important expliquant le réchauffement actuel. En effet, un océan Atlantique plus chaud entraîne un renforcement des échanges des flux de chaleur sensible et latente depuis l'océan vers l'atmosphère, puis l'advection de cet excès d'énergie vers le continent européen, et enfin le renforcement du flux de chaleur sensible de l'atmosphère vers le sol. Cette vapeur d'eau amplifie l'effet de serre, qui réchauffe ainsi la surface (Cattiaux et al., 2009, 2011). Si ce processus s'est avéré particulièrement cohérent avec les réchauffements saisonniers en automne et en hiver, il est moins prépondérant en été et au printemps, en particulier durant l'été 2003. Durant ces saisons, la dynamique atmosphérique est plus faible. Il semblerait alors que le récent réchauffement ait principalement été influencé par des processus physiques locaux, liés à l'humidité des sols, aux nuages ou aux aérosols (Fischer & Schär, 2009; Cattiaux, 2010). Ces résultats confortent ainsi l'hypothèse avancée par Yiou et al. (2007) et Vautard & Yiou (2009). La circulation atmosphérique joue donc un rôle prépondérant dans la variabilité inter-annuelle des températures, mais ne peut expliquer à elle seule le réchauffement observé.

2.3.2 Les changements en termes de précipitations

La première ligne de la Figure 2.7 présente les changements en termes de précipitations sur la période 2020-2049, par comparaison à la période 1920-1929, en hiver (a) et en été (b). Les précipitations augmentent au nord du 45ème parallèle en hiver (respectivement du 55ème parallèle en été), et diminuent au sud de celui-ci. Les distributions sont similaires entre les périodes 2020-2049 et 2070-2099, avec une réponse plus intense des précipitations pour la deuxième période. Les changements relatifs peuvent

ainsi excéder 20% en 2070-2099 par rapport à 1900-1929 dans certaines régions (nord de l'Afrique, extrême sud de l'Europe et au nord du 50ème parallèle en hiver ; en Europe occidentale, au sud du 45ème parallèle et dans le nord de la Scandinavie en été). De larges incertitudes subsistent cependant dans ces projections au sein des modèles CMIP5, en particulier concernant l'amplitude de ces changements. Il apparaît que la circulation de grande échelle joue un rôle non négligeable dans les précipitations projetées sur le Royaume-Uni et l'ouest de la France. La diminution des précipitations serait due à l'augmentation future de la fréquence d'occurrence du régime de Blocage, même si des incertitudes restent présentes entre les projets CMIP3 et CMIP5 (Boé et al., 2009; Terray & Boé, 2013).

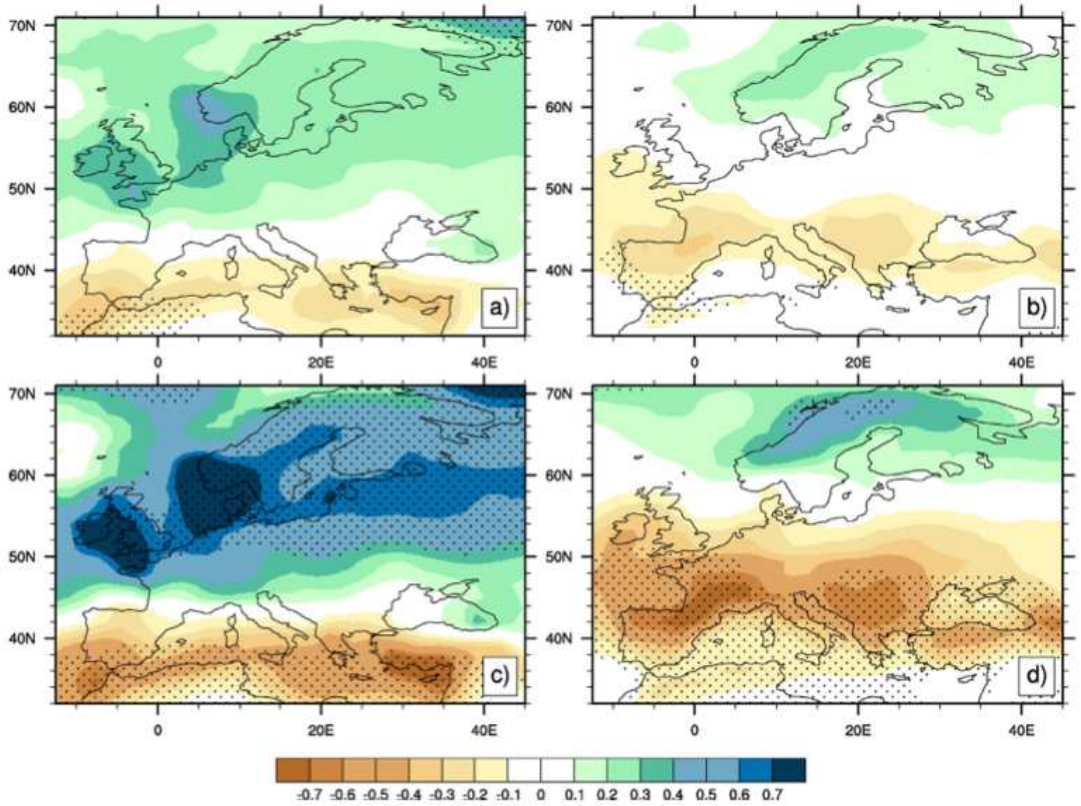


FIGURE 2.7 – Évolution des précipitations (en mm/jour) pour les périodes 2020-2049 (première ligne) et 2070-2099 (deuxième ligne) par rapport à la période 1900-1929, en hiver (première colonne) et en été (deuxième colonne) pour le scénario RCP8.5. *Source : Terray & Boé (2013)*. Les points indiquent les régions où le changement relatif par rapport à la période 1900-1929 est supérieur à 20% en valeur absolue.

Synthèse et perspectives

☞ **Objectifs —** Dans ce chapitre, nous :

- dressons un état de l'art des liens entre la circulation atmosphérique de grande échelle sur la région Europe Atlantique-Nord (EAN) et les différentes variables ayant un impact sur les concentrations de $PM_{2.5}$ à l'aide notamment des régimes de temps ;
- introduisons le concept des types de temps ;
- présentons les changements moyens projetés en Europe sur le $21^{ème}$ siècle en termes de température et de précipitations, obtenus dans le cadre de l'exercice CMIP5 (scénario RCP8.5).

☞ **Liens entre la circulation atmosphérique de grande échelle et les variables de surface dans le climat présent**

La variabilité atmosphérique sur la région EAN s'organise autour d'un certain nombre de structures spatiales préférentielles, appelées régimes de temps. Ces régimes de temps sont construits par classification d'une variable représentative de la dynamique atmosphérique (PSL). Ils permettent de caractériser certains modes dominants de la circulation atmosphérique et sont un outil efficace pour décrire les liens entre circulation de grande échelle et climats régionaux. La variation inter-annuelle des fréquences des régimes de temps joue un rôle prépondérant dans le caractère exceptionnel d'une saison par rapport à la moyenne, mais ne suffit pas à expliquer les tendances observées ces dernières années.

☞ **Les types de temps**

Les types de temps sont des régimes de temps améliorés, de sorte qu'ils soient plus adaptés à la variable d'intérêt (ici les $PM_{2.5}$). Ils sont obtenus par classification d'une variable de grande échelle (PSL) dans un espace défini à la fois par les fonctions orthogonales empiriques (EOF) de cette variable et par ceux d'une variable météorologique locale ayant un impact sur les $PM_{2.5}$ (les précipitations). **Nous obtenons ainsi 14 types de temps par saison, outil dont nous nous servirons dans le Chapitre 4 pour examiner l'impact du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$.**

☞ **Changements moyens projetés en Europe et rôle de la dynamique atmosphérique**

Les changements projetés en termes de température montrent un gradient zonal en hiver (resp. un gradient méridional en été). Ces changements sont plus importants à la fin du $21^{ème}$ siècle qu'au milieu de ce dernier. Le réchauffement en hiver semble résulter principalement de la diminution de la couverture neigeuse, qui modifie l'albédo de la Terre et a fortiori les rétroactions neige-albédo. En été, le réchauffement semble être davantage lié à la diminution de la couverture nuageuse, qui entraîne un excès d'énergie disponible à la surface de la Terre et une modification de l'importance des flux de chaleur latente et sensible. Les changements en termes de précipitations montrent une augmentation de ces dernières au nord du $45^{ème}$ (resp. $55^{ème}$) parallèle en hiver (resp. été), avec des changements plus intenses à la fin du siècle. De nombreuses incertitudes, notamment concernant l'amplitude de ces changements, subsistent encore dans ces projections. La dynamique atmosphérique semble jouer un rôle plus important dans l'évolution des précipitations que dans celle de la température et ne peut expliquer à elle seule l'évolution des variables météorologiques. Il conviendra dans une analyse de l'évolution du climat de tenir compte non seulement du changement des fréquences des types de temps, mais aussi du changement des valeurs moyennes des variables météorologiques principales (pression, température, vent et précipitations).

Chapitre 3

Évaluation dynamique d'une simulation de concentrations de particules fines à l'échelle européenne

Sommaire

Résumé **63**
3.1 Introduction **67**
3.2 Model simulation **68**
3.2.1 Input data and model configuration 68
3.2.2 **$PM_{2.5}$** spatial distribution and chemical composition over Europe 70
3.3 Operational evaluation **73**
3.3.1 Statistical scores 73
3.3.2 Comparison with other model evaluations in the context of AQMEII 75
3.3.3 Comparison with the performance evaluation of 1 year simulations 76
3.3.4 Discussion 77
3.4 Dynamic evaluation **77**
3.4.1 Data sets and method 77
3.4.2 Dynamic evaluation of **$PM_{2.5}$** at EMEP stations 79
3.4.3 Dynamic evaluation of **$PM_{2.5}$** and its main components at EMEP stations 81
3.5 Conclusions **88**
Synthèse et perspectives **90**

Résumé

L'objectif de cette thèse est d'étudier l'impact du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$ en Europe. Dans le Chapitre 1, nous avons exposé la dépendance des $PM_{2.5}$ et de ses composants aux variations des variables météorologiques (dorénavant, nous utiliserons la notation PM pour désigner les $PM_{2.5}$ et ses composants). Dans le Chapitre 2, nous avons mis en évidence des liens entre la circulation atmosphérique de grande échelle et les variables météorologiques locales. Le concept des régimes de temps et des types de temps repose sur le principe selon lequel l'atmosphère ne peut prendre qu'un

nombre fini d'états. Chacun de ces états préférentiels peut ainsi être lié aux concentrations de PM. Une fois ces liens caractérisés, il est alors possible de projeter les concentrations PM via les projections d'occurrence des types de temps dans les scénarios. Afin de caractériser les liens entre concentrations de PM en Europe et types de temps, il est nécessaire de disposer d'observations de PM sur la plus longue période possible et à un grand nombre de stations. En raison de la tardive règlementation européenne sur les concentrations de $PM_{2.5}$, une telle base de données n'existe pas encore à ce jour. Nous proposons donc d'utiliser des concentrations de $PM_{2.5}$ simulées au lieu d'observations.

Le but de ce chapitre est donc de construire et d'évaluer cette base de données simulées, afin de pouvoir la considérer comme des *pseudo-observations*. Nous avons ainsi utilisé le modèle Polyphemus/Polair3D pour simuler neuf années (2000-2008) de concentrations journalières de polluants. Le domaine de cette simulation s'étend par mailles d'environ 50 km de l'Islande à Moscou en longitude, et du détroit de Gilbratar au cap Nord en latitude, avec 14 niveaux verticaux (de la surface à 12 km d'altitude). Les données d'entrée du modèle sont fournies par ECMWF pour les variables météorologiques, EMEP pour les émissions anthropiques et MOZART-4 pour les conditions aux limites.

Les concentrations simulées de $PM_{2.5}$ sont élevées sur le nord de l'Italie (28 à 40 μg m^{-3} en moyenne), ainsi qu'au Benelux, dans l'est de la France, et dans le sud de la Pologne et de la Roumanie (24 à 32 μg m^{-3}). À l'inverse, elles sont faibles en Scandinavie (8 à 16 μg m^{-3}), en Espagne (4 à 12 μg m^{-3}) ainsi que sur la partie la plus orientale de l'Europe (4 à 12 μg m^{-3}). La composition chimique des $PM_{2.5}$ simulées varie sensiblement en fonction des régions. En Scandinavie, les poussières minérales et la matière organique représentent respectivement 14 à 20% et 40 à 60% des $PM_{2.5}$. Dans le sud industrialisé de la Scandinavie, le nitrate représente également à lui seul 12 à 30% des $PM_{2.5}$. En Europe centrale et dans le nord de l'Italie, les $PM_{2.5}$ sont composés de nitrate, d'ammonium et de matière organique à 60%, et de sulfate et de poussières minérales à 20%. Dans le sud et l'est de l'Europe, le sulfate et la matière organique représentent respectivement 12 à 30% et 30 à 54% des $PM_{2.5}$. Au-dessus des mers, des océans et sur les côtes des pays qui les bordent, les $PM_{2.5}$ sont principalement composés de sels marins (ils représentent 20% des $PM_{2.5}$ sur les côtes et plus de 60% dans l'océan Atlantique). En Europe occidentale, la matière organique représente 20% des $PM_{2.5}$ contre 30 à 50% sur le reste du continent. Quant au carbone suie, il représente moins de 4% des $PM_{2.5}$ sur la majeure partie du continent, à l'exception de quelques zones très localisées au Portugal, en France, en Roumanie et en Turquie (4 à 10%).

Avant de pouvoir utiliser ces données simulées en tant que *pseudo-observations*, il est nécessaire dans un premier temps de vérifier qu'elles représentent les concentrations observées de PM de manière satisfaisante. Pour ce faire, nous comparons les résultats de la simulation aux observations journalières de $PM_{2.5}$ et de ses principaux composants inorganiques (sulfate, nitrate et ammonium) fournies par le réseau EMEP. Le nombre de stations EMEP fournissant des données pour au moins un an est de 77 pour le sulfate, 34 pour l'ammonium, 33 pour le nitrate et 22 pour les $PM_{2.5}$. Le nombre de stations fournissant chaque année ces données est constant pour le sulfate (environ 20 stations), mais ne l'est pas nécessairement pour les autres espèces. Par exemple, 20 stations fournissent des données de $PM_{2.5}$ en 2005, contre 2 pour l'année 2000. Des observations de concentrations des espèces carbonées des $PM_{2.5}$ sont disponibles pour une année de simulation (Yttri et al., 2007). Néanmoins, la performance du modèle pour ces espèces n'est pas évaluée ici car elle a déjà fait l'objet d'une étude récente (Couvidat et al., 2012).

L'évaluation opérationnelle consiste à mesurer la performance du modèle via quelques scores classiques (moyenne simulée, moyenne observée, RMSE et coefficient de corrélation). Les concentrations simulées de $PM_{2.5}$ sont en moyenne supérieures de 2.6 μg m^{-3} aux concentrations observées. En regardant cette différence pour chaque année, nous remarquons qu'elle diminue à mesure que l'on

se rapproche de l'année 2008 : elle est de 8.7 μg m^{-3} en 2000 et de 1.3 μg m^{-3} en 2008. La RMSE et le coefficient de corrélation sont satisfaisants. La RMSE est en moyenne inférieure à la moyenne observée des $PM_{2.5}$ (9.0 contre 13.3 μg m^{-3}). Le coefficient de corrélation entre $PM_{2.5}$ simulés et observés varie entre 51 et 69%. Le sulfate est bien estimé par le modèle, avec une différence moyenne de 0.1 μg m^{-3} entre les valeurs simulées et observées, une faible RMSE (1.7 μg m^{-3}) comparée à la valeur moyenne observée (2.3 μg m^{-3}) et un coefficient de corrélation moyen de 56%. Le nitrate et l'ammonium sont, en revanche, surestimés par le modèle. Les différences moyennes entre valeurs simulées et observées sont respectivement de 1.6 μg m^{-3} et de 0.5 μg m^{-3} pour le nitrate et l'ammonium. Quant à la RMSE, elle dépasse la valeur moyenne observée pour ces deux espèces (2.0 μg m^{-3} et 0.9 μg m^{-3}). Le coefficient de corrélation est faible pour le nitrate (41% en moyenne), mais satisfaisant pour l'ammonium (58% en moyenne).

L'évaluation opérationnelle permet aussi de mesurer la performance du modèle selon les critères de performance et de but établis par Boylan & Russell (2006). Cette performance est mesurée à l'aide de deux scores pour les PM : MFE (mean fractional error) et MFB (mean fractional bias). Le critère de performance (de but) est atteint si MFE $\leq$ 75(50)% et |MFB| $\leq$ 60(30)%. Le critère de but est atteint en 2001, 2003, 2004, 2006 et 2008 pour les $PM_{2.5}$. Pour les autres années, c'est seulement le critère de performance qui est atteint. Le critère de but est atteint pour toutes les années pour le sulfate. En revanche, la performance pour le nitrate est moins satisfaisante : aucune année n'atteint le critère de but et seules quatre années (2003, 2006, 2007 et 2008) atteignent le critère de performance. Les résultats sont meilleurs pour l'ammonium : le critère de performance est atteint pour les années 2001 à 2005 et le critère de but pour les années 2006 à 2008. Cette évaluation met en évidence l'amélioration de la performance du modèle avec les années. Un tel progrès s'explique par l'amélioration d'une ou plusieurs des données d'entrée du modèle, telles que la meilleure résolution des données météorologiques, l'inventaire d'émissions, les mesures EMEP ou encore l'utilisation de conditions aux limites propres à l'année simulée à partir de 2004.

Nous avons comparé la performance de notre modèle avec celle d'autres modèles ayant également simulé un an de concentrations de particules sur l'Europe (Péré et al., 2010; Pay et al., 2010; Tuccella et al., 2012; Appel et al., 2012). Cette comparaison montre que la performance de notre modèle est similaire à celles des autres modèles pour les $PM_{2.5}$, le sulfate et l'ammonium. Elle souligne également la surestimation générale du nitrate et l'ammonium. Nous avons également comparé la performance de notre modèle avec celle des autres modèles du projet AQMEII. Cette comparaison montre que tous les modèles examinés sous-estiment ou surestiment les concentrations de $PM_{2.5}$ avec une amplitude supérieure ou égale à la surestimation des $PM_{2.5}$ par notre modèle. La RMSE de notre modèle est meilleure (7.2 μg m^{-3}) que celle des autres modèles (de 11.4 μg m^{-3} à 69.2 μg m^{-3}), pour des valeurs moyennes observées similaires (environ 12 μg m^{-3}).

La surestimation des concentrations de nitrate et d'ammonium est donc le principal défaut des modèles actuels. Dans le cas de notre simulation, celle-ci peut être due à plusieurs facteurs. Tout d'abord, la légère sous-estimation du sulfate conduit à une plus grande formation de nitrate d'ammonium car moins de sulfate est disponible pour réagir avec l'ammoniac. Ensuite, la volatilisation du nitrate d'ammonium des filtres utilisés pour les mesures peut être une source d'artéfacts non négligeables. Enfin, la variation temporelle des émissions d'ammoniac, encore mal connue, peut également être une grande source d'incertitudes.

Dans un deuxième temps, il est essentiel de s'assurer que le modèle peur reproduire de manière satisfaisante la réponse des $PM_{2.5}$ et de leurs composants à des changements dans les variables météorologiques. Ce type d'évaluation dynamique n'a, à ce jour, pas encore été effectué pour un modèle ayant

simulé les concentrations de $PM_{2.5}$. L'évaluation dynamique permet donc d'examiner la capacité du modèle à reproduire l'évolution des concentrations de PM en réponse à celle des variables météorologiques qui les influencent le plus (température, précipitations, vent). Dans ce but, nous avons calculé pour les données observées et simulées, la corrélation entre chacune des trois variables météorologiques un jour donné et les concentrations de PM le jour même et pour les 10 jours qui suivent. La différence entre le jour utilisé pour les variables météorologiques et celui utilisé pour les polluants dans le calcul du coefficient de corrélation est appelé décalage. Cette évaluation a été menée sur toutes les stations EMEP fournissant des données journalières de $PM_{2.5}$ et de ses composants inorganiques, pour au moins deux années consécutives et communes à toutes les espèces. Ces conditions, qui permettent d'obtenir les résultats les plus robustes possibles, ont fortement diminué le nombre de stations disponibles. Ce dernier a ainsi été ramené à 23 pour les stations fournissant uniquement les $PM_{2.5}$ et à 5 pour celles fournissant à la fois les $PM_{2.5}$ et ses composants inorganiques (une station en Autriche, deux en Allemagne, une en Italie et une en Norvège).

L'évaluation dynamique montre que la réponse des $PM_{2.5}$ aux changements dans la météorologie diffère sensiblement en fonction des stations et des variables météorologiques examinées. Lorsque le décalage est nul, le vent et les précipitations présentent une corrélation négative avec les $PM_{2.5}$ et tous ses composants, exception faite des sels marins, dont la présence est associée à des situations météorologiques caractérisées par des vents forts et des précipitations. Cette corrélation tend vers 0 lorsque le décalage tend vers 10. Ces variables n'ont donc plus d'influence sur les concentrations de $PM_{2.5}$ au-delà de quelques jours. Le coefficient de corrélation est en revanche quasi-constant pour la température, quels que soient le décalage considéré et les composants des $PM_{2.5}$ examinés. Ce coefficient peut alors être positif ou négatif selon les espèces et, pour le sulfate, selon la région étudiée. Les corrélations entre la température et les $PM_{2.5}$ ainsi que ses composants sont négatives aux stations AT02 et DE02. En hiver, les températures froides sont associées à de fortes émissions de NO_x, de SO_2 et de carbone suie (chauffage), qui conduisent à des concentrations de sulfate et de nitrate élevées. De plus, les basses températures favorisent la formation du nitrate d'ammonium semi-volatil. À l'inverse, les fortes températures engendrent une augmentation des émissions biogéniques et donc la formation des aérosols organiques secondaires. La corrélation entre la température et le sulfate est positive aux stations DE03, IT01 et NO01. Ces trois stations sont plus éloignées des principales sources d'émissions de SO_2 que les deux précédentes. Favorisé par la cinétique à des températures élevées, l'effet de l'oxydation du SO_2 domine celui des émissions, associé à des températures plus faibles. En revanche, les corrélations entre température et nitrate/ammonium sont négatives pour ces trois stations, conséquence de la volatilisation du nitrate d'ammonium semi-volatil à des températures plus élevées. Les corrélations sont, de manière générale, très faibles à la station norvégienne.

Bien qu'ils soient parfois surestimés, les effets des précipitations et du vent sur les PM sont bien reproduits par le modèle. Il est, en revanche, plus difficile de bien représenter les effets de la température sur les PM car celle-ci, contrairement aux précipitations et au vent, affecte chaque composant de façon différente. Néanmoins, les changements de signe dans la réponse des PM aux variations de la température sont toujours bien reproduits par le modèle aux différentes stations.

Bien que quelques incertitudes persistent au sujet des composants semi-volatils des $PM_{2.5}$ et que le faible nombre de stations constitue une limite de cette évaluation dynamique, l'évaluation des résultats de cette simulation est dans l'ensemble satisfaisante. Les concentrations simulées de $PM_{2.5}$ peuvent donc être considérées comme des *pseudo-observations* dans le cadre de l'étude d'impact du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$ menée dans le chapitre suivant.

Ce chapitre est constitué de :
Lecœur, È. & Seigneur, C. **Dynamic evaluation of a multi-year model simulation of particulate matter concentrations over Europe**, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*, 4319-4337.

3.1 Introduction

Atmospheric particulate matter (PM) pollution has become a field of great interest because of its impacts on human health, climate change, and atmospheric visibility. Therefore, air quality regulations have been implemented for PM concentrations. In particular, fine particles with an aerodynamic diameter less than or equal to 2.5 μm ($PM_{2.5}$) are regulated in North America and Europe as a consequence of their effects on human health (respiratory and cardiovascular diseases). $PM_{2.5}$ is a complex mixture of particles of different sizes and chemical compositions. These chemical compositions include primary PM, which is directly emitted in the atmosphere from various sources (e.g., road traffic, construction sites, soil dust, fires), and secondary PM, which is formed in the atmosphere via chemical reactions in the gas and aqueous phases, leading to the oxidation of precursors such as sulfur dioxide (SO_2), nitrogen oxides (NO_x), and volatile organic compounds (VOC) to nonvolatile and semivolatile species. The processes that govern the secondary particle concentrations are various and complex. In particular, they depend strongly on meteorology (temperature, solar radiation, humidity, presence of clouds and fog). Emissions of primary particles and precursors of secondary PM are also strongly affected by meteorology (wind speed, temperature, solar radiation). Furthermore, precipitation removes PM from the atmosphere. Therefore, climate change is expected to affect PM concentrations via the effect of meteorological variables on the emissions, formation, and removal of PM.

Studies of the effect of climate change on air quality have focused initially on ozone (e.g., Meleux et al. (2007); Van Loon et al. (2007); Mahmud et al. (2008); Wu et al. (2008); Chen et al. (2009); Katragkou et al. (2011)), and the study of its effect on PM concentrations is more recent. So far, most of the PM studies have focused on the United States and, to a lesser extent, Europe (e.g., Racherla & Adams (2006); Dawson et al. (2007, 2009); Zhang et al. (2008); Avise et al. (2009); Pye et al. (2009); Tagaris et al. (2009); Mahmud et al. (2010); Singh & Palazoglu (2012); Tai et al. (2010, 2012a); Kelly et al. (2012)), but simulations have typically been limited to a year or several months. The individual effects of various meteorological variables have been examined for the United States by perturbing each meteorological variable separately. The results suggest that the strongest effects of changes in meteorology on $PM_{2.5}$ concentrations are the effects of temperature, wind speed, absolute humidity, mixing height, and precipitation. According to these studies (Dawson et al., 2007; Mahmud et al., 2010; Galindo et al., 2011), temperature tends to increase average sulfate concentrations and decrease average nitrate and organic concentrations, leading to an overall decrease in $PM_{2.5}$ concentrations. Increasing absolute humidity increases nitrate aerosol, which leads to increased $PM_{2.5}$ concentrations. Changes in mixing height lead to mixing and dilution effects, with $PM_{2.5}$ concentrations generally decreasing as mixing height increases. $PM_{2.5}$ concentrations decrease with increased precipitation rate and the extent of the precipitation area. Increases in wind speed lead to changes in advection and transport resulting in decreases in $PM_{2.5}$ concentrations. Because meteorology may affect $PM_{2.5}$ components in opposite ways (e.g., an increase in temperature favors the emissions of biogenic VOC and their oxidation to semivolatile organic compounds (SVOC) but increases SVOC volatility), no strong consensus has yet been reached on the effects of the overall present and future climate on $PM_{2.5}$ concentrations. To date, there have only been a few studies about the effect of climate on $PM_{2.5}$ over Europe, as a consequence of the limited amount of daily $PM_{2.5}$ observations. Nevertheless, some observations provide also $PM_{2.5}$ chemical composition, which is important to understand the effect of meteorology on $PM_{2.5}$, thus the

present study focuses on $PM_{2.5}$.

Before one investigates the effects of climate change on PM concentrations, it is primordial to ensure that our current understanding of the relationships between meteorology and PM concentrations is correct. Typically, the evaluation of model performance is limited to the ability of the model to reproduce $PM_{2.5}$ and its components and provides no information on the ability of a model to predict the response of $PM_{2.5}$ components to changes in meteorology. Four levels of model performance evaluation may be considered: operational, diagnostic, dynamic, and probabilistic (Seigneur et al., 2000; Dennis et al., 2010). The operational evaluation tests the ability of the model to correctly estimate PM concentrations, while the diagnostic evaluation focuses on the estimation of the components of PM and precursors (Dennis et al. (2010) included PM components in the operational evaluation and we follow their categorization here for simplicity). The dynamic evaluation tests the ability of the model to predict the response of PM concentrations to changes in meteorology and emissions. Finally, the probabilistic evaluation takes also into account the uncertainties associated with the model predictions and observations of PM. To date, dynamic model performance evaluations have been limited to emission changes of ozone (O_3) precursors over the United States (e.g., Gilliland et al. (2008); Yarwood et al. (2003)) and to the response of O_3, nitrogen dioxide (NO_2), and PM_{10} over Europe (Colette et al., 2011). To our knowledge, there has been no comprehensive dynamic evaluation conducted with respect to meteorology. Therefore, the goal of this study is to conduct such a dynamic evaluation using a multi-year simulation of $PM_{2.5}$ over Europe. Such an assessment of model performance appears needed since air quality models are increasingly being used to investigate the effect of climate change on future PM concentrations.

A brief description of the Polyphemus/Polair3D modeling system used here is given in Section 3.2, along with the characteristics of the model simulation and the spatial distribution and composition of modeled $PM_{2.5}$. The Polyphemus system is used for simulating concentrations over Europe for years 2000 to 2008. An evaluation is then made for each year for both gases and aerosols. An operational model performance evaluation using available data is presented in Section 3.3. Those results are compared with those obtained recently in the AQMEII project and in other 1 year model performance evaluations for PM_{10}, $PM_{2.5}$ and its components. A dynamic evaluation performed with respect to meteorology is presented in Section 3.4. Conclusions and future prospects are presented in Section 3.5.

3.2 Model simulation

3.2.1 Input data and model configuration

We used the Polyphemus/Polair3D model (Mallet et al., 2007; Debry et al., 2007; Sartelet et al., 2007; Couvidat et al., 2012) to simulate 9 years (2000–2008) of concentrations of gaseous and particulate pollutants over Europe. Polyphemus is an air quality modeling platform that has been used for many applications at different scales (from local to continental). Polair3D is the chemical-transport model (CTM) of Polyphemus.

The modeling domain covers a geographical area that spreads from 15°W to 34.5°E in longitude and from 35°N to 69.5°N in latitude. Therefore, the domain covers an area of 100°× 70°with a step of 0.5°along both longitude and latitude, as shown in Figure 3.1. Fourteen levels are considered from the ground up to 12 000 m. The boundary heights of the different model layers are 30, 60, 100, 150, 200, 300, 500, 750, 1000, 1500, 2400, 3500, 6000, and 12 000 m.

Meteorological data were obtained from the reanalyses of the European Centre for Medium-Range

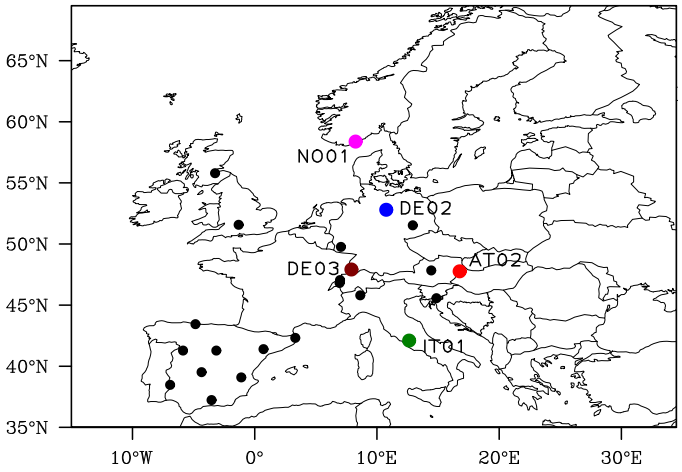


Figure 3.1: Geographical domain of the simulation and EMEP stations used for the dynamic evaluation (Section 3.4). The stations with a colored dot provide data for $PM_{2.5}$, sulfate, nitrate, and ammonium, while those with a black dot only provide $PM_{2.5}$ data.

Weather Forecasts (ECMWF). The horizontal resolution (both longitude and latitude) for specific years of these meteorological fields is 1.125°for 2000, 0.36°for 2001–2005, and 0.25°for 2006–2008. The vertical resolution includes 36 levels for 2000–2002, 2005, and January 2006, 31 levels for 2003–2004, and 54 levels for the remainder of 2006 and 2007–2008.

Anthropogenic emissions for gases and particles were generated with the Environmental Monitoring and Evaluation Programme[1] (EMEP) inventory for 2000 to 2008 for all sectors. Surface emissions were directly injected into the model surface layer and elevated point source emissions were injected into the model layers following the EMEP table for vertical distribution. No horizontal disaggregation was needed because the model and EMEP inventory have similar grid spacings. Temporal profiles by source sectors provided by EMEP were used. Biogenic emissions were computed with the Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN, Guenther et al. (2006)). NO_x from soils was excluded from SNAP10 of the EMEP inventory to avoid double counting. Sea salt emissions are parameterized following Monahan et al. (1986). Forest fire emissions were not considered as they were not available. Moreover, modeling the impact of forest fires is still an area of research due to uncertainties in emission rates and smoke plume heights.

The chemical mechanism chosen for the simulation is CB05 (Yarwood et al., 2005). It has been shown to perform satisfactorily in previous applications to Europe (Kim et al., 2009).

Boundary conditions are obtained from the outputs of the Model of Ozone And Related Tracers (MOZART-4, Emmons et al. (2010)) for the years 2004 to 2008, with 6 h resolution. No MOZART output is available for years 2000 to 2002, and the year 2003 is incomplete; we thus computed the mean of years 2004 to 2008 to create climatological boundary conditions for years 2000–2003. The year 2004 alone could have been considered for those boundary conditions since emission control policies led to decreases in emissions in Europe and North America over the period of interest. However, boundary conditions depend also on meteorology, and a mean over 5 years provides more robustness. The MOZART-4 chemical mechanism includes 85 gas-phase species, 12 bulk aerosol compounds, 39 photolysis and 157 thermal gas-phase reactions. Dust and sea salt aerosol data are distributed in MOZART4 among four size sections (0.05–0.5, 0.5–1.25, 1.25–2.5, and 2.5–5.0 μm for dust and 0.1–0.5,

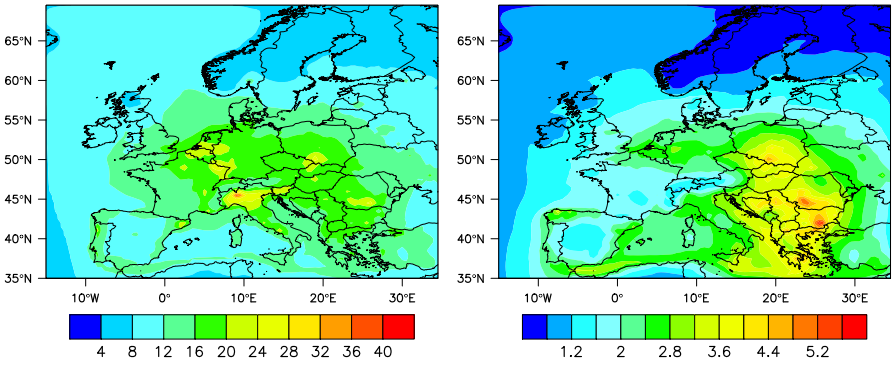
[1] http://emep.int/

0.5–1.5, 1.5–5.0, and 5.0–10.0 μm for sea salt). The concentrations from the input data are proportionally redistributed among the five sections of Polair3D (0.01–0.04, 0.04–0.16, 0.16–0.63, 0.63–2.5, and 2.5–10.0 μm). Black carbon, organic carbon, nitrate, ammonium, and sulfate aerosol input data follow a normal size distribution, which is distributed over the five sections of Polair3D. We used 60 species from MOZART-4 in the boundary conditions. The MOZART-4 VOC species were matched to CB05 following information available in Emmons et al. (2010). For example, BIGALK is considered as ALK3 and thus matched to 3.0 PAR, BIGENE to 1.0 PAR + 1.0 OLE, and TOLUENE to TOL (instead of a combination of TOL and XYL). The aerosol species were also matched to Polair3D species. Most of the species were directly matched to Polair3D, except OC1 and OC2, which were converted to 2.25 PSOAlP + 2.88 PSOAmP + 3.87 PSOAhP. These coefficients, which depend on the SVOC / POA and OM / OC ratios are taken from Couvidat et al. (2013).

Photolysis rates are computed offline using the photolysis preprocessor Fast-J, which calculates photolysis rates in the presence of an arbitrary mix of cloud and aerosol layers (Wild et al., 2000). The dynamics of the PM size distribution is simulated according to a sectional representation of the PM mass distribution (Debry et al., 2007). Aerosol dynamics (coagulation, nucleation, condensation, and evaporation) is treated. Inorganic PM is simulated with the ISORROPIA thermodynamic model (Nenes et al., 1998) and organic PM is modeled with a hydrophilic/hydrophobic organic (H^2O) model using a molecular surrogate approach (Couvidat et al., 2012). Nitrate aerosol in the coarse fraction is treated. The dry deposition velocities for gases are preprocessed with the parameterization of Zhang et al. (2003). Vertical diffusion is computed using the Troen & Mahrt (1986) parameterization within the planetary boundary layer. For land use coverage, the United States Geological Survey (USGS) cover map is used. For each year of simulation, the initial conditions are computed by using a spin-up period of 15 days from 15 to 31 December of the previous year.

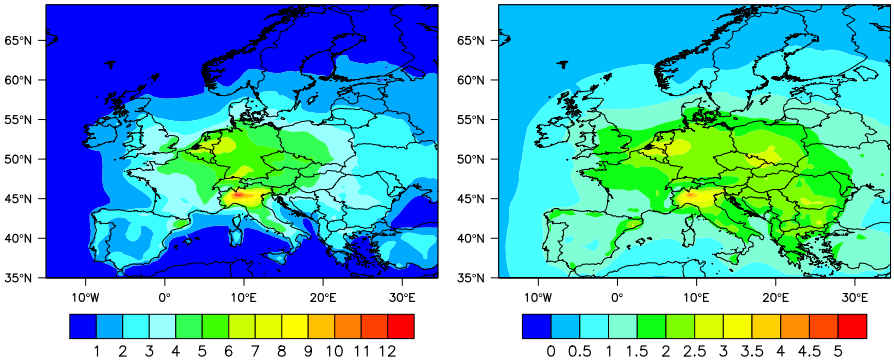
3.2.2 $PM_{2.5}$ spatial distribution and chemical composition over Europe

The spatial distribution of particulate species over Europe is shown in Figure 3.2 for the 9 year averaged surface concentrations of $PM_{2.5}$, sulfate, nitrate, ammonium, sea salt, organic matter, black carbon, and mineral dust. Figure 3.2 shows high concentrations of $PM_{2.5}$ over northern Italy (36 μ g m^{-3}), the Netherlands (25 μ g m^{-3}), northeastern Spain and France, and Eastern European countries (around 22 μ g m^{-3}), while concentrations are lower in the northern and easternmost parts of Europe and in Spain (between 4 and 14 μ g m^{-3}). Figure 3.2 depicts higher concentrations of sulfate over Eastern Europe, with two peaks in Romania and Bulgaria (5.5 μ g m^{-3}) and a general south–north gradient and a land–ocean gradient. Figure 3.2 shows high concentrations of nitrate at the center of the domain (up to 12 μ g m^{-3} over northern Italy), while low concentrations are less than 4 μ g m^{-3} over the rest of the continent. High concentrations of ammonium are localized in northern Italy, Benelux, and southern Poland (Figure 3.2), with a maximum of 5 μ g m^{-3} in the Milan area. As expected, sea salt concentrations are highest over the Atlantic Ocean (between 4 and 7 μ g m^{-3}), the Mediterranean Sea and the Baltic Sea (between 2.5 and 4 μ g m^{-3}), and along the coasts of the countries bordering the sea and the ocean (between 2 and 3 μ g m^{-3}). Sea salt concentrations are near zero on the continent (Figure 3.2). There is a sea salt gradient in the northwestern part of the domain, which is a consequence of two factors: high sea salt emissions in this part of the domain, and different parameterizations used in the model computation of sea salt emissions (Monahan et al., 1986) and in the boundary conditions (Mahowald et al., 2006). $PM_{2.5}$ organic matter concentrations are high in northwestern Portugal, eastern France, and over northern Italy (between 8.5 and 13 μ g m^{-3}). Slovenia, Poland, and Romania also show high concentrations of organic matter (around 8 μ g m^{-3}) (Figure 3.2). As expected, there is an ocean–land



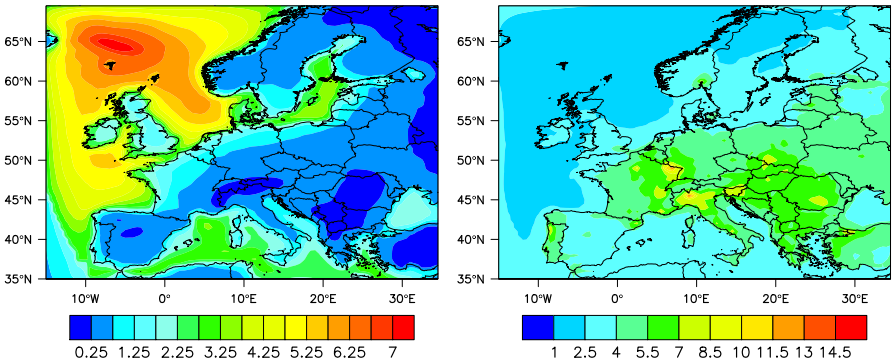
(a) $PM_{2.5}$

(b) Sulfate



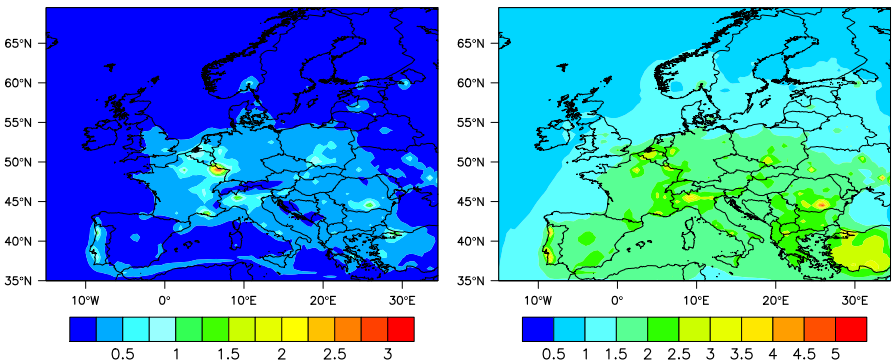
(c) Nitrate

(d) Ammonium



(e) Sea salt

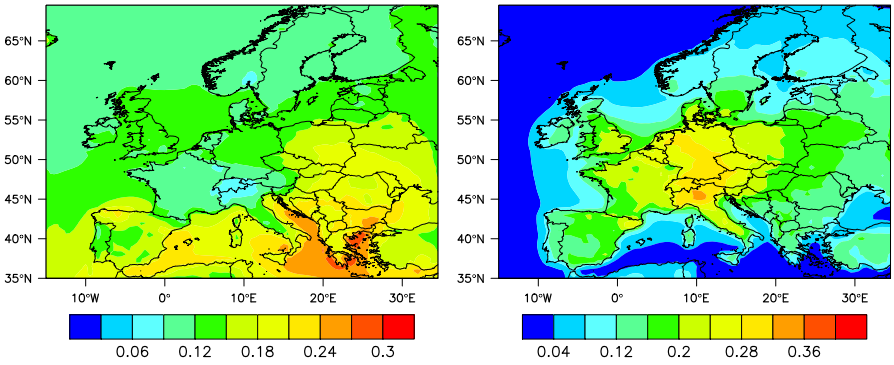
(f) Organic matter



(g) Black carbon

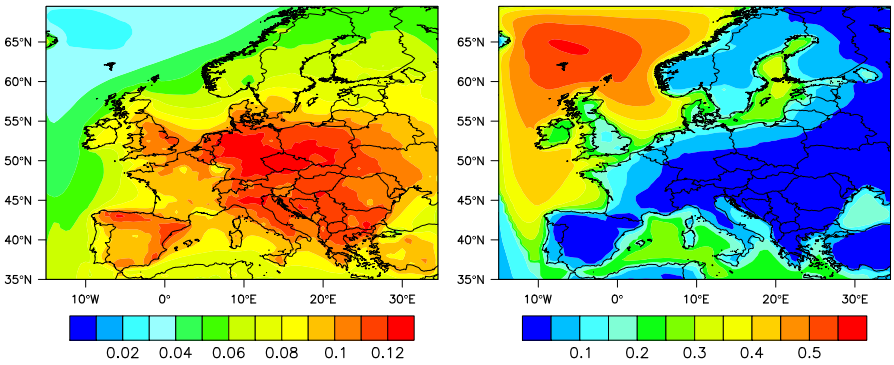
(h) Mineral dust

Figure 3.2: Nine-year (2000-2008) averaged surface concentrations of $PM_{2.5}$ and its components, expressed in $\mu g\,m^{-3}$.



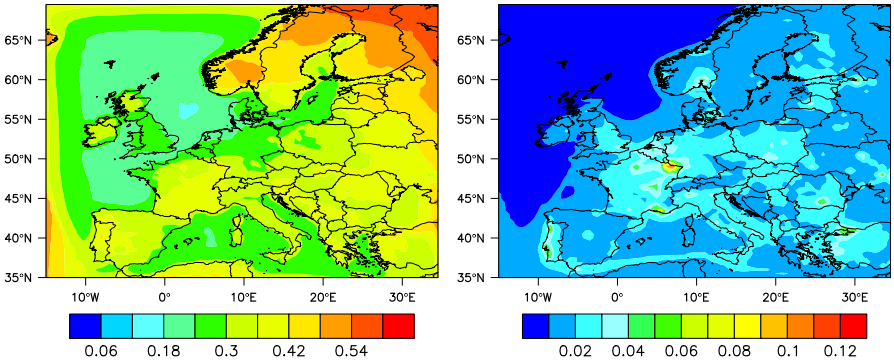
(a) Sulfate

(b) Nitrate



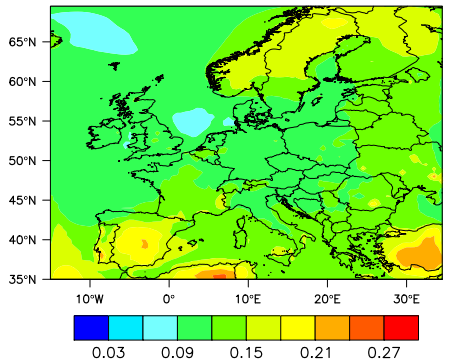
(c) Ammonium

(d) Sea salt



(e) Organic matter

(f) Black carbon



(g) Mineral dust

Figure 3.3: Nine-year (2000-2008) averaged surface fractions of sulfate, nitrate, ammonium, sea salt, organic matter, black carbon and mineral dust in $PM_{2.5}$.

gradient since both anthropogenic and biogenic emissions are higher on land than over water due to the presence of vegetation and human activities. Black carbon concentrations are below 1 μ g m^{-3} over all of Europe, except for the northeastern part of France (3 μ g m^{-3}) and in some localized areas in France, Italy, and Romania (1.25 μ g m^{-3}) (Figure 3.2). The concentrations of mineral dust vary from 1.5 to 5 μ g m^{-3} below 52°N, while they vary from 0.75 to 1.5 μ g m^{-3} above 52°N.

Figure 3.3 presents the 9 year averaged surface fractions of sulfate, nitrate, ammonium, sea salt, organic matter, black carbon, and mineral dust in $PM_{2.5}$. In Scandinavia, $PM_{2.5}$ consists mainly of mineral dust (from 14 % to 20 %), nitrate for the southernmost (and most industrial) part of Scandinavia (12 to 30 %), and organic matter (from 40 % to 60 %). The MEGAN emissions show high monoterpene emissions over Scandinavia, which, combined with the low pollution in this region, explain the high fraction of organic matter in $PM_{2.5}$. Nitrate, ammonium, and organic matter account for around 60 % of $PM_{2.5}$ in Germany, Switzerland, Austria, and northern Italy, while sulfate and mineral dust represent together around 20 %.

As expected, $PM_{2.5}$ is mainly sea salt over the ocean and the sea (from 22 % to 60 % of its composition); $PM_{2.5}$ along the west coast of France, Ireland, Great Britain, the Netherlands, and Denmark is around 20 % sea salt. Organic matter represents around 20 % in Germany, Belgium, southeastern England, and northwestern France, and from 30 % to 50 % in the rest of Europe. Black carbon accounts for less than 4 % in all of Europe, except for some localized areas in Portugal, France, Romania, and Turkey (4 % to 8 %) as well as a peak of 10 % that is observed at the border of France with Luxembourg and Germany.

3.3 Operational evaluation

3.3.1 Statistical scores

The operational evaluation was performed for each year for ozone (O_3) and PM. Available PM measurements include PM_{10} and $PM_{2.5}$ mass concentrations and $PM_{2.5}$ sulfate ($SO_4^=$), nitrate (NO_3^-), and ammonium (NH_4^+) concentrations. Although organic carbon and elemental carbon data are available at the EMEP stations for 1 year (Yttri et al., 2007), no operational evaluation was performed for these species as Polair3D has recently been evaluated for carbonaceous species (Couvidat et al., 2012). The correlation coefficient (%) and the root-mean-square error (RMSE) (μ g m^{-3}) are presented in Table 3.1 to provide a common overview of model performance for O_3 and PM. Other statistical metrics that are used routinely to evaluate model performance are presented in Table 3.2. The model fits best to the observations when the RMSE is small compared to the observed mean and the correlation coefficient is large. The U.S. EPA (EPA, 1991; Russell & Dennis, 2000) recommends using the mean normalized bias (MNB) (%) and the mean normalized error (MNE) (%) with an observation-based minimum threshold of about 80–120 μ g m^{-3} to evaluate hourly O_3. A threshold of 80 μ g m^{-3} was used here. The suggested performance criteria are |MNB| ≤ 15 % and MNE ≤ 35 %. Bias indicates whether the model tends to under or overpredict the observations, and error and RMSE indicate how much it deviates from the observations. The mean fractional bias (MFB) (%) and the mean fractional error (MFE) (%) are recommended to evaluate PM (Boylan & Russell, 2006). The model performance goal is met when both MFE and |MFB| are less than or equal to 50 % and 30 %, respectively, and the model performance criterion is met when both MFE ≤75 % and |MFB| ≤ 60 %.

The total number of stations that provide data for at least 1 year in the whole period is 91 for O_3, 77 for $SO_4^=$, 34 for NH_4^+, 33 for NO_3^- and PM_{10}, and 22 for $PM_{2.5}$. If the number of stations for which data are available each year is about constant for O_3 (around 70 stations), $SO_4^=$ (around 20 stations),

Table 3.1: Temporal correlations between the simulated and observed data (ρ, expressed in %), RMSE, mean of the observations (μ_{obs}) and of the simulation (μ_{sim})(expressed in μ g m^{-3}) for O_3 (hourly basis), PM_{10}, $PM_{2.5}$, $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+ (daily basis).

	O_3				PM_{10}				$PM_{2.5}$			
Year	ρ	RMSE	μ_{obs}	μ_{sim}	ρ	RMSE	μ_{obs}	μ_{sim}	ρ	RMSE	μ_{obs}	μ_{sim}
2000	61.6	34.1	58.8	80.2	59.5	13.0	16.1	24.7	51.1	13.0	13.6	22.3
2001	64.0	28.6	56.0	74.0	61.0	9.9	18.0	18.0	62.0	8.5	14.0	16.5
2002	62.8	28.6	60.5	75.3	56.0	11.0	17.9	19.2	60.2	9.3	13.3	17.4
2003	65.0	28.4	64.2	75.6	69.3	11.8	20.4	19.5	61.6	10.4	15.3	17.5
2004	60.1	28.1	60.5	75.0	54.5	9.3	16.8	17.7	60.5	8.0	13.4	14.8
2005	59.9	27.7	63.7	74.9	53.3	11.3	17.6	16.8	60.4	8.0	11.8	14.6
2006	65.3	27.1	61.5	74.2	48.9	11.4	18.7	17.3	52.9	9.8	15.0	14.3
2007	62.8	26.0	61.9	72.6	56.6	9.4	15.3	16.8	69.1	7.6	10.8	14.1
2008	65.1	25.2	58.3	72.1	49.4	9.3	15.4	16.1	51.3	7.0	10.5	11.8
2000–2008	62.9	28.2	60.6	74.9	56.6	10.7	17.3	18.4	59.1	9.0	13.3	15.9
	$SO_4^=$				NO_3^-				NH_4^+			
Year	ρ	RMSE	μ_{obs}	μ_{sim}	ρ	RMSE	μ_{obs}	μ_{sim}	ρ	RMSE	μ_{obs}	μ_{sim}
2000	58.8	2.2	2.1	3.0	27.1	6.3	1.8	6.4	47.7	2.4	0.9	2.7
2001	53.3	1.7	2.2	2.3	28.6	3.1	1.8	3.4	47.5	1.1	1.1	1.4
2002	59.6	1.8	2.7	2.5	43.2	3.3	2.2	3.6	51.4	1.0	0.7	0.9
2003	60.5	2.0	2.7	2.5	52.2	2.9	2.1	3.3	70.8	1.0	0.6	1.1
2004	57.3	1.5	2.2	2.2	39.0	3.0	2.0	3.6	67.0	0.6	0.5	0.7
2005	50.4	1.6	2.2	2.0	39.4	2.9	2.0	3.3	55.0	1.0	1.0	1.5
2006	56.2	1.9	2.6	2.2	51.1	2.7	2.8	3.4	56.4	1.2	1.3	1.8
2007	57.0	1.3	1.9	1.8	44.3	2.7	1.9	2.9	60.9	1.0	1.0	1.5
2008	55.6	1.2	1.8	1.6	49.5	2.4	1.7	2.4	65.4	0.9	0.9	1.3
2000–2008	56.5	1.7	2.3	2.2	41.6	3.3	2.0	3.6	58	1.1	0.9	1.4

and PM_{10} (around 10 stations), that number is more variable for the other species. For example, 20 stations provide data for $PM_{2.5}$ in 2005, while there are only 2 in 2000. There are some uncertainties in the observational data. Although most of the sites are remote rural background stations, they could nevertheless be impacted by some proximate source or be affected by local meteorological conditions that are not resolved by the model (representativeness issue). Moreover, artifacts associated with NO_3^- and NH_4^+ measurements occur due to evaporation (or condensation) of semivolatile ammonium nitrate (NH_4NO_3) from the particles collected on the filter due to fluctuations in temperature and relative humidity and/or pressure drop across the filter, which perturb the gas-particle equilibrium. In California these uncertainties have been estimated to be up to 30 % (Hering & Cass, 1999); however, they could be less in Europe, where most NH_4NO_3 formation occurs during the cold season. An unbiased uncertainty of 15 % has been reported for NO_3^- measurements (Schaap et al., 2004). Also, the aerosol water content is not taken into account in model-to-data comparisons, but a small amount of water may remain in the PM mass measurements.

Table 3.1 shows the annual mean correlations between the simulated and the observed concentrations (ρ in %), the RMSE, and the mean concentrations of the observed data (μ_{obs}) and of the simulated data (μ_{sim}), expressed in μ g m^{-3} . On average, hourly O_3 is overestimated by about 23 %, the correlation coefficient is 62.9 %, and the RMSE is 28.2 μ g m^{-3} (the observed mean concentration is 60.6 μ g m^{-3}). The criteria of Russell & Dennis (2000) are met with an MNE of 18.4 % and an MNB of 5.3 % on average. Those criteria are met for all years except 2000, when MNB is 17 % (instead of ≤ 15 %, see Table 3.2).

PM_{10} is estimated with a correlation coefficient of 56.6 % and a RMSE of 10.7 μ g m^{-3} on average (the observed mean concentration is 17.3 μ g m^{-3}). On average, MFB and MFE are 15.2 % and 42.9 %,

Table 3.2: Operational evaluation of the model using the criteria* of Russell & Dennis (2000) for O_3 and of Boylan & Russell (2006) for PM and its components (expressed in %).

	O_3		PM_{10}		$PM_{2.5}$		$SO_4^=$		NO_3^-		NH_4^+	
Years	MNB	MNE	MFB	MFE	MFB	MFE	MFB	MFE	MFB	MFE	MFB	MFE
2000	17	23.8	47	54	55	62	28	48	89	103	84	89
2001	9.8	19.5	10	41	25	42	0	45	3	93	1	55
2002	7.6	19	17	44	36	50	−6	44	25	84	−7	55
2003	3.4	19.5	7	38	25	45	−9	43	28	76	43	59
2004	5.2	17.6	13	39	22	42	−3	40	29	83	−5	52
2005	1.2	18.1	8	45	33	48	−7	45	6	86	7	57
2006	2.4	17.3	3	40	10	40	−12	44	5	71	23	50
2007	0.9	17	21	45	37	53	−3	41	8	78	24	47
2008	0.2	14.1	11	40	25	47	−7	39	−8	75	17	40
2000–2008	5.3	18.4	15.2	42.9	29.8	47.4	−2.1	43.2	20.5	83.2	20.8	56

* The performance criteria are |MNE| < 35 % and MNB < 15 % for O_3 modeling; a threshold of 80 μ g m^{-3} was used here. The performance goal (resp. criterion) is met when |MFB| < 30 % (60 %) and MFE < 50 % (75 %) for PM modeling.

respectively, meeting the performance goal of Boylan & Russell (2006) (see Table 3.2). The performance goal is met every year except in 2000, when both MFB and MFE exceed the goals but meet the criteria. $PM_{2.5}$ is overestimated by 20 % on average with an RMSE of 9 μ g m^{-3} (the observed mean concentration is 13.3 μ g m^{-3}) and a correlation coefficient of 59 %. On average, MFB (29.8 %) and MFE (47.4 %) also meet the performance goals. These performance goals are met for 5 years (2001, 2003, 2004, 2006, and 2008); for the other years, $PM_{2.5}$ meets the performance criteria. $SO_4^=$ provides the best results: the correlation coefficient is 56.5 % and the RMSE is 1.7 μ g m^{-3} on average (the observed mean concentration is 2.3 μ g m^{-3}). Simulated concentrations are on average 4 % lower than the observations. Both MFB (−2.1 %) and MFE (43.2 %) meet the model performance goals for every single year. Model performance is lower for NO_3^- and NH_4^+. Simulated concentrations are overestimated compared to the observed concentrations (80 % for NO_3^- ad 55 % for NH_4^+ on average). NH_4^+ has a better correlation coefficient and RMSE (58 % and 1.1 μ g m^{-3} , the observed mean concentration is 0.9 μ g m^{-3}) than NO_3^- (42 % and 3.3 μ g m^{-3} , the observed mean concentration is 2 μ g m^{-3}) because a fraction of NH_4^+ is associated with $SO_4^=$. NO_3^- does not meet the performance criteria (MFB=20.5 % and MFE=83.2 % on average), but NH_4^+ does (MFB=20.8 % and MFE=56 %). For NO_3^- the performance criteria are met for 4 years (2003, 2006, 2007, and 2008). For NH_4^+ the performance goals are met for the last 3 years (2006–2008), and the performance criteria for all years except 2000.

3.3.2 Comparison with other model evaluations in the context of AQMEII

Sartelet et al. (2012) summarized the results of an operational model performance evaluation conducted for the Polyphemus/Polair3D model and nine other models, applied in the context of the Air Quality Model Evaluation International Initiative (AQMEII, Solazzo et al. (2012)). The mean of the statistics of the nine AQMEII models was computed, along with the minimum and maximum values, for PM_{10} and $PM_{2.5}$. We compare here our model performance evaluation to that of the other AQMEII models. The AQMEII model evaluation was performed for a 2-month period (from 7 July to 31 August 2006). We thus computed the performance statistics for this study from 7 July to 31 August for each year and averaged the results over 2000–2008 for the comparison. It is interesting to ensure that our model performance did not degrade when simulating a longer time period. The observational data for the AQMEII model

evaluation include stations from the AirBase and EMEP databases, while we only used the latter (AirBase does not provide data for the components of PM, while EMEP does). Table A1 summarizes the statistics obtained for PM_{10} and $PM_{2.5}$.

Daily PM_{10} is slightly overestimated by Polair3D over 2000–2008 (15.9 μ g m^{-3} measured against 16.6 μ g m^{-3} simulated), while the AQMEII model concentrations are on average 10 μ g m^{-3} lower than the observations. The Polair3D average RMSE is about half the mean observed value, whereas the mean RMSE for the AQMEII models is commensurate with the observed value. The Polair3D average correlation coefficient is significantly higher than the best correlation coefficient for the AQMEII models. The MFE and MFB of Polair3D meet the performance goal criteria, while the AQMEII models do not. Solazzo et al. (2012) performed statistical analysis for PM_{10} for 10 model simulations in the context of AQMEII for the whole of year 2006. The RMSE ranges from 7.3 to 15.2 μ g m^{-3} for the different models, which is consistent with the RMSE obtained here, which is 10.7 μ g m^{-3} on average (see Table 3.1). The MFB for PM_{10} at rural stations ranges between −70 % and +10 % for the different AQMEII models, while in this work it is 15.2 % on average. The MFE for the AQMEII models spreads from 25 % to 75 % for the different models, while it is 42.9 % on average in this work.

Daily $PM_{2.5}$ is overestimated compared to the observations (11.5 μ g m^{-3} measured against 16 μ g m^{-3} simulated on average). The AQMEII models show both under and overestimations (13.3 μ g m^{-3} measured against a range of 5 to 21.4 μ g m^{-3} simulated). The Polair3D average RMSE (7.2 μ g m^{-3}) is smaller than those of the AQMEII models, with similar mean observed values. The correlation coefficient is significantly better than those of the AQMEII models (68 % against 3 to 21 %). Compared to the AQMEII models, the MFE and MFB of this simulation show better results and meet the model performance criteria of Boylan & Russell (2006), while the AQMEII models do not.

3.3.3 Comparison with the performance evaluation of 1 year simulations

We also compared our model performance evaluation to that of four other chemical-transport models that have been used for 1 year simulations over Europe (see Appendix A.2): CHIMERE (Péré et al., 2010), CALIOPE-EU (Pay et al., 2010), WRF/Chem (Tuccella et al., 2012), and CMAQ (Appel et al., 2012), which respectively simulated 2003, 2004, 2007, and 2006. The Polair3D results are averaged over 2000–2008 for this comparison.

All models simulated different years, with different models and configuration. Péré et al. (2010) used respectively EMEP and MEGAN to generate anthropogenic and biogenic emissions. PM and trace gases (CO, VOC, NO, NO_2) released by the important fires in 2003 were also taken into account. Pay et al. (2010) used the Advanced Research Weather Research and Forecasting (WRF-ARW) Model to provide meteorology, the EMEP database for anthropogenic emissions and the Dust Regional Atmospheric Model (BSC-DREAM8b) to simulate the atmospheric cycle of mineral dust. Boundary conditions were provided by LMDz-INCA2. Appel et al. (2012) forced WRF with boundary conditions from the North American Model from the National Centers for Environmental Prediction to generate meteorological data. Anthropogenic and biogenic emissions were respectively provided by MEGAN and TNO (http://www.tno.nl/). Fire emissions from the Moderate Resolution Imaging Spectrora diameter (MODIS) fire radiative power product were taken into account. Boundary conditions were generated via the Global and Regional Earth System Monitoring using Satellite and in situ data (GEMS) product with the help of data provided by GEOS-Chem for chemical boundary conditions. The AERO05 aerosol module and the CB05 mechanism were used. Tuccella et al. (2012) forced WRF/Chem with meteorological initial and boundary conditions provided by ECMWF. The chemical boundary conditions of trace gases

are based upon the results from the NOAA Aeronomy Lab Regional Oxidant Model (NALROM). The gas-phase chemistry model used is the Regional Acid Deposition Model, version 2 (RADM2), and the aerosol module includes the Modal Aerosol Dynamics Model for Europe (MADE) for the inorganic fraction, and the Secondary Organic Aerosol Model (SORGAM) for the carbonaceous secondary fraction.

The performance of $PM_{2.5}$ obtained is comparable to that of the other models; CHIMERE shows better correlations but similar normalized mean bias (NMB), the correlation obtained with Polair3D is better than those of CALIOPE-EU and WRF/Chem, but WRF/Chem shows lower MNB and MNE than Polair3D. For $SO_4^=$, Polair3D and CHIMERE show good agreement with the observations on average (within 0.1 μ g m^{-3}), whereas WRF/Chem underestimates significantly. All models overestimate NO_3^-, but the bias is lower for CHIMERE than for WRF/Chem and Polair3D. Performance results for NH_4^+ are similar for Polair3D, CHIMERE, and WRF/Chem.

3.3.4 Discussion

The operational model evaluation showed that NO_3^- and NH_4^+ are overestimated. This overestimation results from a combination of various factors. First, artifacts in the measurements methods, due to the volatilization of NH_4NO_3 from filters, can contribute to the model overestimation, although an evaluation of nitrate measurement methods in Europe did not show any significant bias (Schaap et al., 2004). In addition, the overestimation of nitrate could be due to the slight underestimation of sulfate by the model (2.2 μ g m^{-3} simulated against 2.3 μ g m^{-3} in the measurements). Thus, not enough ammonia is consumed by $SO_4^=$, favoring the formation of additional NH_4NO_3. Also, there is still a significant uncertainty about ammonia emissions, including their magnitude and temporal variability. Finally, taking the mean over 5 years to generate pseudo-climatological boundary conditions for aerosols and gases is also a source of uncertainties.

The overestimation of PM_{10} is slight (18.4 μ g m^{-3} simulated against 17.3 μ g m^{-3} in the measurements), but Polyphemus tends to simulate greater PM_{10} concentrations than other models over Europe (Sartelet et al., 2012). The comprehensive treatment of organic aerosols in Polyphemus, which leads to reasonable agreement with observations of carbonaceous aerosols (Couvidat et al., 2012), can explain in part this slight overestimation because the NO_3^- overestimation is not compensated by an organic underestimation as it was the case in some earlier modeling studies). The overestimation of daily $PM_{2.5}$ can be explained by the overestimation of NO_3^-, which is a greater fraction of $PM_{2.5}$ than of PM_{10}.

The evolution of model performance over the years shows a clear improvement for O_3, NH_4^+, and NO_3^- from 2000 to 2008. This improvement could be due to improvement in the measurements, the emission inventory, the meteorology (better spatial resolution for the more recent years), the boundary conditions (year-specific values starting in 2004) or a combination thereof. It is not possible at this point to identify conclusively the driving source of this evolution; nevertheless, model performance is satisfactory on average for $PM_{2.5}$ and its components and is similar to that of other models.

3.4 Dynamic evaluation

3.4.1 Data sets and method

A dynamic evaluation of an air quality model with respect to meteorology requires a long period to provide sufficient meteorological variability to evaluate the response of $PM_{2.5}$ concentrations to

variations in meteorology. The long duration used here (2000–2008) allows one to perform such a dynamic evaluation and test the ability of the model to correctly reproduce the variability of the concentrations of $PM_{2.5}$ and of its components in response to meteorology (e.g., temperature, wind speed, precipitation). Available $PM_{2.5}$ EMEP measurements provide 23 stations, which give daily observations for at least a year, but only 5 stations have EMEP joint observations for $PM_{2.5}$, $SO_4^=$, NO_3^- and NH_4^+ for the same period and for which a reasonable percentage of the data is available. The station locations are shown in Figure 3.1. The five stations, which include joint observations of $PM_{2.5}$ and inorganic components, are AT02 in Austria (2003–2008), DE02 and DE03 in Germany (2006–2008), IT01 in Italy (2007–2008), and NO01 in Norway (2002–2008). NO01 does not provide daily $PM_{2.5}$ observations (only 2 to 3 times per week); however, it provides $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+ observations on a daily basis. The AT02 station is located near Lake Neusiedl in Austria at 117 m above mean sea level (a.m.s.l.). The closest city is Illmitz (2416 inhabitants). The DE02 station is located at 74 a.m.s.l., in a forest with agriculture and meadows at a distance of 1 km and is surrounded by small stationary SO_2 and NO_x sources at distances greater than 1 km. The two largest and closest cities are Ütze n (35 600 inhabitants, 22 km from the station) and Salzwedel (21 000 inhabitants, 27 km from the station). Local emissions from cars should not affect the measurements as there are approximatively 3 cars per day within 3 km around the station. The DE03 station is situated on a mountain in the Black Forest, at 1205 a.m.s.l. and surrounded by forests and meadows, where there is minor agricultural activity for some parts of the year. Freiburg (206 000 inhabitants) is 12 km from the station and there are approximatively 5 vehicles per day within 10 km around the station. The high altitude of the DE03 station compared to the other sites should not impact the results of the dynamic evaluation as both measured and simulated concentrations are surface data (Polair3D uses terrain-following coordinates). The IT01 station is located at 48 a.m.s.l. and is 30 km from Rome. The station has the particularity to be inside the Research Area of the National Council of Italy; therefore, the site could be influenced by the vehicles of the research personel. There is no relevant industry near the area, but there is a highway situated 1.7 km from the station. The proximity to a large city and a highway could lead to greater concentrations of primary PM, as well as some lesser influence on concentrations of secondary PM (i.e., $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+), but those should be taken into account by the model. The NO01 station is surrounded mainly by forest, meadows, freshwater lakes, and low-intensity agricultural areas; it is located at 190 a.m.s.l. There are some local known emissions, which have minor or negligible influence on the air quality of the site. Some local agricultural activities occasionally yield elevated ammonia concentrations.

For the observation data set, we used the EMEP observations for the pollutants, the ENSEMBLES[2] observations for temperature and precipitation (horizontal resolution of 0.5°× 0.5°), and the ERA Interim[3] data for wind speed (horizontal resolution of 1.5°× 1.5°). The Polyphemus/Polair3D simulation results were used for both $PM_{2.5}$ concentrations and meteorology of the simulation data set.

We computed for each station the correlations between the meteorology on a given day and the PM daily concentrations ranging from 0 to 10 days after for both observed and simulated values. We refer to the differences between those days as the lag (i.e., ranging from 0 to +10). For example, at lag = 0, the computed correlation corresponds to a day-to-day correlation. For lag = + 10, the correlation is computed with the meteorology on a given day and the PM concentrations 10 days later. Therefore, it may reflect the impact of meteorology on the PM concentrations 10 days later. We assume in our analysis that the association between a meteorological variable and a PM concentration reflects the impact of meteorology on PM levels. If the correlation is highest when the lag is 0, then the correlation represents an association between a meteorological variable and a PM concentration for the same day. It

[2] http://eca.knmi.nl/download/ensembles/ensembles.php
[3] http://www.ecmwf.int/research/era/do/get/era-interim

is the case at several stations (see station specific discussions below) for wind speed and precipitation. A negative correlation between precipitation and PM concentrations can be interpreted as wet scavenging of PM: greater precipitation leads to lower PM concentrations. Similarly, a negative correlation between wind speed and PM concentrations can be interpreted as greater dispersion of primary PM emissions (and/or emissions of precursors): greater wind speed leads to lower PM concentrations. Because the PM concentration is a 24 h average value, a meteorological event (e.g., precipitation) may impact the PM concentrations more the following day than the same day if it occurs near the end of that same day at a large spatial scale. The concentrations measured the following day will thus represent an air mass that has been affected by the meteorological event. If the spatial scale of the meteorological event is significant and/or if there is stagnation, the "memory" of the meteorological event may last for several days and the correlation may remain significant for a few days. The correlation between PM and wind speed/precipitation reaches its maximum value (absolute value) for a lag equal to 0 or +1 and then tends towards 0 for the lag equal to 10. This suggests that wind speed/precipitation have little impact on PM beyond 4 days. The correlations between temperature and pollutants are nearly constant for a given station and a given pollutant. This suggests that temperature impacts PM over a much longer period compared to wind speed and precipitation. This behavior reflects the fact that temperature differences are significant among seasons and synoptic systems but show little day-to-day variation except for frontal passages.

We divide our dynamic evaluation into two parts. We first focus on the 23 stations that provide $PM_{2.5}$ measurements in Section 3.4.2. We conduct a greater in-depth analysis on the 5 stations that provide $PM_{2.5}$, $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+ in Section 3.4.3.

3.4.2 Dynamic evaluation of $PM_{2.5}$ at EMEP stations

The correlations computed above may be represented with curves depicting the evolution of the correlations as a function of the day lag (one graph per station). The large number of stations providing $PM_{2.5}$ measurements (23) prevents us from using this approach, which is used for a detailed analysis at the five stations that include $PM_{2.5}$ components. Instead, we choose to perform here a linear regression analysis to describe the evolution of these correlations as a function of the day lag, in both simulation and observation, allowing us a more compact presentation of these results (see Table 3.3). In this evaluation, the day lag ranges from 0 to 2 for two reasons. First, the general evolution of the correlation as a function of the day lag does not show linear relationships over 10 days but does over the first 3 days. Moreover, the best correlation coefficients for precipitation and wind speed suggest that they have little impact on PM beyond 4 days. If both the regression coefficients and the best correlations are close in the observations and in the simulation for a given station and a given meteorological variable, then we assume that the evolution of the relationship between this meteorological variable and the $PM_{2.5}$ concentrations as a function of the day lag is well reproduced by the model.

The stations that give the best results are AT02, CH04, ES08, ES12, ES14, GB36, and IT01 (values of the regression coefficients and correlations given in this section are the arithmetic means of the observational and simulation data, unless noted otherwise; the individual values are given in Table 3.3). At CH04 the regression coefficients for temperature are -0.02 and -0.03, respectively, in simulation and observation, and the maximum correlation (0.18 in the observation, 0.11 in the simulation) occurs at lag = 0 in both cases. The regression coefficients for both simulation and observation are close to 0.04 for wind speed and precipitation, and with a maximum correlation of around -0.35 at lag = 1. At ES08 the regression coefficients for temperature, precipitation, and wind speed are close to -0.03, 0.02, and 0.06, respectively, and the maximum correlations for temperature, precipitation, and wind speed are

close to 0.15, 0.25, and −0.27, respectively, in both simulation and observation. At GB36 the regression coefficients for temperature, precipitation, and wind speed are respectively close to −0.02, −0.02, and 0.05 for both simulation and observation. The maximum correlations are also close for each variable in both simulation and observation. AT02, ES12, ES14, and IT01 present similar results.

Table 3.3: Dynamic evaluation for $PM_{2.5}$ (without speciation): linear regression analysis of the correlation coefficients between the $PM_{2.5}$ and temperature (T°C), precipitation (PR), and wind speed (WS) as a function of the day lag (ranging from 0 to 2) for the observed (obs) and simulated (sim) concentrations. reg is the regression coefficient obtained from the regression analysis and r is the best correlation coefficient.

Station	Correlation of $PM_{2.5}$ vs. T°C				Correlation of $PM_{2.5}$ vs. PR				Correlation of $PM_{2.5}$ vs. WS			
	obs		sim		obs		sim		obs		sim	
	reg	r	reg	r	reg	r	reg	r	reg	r	reg	r
AT02	−0.02	−0.46	−0.01	−0.43	−0.02	−0.21	−0.01	−0.19	0.03	−0.11	0.1	−0.46
AT48	−0.03	−0.09	−0.03	0.14	0.02	−0.22	0.02	−0.19	0.02	−0.16	0.09	−0.45
CH02	−0.03	−0.41	−0.02	0.11	−0.03	−0.34	0.05	−0.3	0.02	−0.22	0.05	−0.41
CH04	−0.03	0.18	−0.02	0.11	0	−0.37	0.06	−0.32	0.02	−0.32	0.06	−0.38
DE02	−0.03	−0.3	−0.02	−0.11	−0.04	−0.23	−0.02	−0.18	0.02	−0.25	0.05	−0.41
DE03	−0.03	0.32	−0.03	0.21	−0.01	−0.27	0.06	−0.35	0.02	−0.3	0.06	−0.53
DE04	−0.03	−0.12	−0.04	0.18	−0.01	−0.39	0.06	−0.3	0.08	−0.38	0.08	−0.54
DE44	−0.03	−0.31	−0.02	−0.14	−0.03	−0.25	0	−0.22	0.05	−0.31	0.06	−0.47
ES07	−0.04	0.48	−0.01	0.26	−0.02	−0.19	0.08	−0.32	0.03	−0.18	0.05	−0.31
ES08	−0.05	0.23	−0.02	0.1	0.01	−0.27	0.04	−0.22	0.07	−0.31	0.05	−0.24
ES09	−0.03	0.55	−0.03	0.06	0	−0.16	0.03	−0.2	0.03	−0.39	0.06	−0.53
ES10	−0.02	0.12	−0.03	0.16	−0.03	−0.12	0.07	−0.28	−0.03	−0.24	0.06	−0.5
ES11	−0.03	0.44	−0.01	−0.05	0	−0.23	0.05	−0.22	0.03	−0.35	0.08	−0.48
ES12	−0.03	0.38	−0.01	0.2	0.03	−0.17	0.05	−0.2	0.06	−0.41	0.07	−0.57
ES13	−0.04	0.37	−0.02	−0.05	0.01	−0.21	0.05	−0.27	0.08	−0.37	0.08	−0.54
ES14	−0.02	−0.05	−0.02	−0.1	−0.01	−0.14	0	−0.09	0.11	−0.42	0.1	−0.53
ES15	−0.03	0.51	−0.02	−0.15	−0.01	−0.16	0.05	−0.27	−0.01	−0.25	0.06	−0.48
GB36	−0.02	−0.13	−0.02	−0.1	−0.04	−0.2	−0.01	−0.18	0.04	−0.31	0.06	−0.4
GB48	−0.01	−0.19	0.04	−0.27	−0.02	−0.17	0.03	−0.16	−0.01	−0.19	0.03	−0.19
IT01	−0.03	−0.18	−0.02	−0.18	0.02	−0.27	0.04	−0.24	0.08	−0.24	0.12	−0.53
IT04	0	−0.55	−0.01	0.12	−0.01	−0.22	−0.04	−0.29	0.03	−0.23	0.09	−0.27
NO01	−0.03	0.14	−0.01	−0.16	−0.04	−0.17	−0.06	0.08	−0.01	−0.2	0.03	−0.1
SI08	−0.02	−0.09	−0.02	−0.11	−0.07	−0.29	0.1	−0.32	0.02	0.09	0.07	−0.26

The evolution of the correlation between the $PM_{2.5}$ concentrations and the precipitation is typically what is best reproduced by the model at most of the stations (AT02, AT48, DE02, DE44, ES08, ES09, ES11, ES12, ES13, ES14, GB36, GB48, IT01, and IT04). The correlation curves at most of these stations are nearly identical, which can be seen on the values of the regression coefficients, ranging from −0.04 to 0.05 among the stations, with close values between observation and simulation (with a difference lower than 0.03 except at ES11 and ES13). The lag for which the best correlation is observed is lag = 1 for most of the cases and for both simulation and observation. The values of the best correlation coefficients are also close in both simulation and observation within 30 % at 17 out of 23 stations, for example, at CH02 (around −0.33), DE44 (around −0.23), ES11 (around −0.23), and IT01 (around −0.25). The differences between the values of the regression coefficients in simulated and observed data mainly come from a difference between the values of the correlation for lag = 0 and 1 (at ES10 for example). At other stations the profile is the same between observation and simulation, but with a slight constant difference (at NO01 for example).

The evolution of the correlation between temperature and $PM_{2.5}$ concentrations is not as well reproduced by the model. The results are best at the AT02, ES10, ES14, GB36, IT01, and SI08 stations,

where the curves are nearly identical. At these stations the regression coefficients are either −0.02 or −0.03 and are nearly the same in simulation and observation. The best observed correlation is around −0.45 at AT02, +0.15 at ES10, −0.07 at ES14, −0.12 at GB36, −0.18 at IT01, and around −0.10 at SI08 for both simulation and observation. Other stations present similar regressions, but with a constant difference between the values of the correlation between the observed and the simulated data (AT48, DE02, DE03, DE44, ES07, ES08, ES09, ES12, and GB48). For some other stations, the correlation is not well reproduced by the model (CH02, DE04, ES11, ES13, ES15, IT04, and NO01). For these stations the best correlation is of opposite sign in the simulation compared to the observation.

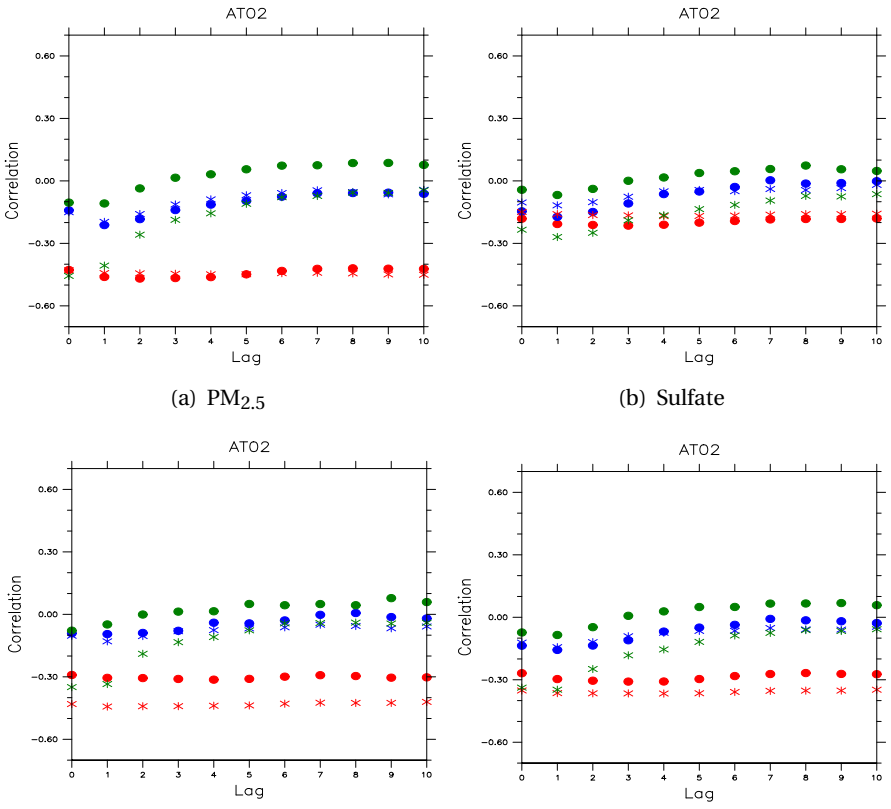
The evolution of the correlation between wind speed and $PM_{2.5}$ concentrations is also difficult to correctly reproduce, mainly because of the resolution of the ERA Interim data (150 km instead of 50 km for Polyphemus and the ENSEMBLES data). The GB36 station provides the best results with the two correlation curves nearly identical (regression coefficients of 0.05, and best correlation of around −0.35 observed at lag = 0 in both simulation and observation). However, at most of the stations, the profile of the evolution is correctly reproduced by the model, but with a tendency of the model to overestimate the values of the correlations (at 21 out of 23 stations).

The ability of the model to predict changes in $PM_{2.5}$ in response to changes in meteorology may be summarized as follows. Correlations with precipitation are always negative as expected as it removes PM from the atmosphere. The best correlation is observed for lag = 0 or lag = 1, and the regression coefficient is positive for both observation and simulation. We conclude that the model reproduces the effect of precipitation on PM correctly. Correlations with wind speed have the same profile as for precipitation, suggesting that greater wind speed disperses the polluted air mass more efficiently. This effect is reproduced by the model; however, it tends to be overestimated. Correlations with temperature are more difficult to reproduce. The best correlation coefficient can be either positive or negative, depending on the stations. The regression coefficients are almost always 0, suggesting that temperature impacts $PM_{2.5}$ in the same way for several consecutive days. The difficulty to correctly reproduce these correlations is mainly due to the fact that temperature has different effects on the $PM_{2.5}$ components (i.e., $SO_4^=$, NO_3^-, NH_4^+, organics, ...), unlike precipitation and wind speed, which impact $PM_{2.5}$ components in the same way. Exceptions are sea salt and mineral dust, for which emissions increase with wind speed; however, these components are mostly present in coarse PM. A more detailed analysis could not be performed here because most of these stations do not provide daily observations of $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+. Such an analysis is conducted below for the 5 stations that have joint observations for $PM_{2.5}$, $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+.

3.4.3 Dynamic evaluation of $PM_{2.5}$ and its main components at EMEP stations

We analyze here the ability of the model to reproduce the effects of meteorology on $PM_{2.5}$ inorganic components, i.e., $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+, by comparing the correlations between concentrations of $PM_{2.5}$ components and meteorological variables obtained in the observations and simulation.

Figure 3.4 presents these correlations for the AT02 station in Austria. Figure 3.4aa shows that the model represents well the variation of $PM_{2.5}$ as a function of changes in meteorology, particularly for temperature and precipitation. Correlations for temperature and precipitation versus $PM_{2.5}$ are nearly identical for both simulated and observed data, while correlations for wind speed versus $PM_{2.5}$ have the same profile but not the same intensity (−0.38 for simulated data against −0.11 for observational data with a lag taken at 0). The evolution of $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+ concentrations as a function of changes in precipitation and temperature are well represented. The evolution of $SO_4^=$ as a function of changes



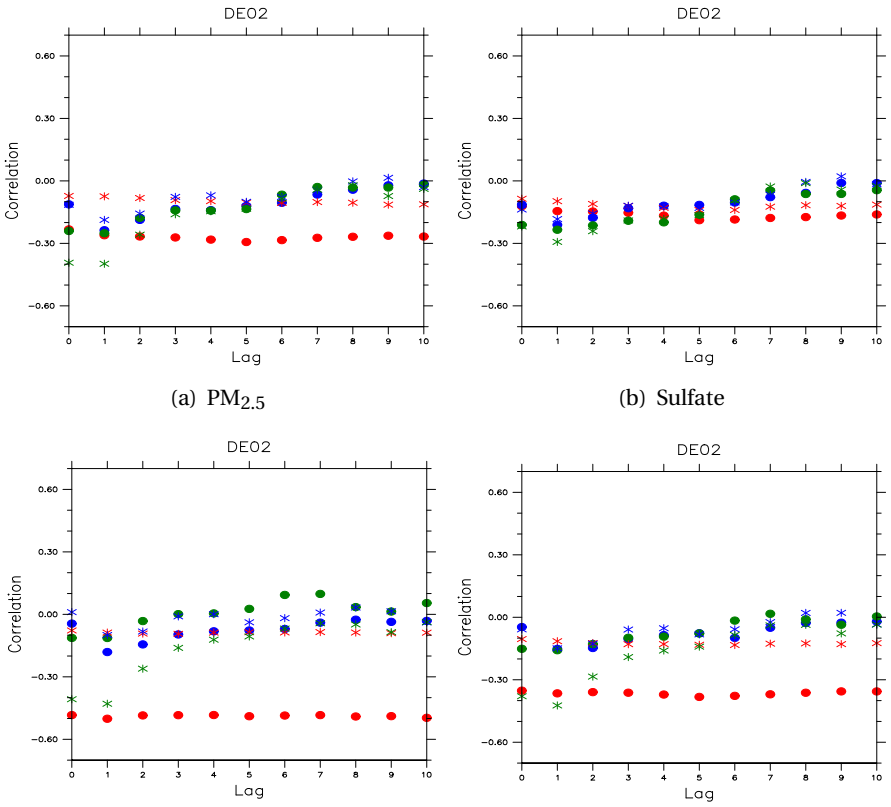
(a) $PM_{2.5}$ (b) Sulfate

(c) Nitrate (d) Ammonium

Figure 3.4: Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at AT02 (2003-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot.

in temperature is well represented by the model, while the model gives a slightly larger correlation in absolute values for NO_3^- (~ -0.4 vs. ~ -0.3) and NH_4^+ (~ -0.3 vs. ~ -0.25). For wind speed, the simulated data give a larger correlation in absolute value than the observations for all three species, which is consistent with the $PM_{2.5}$ results. Simulation data show that the negative correlation between temperature and $PM_{2.5}$ is driven by all the PM components (around -0.15 for $SO_4^=$, -0.2 for sea salt, -0.4 for NO_3^-, NH_4^+, and organic matter, and -0.6 for black carbon), except mineral dust (near 0). Lower temperatures in winter are associated with greater emissions of NO_x, SO_2, elemental carbon and primary organic carbon (residential heating and fossil-fuel-fired power plants), which may explain the greater concentrations of $SO_4^=$, carbonaceous PM, and nitric acid. Lower temperatures also favor the formation of semivolatile NH_4NO_3. Higher temperatures favor emissions of biogenic precursors of secondary organic aerosol (SOA); however, the results suggest that the variability of primary organic aerosol (POA) dominates over that of SOA. Profiles for wind and precipitation are identical for all species with some variation on the intensity of the correlation for a lag taken at 0 (the correlation then increases from lag = 0 to lag = +10), except for sea salt, for which the maximum value of the correlation is positive. Over the sea, increases in wind speed are often linked to increases in precipitation rate and lead to the emissions and subsequent transport of suspended sea salt particles. The negative correlation of sea salt with temperature may result from the association of low temperature with high wind speeds (winter storms).

Figure 3.5 presents correlations for the DE02 station in Germany. The evolution of $SO_4^=$ as a function



(a) $PM_{2.5}$ (b) Sulfate

(c) Nitrate (d) Ammonium

Figure 3.5: Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at DE02 (2006-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot.

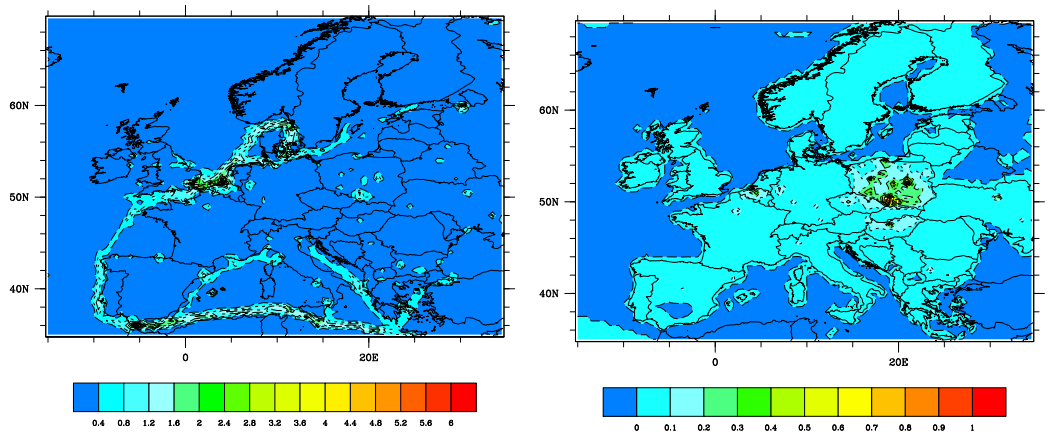
of changes in meteorology is well represented. As for AT02, the model reproduces well the evolution of PM concentrations as a function of changes in precipitation. Similarly, the observations show correlations between PM and wind speed that have similar profiles but are greater than those of the simulation. The evolution of $PM_{2.5}$ as a function of changes in temperature is not as well represented by the model (−0.10 for the simulation against −0.25 for the observations) as for AT02 because of the difficulty of the model to correctly represent changes in NO_3^- and NH_4^+ (correlations of −0.30 to −0.40 for the observations and of −0.05 to −0.10 for the model). NO_3^- modeled concentrations are similar in winter (3.7 μ g m^{-3}) and in summer (3 μ g m^{-3}), whereas they are significantly different in the observations (4.7 μ g m^{-3} in winter against 1.1 μ g m^{-3} in summer) (see Table 3.4). The differences between modeled and observed concentrations could be due to artifacts in the NO_3^- measurements in summer due to NH_4NO_3 volatility (Hering & Cass, 1999), which would then explain the differences between the modeled and simulated correlations, but it could also result from uncertainties in the simulation, which, as shown in Section 3.3, overestimate NO_3^-. Simulation data show that the negative correlation between temperature and $PM_{2.5}$ is driven by all the PM components (around −0.10 for $SO_4^=$, NO_3^-, NH_4^+, and organic matter, −0.20 for sea salt, and −0.30 for black carbon), except mineral dust (around 0.15). As for AT02, profiles for wind speed and precipitation are identical for all species, except for sea salt.

The AT02 and DE02 stations show negative correlations between temperature and $SO_4^=$. $SO_4^=$ concentrations depend on SO_2 emissions (shown in Figure 3.6), which may vary by season, and on the

conversion rate of SO_2 to $SO_4^=$, which is greater in summer when oxidant concentrations are greater and kinetics faster. SO_2 emissions are greater over Poland in winter than in summer (i.e., when temperatures are low, which suggests that $SO_4^=$ concentrations at these two stations are governed more by SO_2 emissions than by the kinetics of SO_2 to $SO_4^=$ conversion). A first reason comforting this hypothesis is that the SO_2 emission impact is more visible at the AT02 station (correlation of around −0.3), which is closer to the SO_2 emission sources, than at the DE02 station (correlation of around −0.15). Furthermore, daily mean concentrations of $SO_4^=$ are higher at these stations in winter (3.1 μ g m^{-3} at AT02 and 2.2 μ g m^{-3} at DE02) than in summer (2.2 μ g m^{-3} at AT02 and 1.6 μ g m^{-3} at DE02; see Table 3.4); these seasonal differences demonstrate that $SO_4^=$ concentrations at AT02 and DE02 are more affected by SO_2 emissions than by the kinetics of $SO_4^=$ formation.

Table 3.4: Mean simulated (sim) and observed (obs) concentrations of sulfate, nitrate, and ammonium in winter (December-January-February, DJF) and in summer (June-July-August, JJA) at the five stations, expressed inμ g m^{-3} .

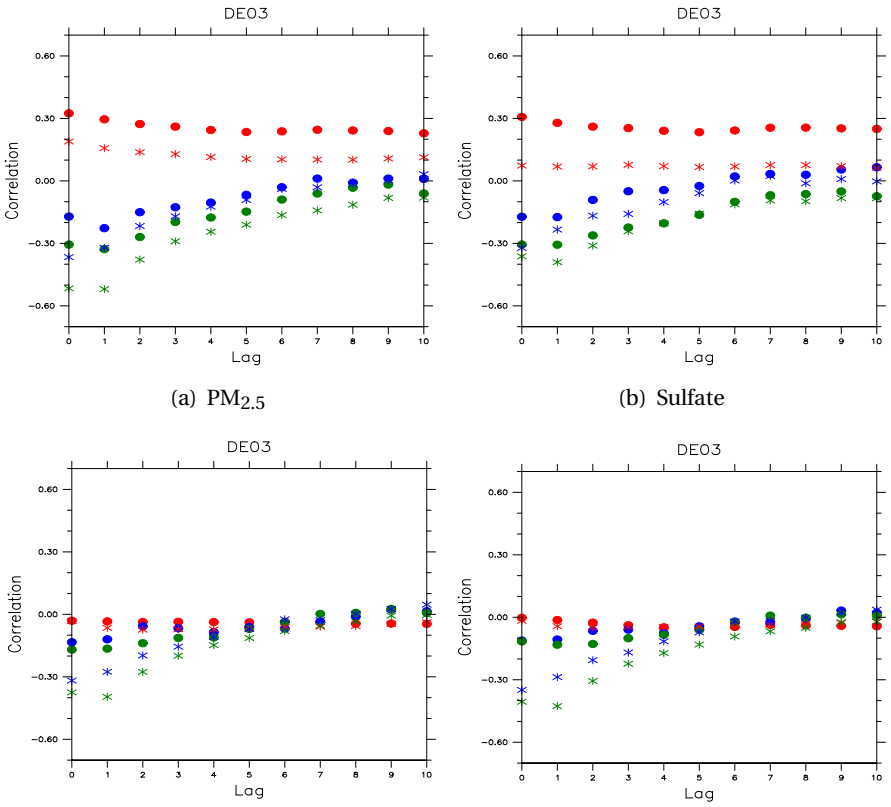
	$SO_4^=$				NO_3^-				NH_4^+			
	sim		obs		sim		obs		sim		obs	
	DJF	JJA	DJF	JJA	DJF	JJA	DJF	JJA	DJF	JJA	DJF	JJA
AT02	3.1	2.2	3.5	2.5	4.9	1.8	2.0	0.70	2.4	1.3	1.5	0.8
DE02	2.2	1.6	3.5	2.7	3.7	3.0	4.7	1.1	1.8	1.4	2.0	0.7
DE03	1.4	1.5	1.0	2.1	3.7	3.2	0.8	0.9	1.5	1.4	0.4	0.5
IT01	1.2	2.0	1.8	3.5	4.1	1.8	4.4	2.25	1.6	1.2	1.7	1.4
NO01	0.9	1.1	1.0	1.5	1.3	0.7	0.7	0.8	0.7	0.5	0.4	0.4



(a) Winter (b) Δ = Winter - Summer

Figure 3.6: Average sulfur dioxide emissions over Europe in winter, and difference (Δ) between winter and summer, expressed in μg m^{-2} h^{-1}.

Figure 3.7 shows the results for the DE03 station in Germany. The general evolution of $PM_{2.5}$ as a function of changes in meteorology is well represented by the model: the correlation coefficients for the simulation and observations have similar profiles, but they differ by about 0.10. The model correctly reproduces the evolution of $SO_4^=$ as a function of changes in precipitation and wind speed. The modeled correlations for $PM_{2.5}$ and its components versus precipitation are between −0.2 and −0.35 at lag = 0 or +1 compared to observed correlations between −0.1 and −0.2 also at lag = 0 or +1. The modeled correlations for $PM_{2.5}$ and its components versus wind speed are between −0.4 and −0.5 at lag = 0 or +1 compared to observed correlations between −0.15 and −0.3 also at lag = 0 or +1. The correlations with temperature and precipitation show better agreement for $PM_{2.5}$ and $SO_4^=$ than for NO_3^- and NH_4^+.



(a) $PM_{2.5}$ (b) Sulfate

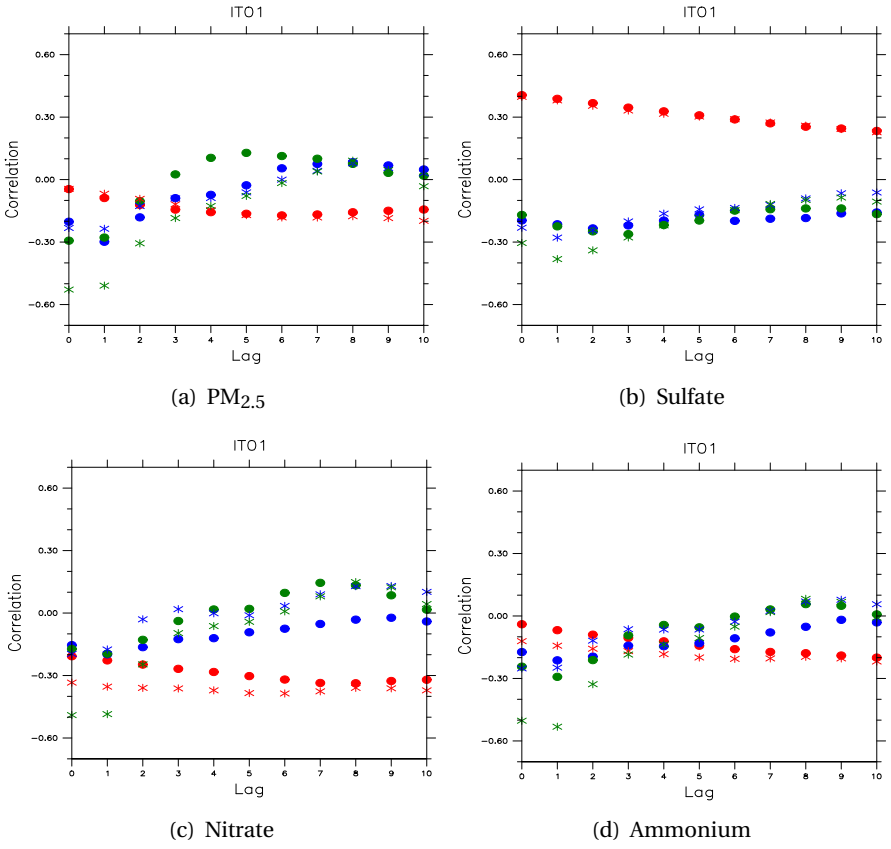
(c) Nitrate (d) Ammonium

Figure 3.7: Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at DE03 (2006-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot.

NO_3^- modeled concentrations are four times greater than the observations, which may be the result of the overestimation of NO_3^- by the model and/or negative artifacts in the measurements. The model overestimates the correlation between wind speed and NO_3^- and NH_4^+, but it correctly reproduces the low correlation between temperature and both NO_3^- and NH_4^+. Simulation data show that the positive correlation between temperature and $PM_{2.5}$ is the result of low positive correlations with $SO_4^=$ (0.05), mineral dust (0.20), and organic matter (0.25) and of low negative correlations with NH_4^+ (−0.05), NO_3^- (−0.05), black carbon (−0.25), and sea salt (−0.15). The correlation between $SO_4^=$ and temperature is positive (+0.3). This result is opposite to those at AT02 and DE02. It reflects the fact that this station is remote from large SO_2 emission sources that show strong seasonal variability and that it is impacted by SO_2 sources with low seasonal variability (e.g., maritime traffic). The fact that the model correctly reproduces this opposite response suggests that it represents the relationship between meteorology and $SO_4^=$ formation during long-range transport correctly. The effect of wind speed and precipitation on concentrations of $PM_{2.5}$ and its components is similar to those at the previous stations.

Figure 3.8 presents correlations for the IT01 station in Italy. The evolution of $PM_{2.5}$ as a function of changes in temperature and precipitation is well represented by the model; for wind speed, the correlation coefficient has the same profile for the simulation and observations but differs by around 0.30 with the model overestimating the strength of the anticorrelation. For a lag equal to or greater than 3, the correlation between wind speed and $PM_{2.5}$ is positive (up to 0.15 for a lag equal to 5). This profile, which differs from the other stations, is driven by NO_3^- and NH_4^+ and is well represented by the

model. The model correctly reproduces the evolution of $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+ as a function of changes in temperature and precipitation (although the strength of the correlation between precipitation and NO_3^- is slightly underestimated by the model). The correlation between $SO_4^=$ and temperature is positive as for DE03 and therefore shows a relationship opposite to that obtained at AT02 and DE02. The model reproduces this correlation perfectly. The model overestimates the strength of the anticorrelation between wind speed and NH_4^+ or NO_3^-. Simulation data show that the negative correlation between temperature and $PM_{2.5}$ is driven by NH_4^+ (−0.2), NO_3^- (−0.35), black carbon (−0.5), sea salt (−0.15), and organic matter (−0.2).



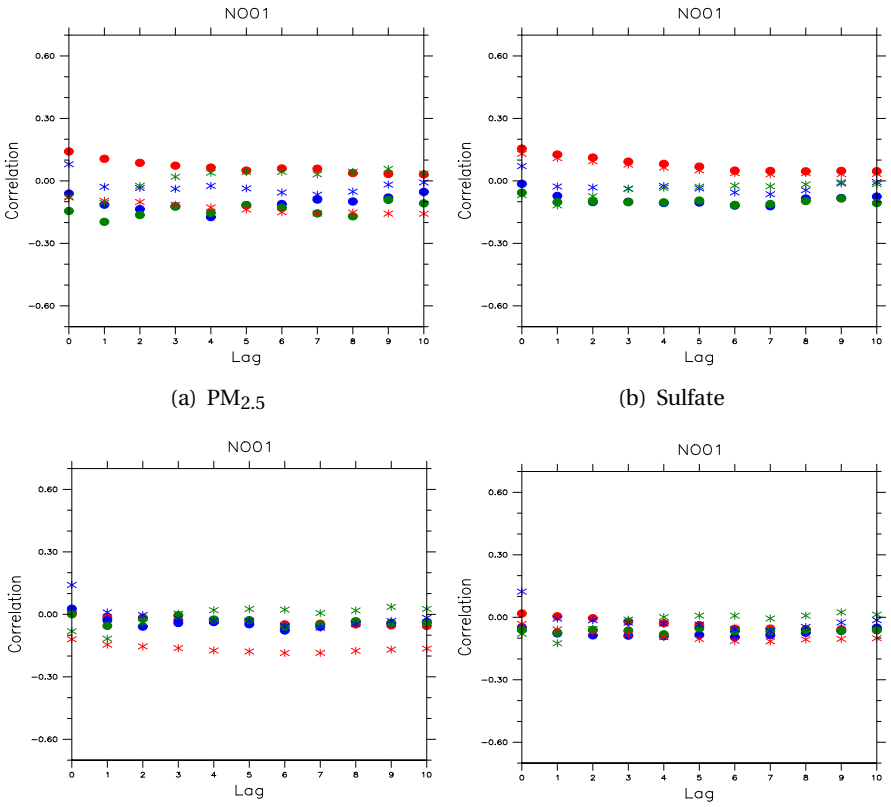
(a) $PM_{2.5}$ (b) Sulfate

(c) Nitrate (d) Ammonium

Figure 3.8: Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at IT01 (2007-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot.

Correlations between NO_3^-/NH_4^+ and wind speed present large differences between the observations and the simulation at the AT02, DE02, DE03, and IT01 stations. Simulated NO_3^- is overestimated, which is a recurring issue in PM modeling over Europe. Moreover, there is less NO_3^- in summer than in winter in the simulation, and significantly less at some stations (−63 % AT02, −20 % at DE02, −14 % at DE03, and −56 % at IT01, see Table 3.4). The correlations obtained with the model are strong and may reflect the availability of daily and gridded data. These strong correlations may not be seen in the observations because of the lower concentrations of NO_3^- in the measurements, especially in summer, and the fact that observations are not always available everyday.

Figure 3.9 presents results for the NO01 station in Norway. The evolution of $PM_{2.5}$ as a function of changes in temperature is not well represented (0.1 for the observations versus −0.1 for the simulation as a consequence of the performance for NO_3^-). In the observations, the dependence of $PM_{2.5}$ on



(a) $PM_{2.5}$ (b) Sulfate

(c) Nitrate (d) Ammonium

Figure 3.9: Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at NO01 (2002-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot.

temperature is driven by that of $SO_4^=$ and NH_4^+ because NO_3^- shows very low correlations. The correlations between $PM_{2.5}$ and precipitation or wind speed are very low in the observations, which is a major difference with the four other sites. The model correctly reproduces this behavior with negative but low (between -0.15 and 0) correlations compared to those obtained at the other stations. The evolution of $SO_4^=$ as a function of changes in meteorology is well represented, although the strength of the correlations is slightly overestimated for precipitation and wind speed. NO01 correlations are smaller in absolute value than the correlations at the other stations in both observations and simulation, especially for NO_3^- and NH_4^+. This can be explained by the fact that $PM_{2.5}$ observed mean concentrations at NO01 (4.4 μ g m^{-3}) are significantly lower than those at most of the other stations (19.9 μ g m^{-3} at AT02, 12.9 μ g m^{-3} at DE02, 5.9 μ g m^{-3} at DE03, and 22 μ g m^{-3} at IT01), added to the fact that there are significantly fewer $PM_{2.5}$ data at the NO01 station compared to the four other sites.

The positive correlations between temperature and $SO_4^=$ at DE03, IT01, and NO01 suggest that atmospheric oxidation of SO_2 (favored by faster kinetics at higher temperatures and greater oxidant concentrations in summer) dominates over greater SO_2 emissions (expected with low temperatures in Eastern Europe, see Figure 3.6). The fact that there are no large sources of emissions around these stations (Figure 3.6) and that daily mean concentrations of $SO_4^=$ are higher in summer (1.5 μ g m^{-3} at DE03, 2.0 μ g m^{-3} at IT01, and 1.1 μ g m^{-3} at NO01) than in winter (1.4 μ g m^{-3} at DE03, 1.2 μ g m^{-3} at IT01, and 0.9 μ g m^{-3} at NO01) comforts this hypothesis.

This dynamic evaluation needed to be performed on stations that provide daily data of $PM_{2.5}$ and its

components for a common period of over at least a year. There requirements were meant to increase the significance of the statistical indicators. Since $PM_{2.5}$ measurements are relatively recent in Europe, the number of stations meeting these requirements is small, which is a limitation of this study. Therefore, one should be cautious not to extrapolate the model dynamic performance to regions far remote from these stations. Nevertheless, the ability of the model to reproduce the effect of meteorology on $PM_{2.5}$ and its inorganic components is satisfactorily characterized at several stations, which are located in various parts of Europe and which provide different types of responses.

3.5 Conclusions

A 9 year air quality simulation has been conducted over Europe with the Polyphemus/Polair3D CTM. The results of the simulation were compared with available EMEP measurements and both an operational/diagnostic evaluation and a dynamic evaluation (with respect to meteorology) were conducted.

Modeled $PM_{2.5}$ concentrations vary over Europe by a factor of 6, from high concentrations of 36 μ g m^{-3} over northern Italy to low concentrations of 6 μ g m^{-3} over Scandinavia). $PM_{2.5}$ composition varies also significantly. For example, the $PM_{2.5}$ $SO_4^=$ fraction is highest in Eastern Europe, the NO_3^- fraction is highest in Central Europe, and the organic fraction is highest in Scandinavia, Portugal, eastern France, and Eastern Europe.

The operational/diagnostic evaluation shows that O_3 meets the model performance criteria and that $PM_{2.5}$, PM_{10}, and $SO_4^=$ meet the performance goals. NO_3^- and NH_4^+ are overestimated by the model; NH_4^+ meets the performance criteria, but NO_3^- does not. The correlation coefficients between simulated and observed data are 63 % for O_3, 57 % for PM_{10}, 59 % for $PM_{2.5}$, 56.5 % for $SO_4^=$, 58 % for NH_4^+, and 42 % for NO_3^-. The comparison with other recent 1 yr model simulations over Europe shows that all models overestimate NO_3^- and that the bias for Polair3D is comparable to the bias for WRF/Chem, but greater to that for CHIMERE. The performance for $PM_{2.5}$, $SO_4^=$, and NH_4^+ is comparable to that of the other models.

The dynamic evaluation shows that the evolution of $PM_{2.5}$ as a function of changes in meteorology is well represented for precipitation and wind speed overall, although the model tends to overestimate the $PM_{2.5}$ response to wind speed. Results are mixed for temperature because of the complex relationships between $PM_{2.5}$ components and temperature, but the model shows good agreement for half of the $PM_{2.5}$ stations. The correlations show that the response of $PM_{2.5}$ to changes in meteorology differs according to the location of the station and the meteorological variable considered. Wind and precipitation show mostly a strong negative correlation with pollutants (except for sea salt, for which a positive correlation is modeled) for lags of 0 or 1 day, and a correlation near 0 with a larger day lag. The correlation coefficient is nearly constant for temperature, for any lag and pollutant species. The response of $PM_{2.5}$ and $SO_4^=$ to changes in temperature varies significantly among stations and can be opposite depending on the distance of the station from certain SO_2 emission regions with strong seasonality. These different responses are correctly reproduced by the model. The correlation profiles for observed data at the NO01 station differ from those at the other stations; the model also reproduces these differences correctly.

This dynamic evaluation is limited by the amount of data on $PM_{2.5}$ and its composition over large periods at European stations. For example, the lack of $PM_{2.5}$ chemical composition data in the western part of the domain (i.e., the countries near the Atlantic Ocean: Ireland, France, the United Kingdom, Spain, and Portugal) is a limitation of this study. The results of studies on the impact of meteorology/climate change on $PM_{2.5}$ compositions on that westernmost part of Europe should therefore be

treated with caution. Analyses of correlation between observed temperature and NO_3^- concentrations in the US have shown results that differed from modeled responses of NO_3^- to temperature (Tai et al., 2010). Such analyses in Europe would require conducting the dynamic evaluation by season; however, the observational data set is not sufficient to conduct a meaningful statistical analysis by season. Furthermore, it would be interesting to extend this analysis to carbonaceous $PM_{2.5}$, particulary since particulate organic matter displays a complex relationship to temperature. As the monitoring of $PM_{2.5}$ with chemical speciation increases over Europe, further dynamic evaluations should be conducted to test the ability of air quality models to reproduce the effect of meteorology on $PM_{2.5}$ concentrations and composition. Nevertheless, the results of this study provide the first dynamic evaluation on an $PM_{2.5}$ air quality model with respect to meteorology.

Synthèse et perspectives

☞ **Objectifs**

Le but de ce chapitre est de construire une base de données pseudo-observées de concentrations de $PM_{2.5}$ à l'échelle de l'Europe, puis de l'évaluer d'une part par comparaison aux observations fournies par le réseau EMEP, et d'autre part en termes de réponse de ces observations aux changements météorologiques.

☞ **Méthodes**

- Le modèle Polyphemus/Polair3D a été utilisé pour simuler 9 années (2000-2008) de concentrations de $PM_{2.5}$ en Europe avec une résolution horizontale d'environ 50 km et 14 niveaux verticaux (de la surface à 12 km d'altitude). Les données d'entrées du modèle sont fournies par ECMWF pour les variables météorologiques, EMEP pour les émissions anthropiques et MOZART-4 pour les conditions aux limites.
- Nous avons évalué de façon opérationnelle les concentrations de $PM_{2.5}$ et de ses principaux composants inorganiques générées par la simulation aux stations de mesures du réseau EMEP. Nous avons utilisé pour cela les scores classiques : comparaison des moyennes simulées et observées, calcul du coefficient de corrélation entre données simulées et observées, RMSE, MFB et MFE. Nous avons aussi comparé les scores obtenus avec ceux obtenus par d'autres modèles ayant simulé au moins un an de concentrations de particules à l'échelle européenne, ainsi qu'avec les modèles du projet AQMEII.
- Le jeu de données simulées ayant été conçu pour simuler l'impact du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$, il est essentiel de s'assurer que le modèle peut reproduire de manière satisfaisante la réponse des $PM_{2.5}$ et de leurs composants à des changements dans les variables météorologiques. Cette évaluation dynamique permet donc d'examiner la capacité du modèle à reproduire l'évolution des concentrations de PM en réponse à celle des variables météorologiques qui les influencent le plus (température, précipitations et vent). Nous avons donc calculé pour les données observées et simulées la corrélation entre chacune des trois variables météorologiques un jour donné et les concentrations de PM le jour même et pour les 10 jours suivants.

☞ **Évaluation opérationnelle — scores classiques**

Les concentrations simulées de $PM_{2.5}$ sont en moyenne supérieures de 2.6μg m^{-3} aux concentrations observées. Cette différence diminue au fil des années (8.7 μg m^{-3} en 2000, 1.3 μg m^{-3} pour l'année 2008). La RMSE est en moyenne inférieure à la moyenne observée des $PM_{2.5}$ (9.0 contre 13.3 μg m^{-3}). Le coefficient de corrélation entre données observées et simulées varie entre 51 et 69%. Parmi les composants inorganiques, le $SO_4^=$ obtient les meilleurs résultats (différence moyenne de 0.1 μg m^{-3} entre données simulées et observées, faible RMSE — 1.7 μg m^{-3} — comparée à la moyenne observée — 2.3 μg m^{-3} —, coefficient de corrélation moyen de 56%). Le modèle surestime respectivement de 1.6 et 0.5 μg m^{-3} les concentrations observées de NO_3^- et de NH_4^+. Les RMSE dépassent les valeurs moyennes observées pour ces deux espèces. Le coefficient de corrélation est faible pour le NO_3^- (41%) et satisfaisant pour le NH_4^+ (58%).

☞ **Évaluation opérationnelle — critères de performance et de but**

Le critère de but de Boylan & Russell (2006) est atteint en 2001, 2003, 2004, 2006 et 2008 pour les $PM_{2.5}$. Pour les autres années, le critère de performance est tout de même atteint. Le critère de but est atteint pour toutes les années pour le sulfate. Le critère de performance est atteint en 2003, 2006, 2007 et 2008 pour le nitrate. En ce qui concerne l'ammonium, le critère de performance est atteint pour les années 2001 à 2005 et le critère de but pour les années 2006 à 2008. La performance du modèle s'améliore avec les années. Un tel progrès s'explique par l'amélioration des données d'entrée du modèle (meilleure résolution des données météorologiques, qualité des inventaires d'émissions et des mesures, utilisation de conditions aux limites propres à l'année simulée à partir de 2004).

☞ **Évaluation opérationnelle — comparaison aux performances d'autres modèles**

Le performance de notre modèle est similaire à celle d'autres modèles (Péré et al., 2010; Pay et al., 2010; Tuccella et al., 2012; Appel et al., 2012) pour les $PM_{2.5}$, le sulfate et l'ammonium. Les autres modèles surestiment également le nitrate et l'ammonium. La comparaison avec les modèles participant au projet AQMEII (Solazzo et al., 2012; Sartelet et al., 2012) montre que la performance de notre modèle est comparable sinon meilleure pour les $PM_{2.5}$.

☞ **Évaluation dynamique**

La réponse des $PM_{2.5}$ aux changements de la météorologie diffère sensiblement en fonction des stations et des variables météorologiques étudiées. Avec un décalage journalier nul, le vent et les précipitations présentent une corrélation négative avec les $PM_{2.5}$ et tous ses composants (sauf les sels marins). Cette corrélation tend vers 0 à mesure que le décalage grandit, suggérant que le vent et les précipitations n'ont plus d'influence sur les concentrations de $PM_{2.5}$ au-delà de quelques jours. Le coefficient de corrélation entre température et sulfate est quasi-constant, quels que soient le décalage et les polluants examinés. Ce coefficient peut être positif ou négatif selon les espèces et, pour le sulfate, selon la région étudiée. Les effets des précipitations et du vent sur les PM sont bien reproduits par le modèle, bien qu'ils soient parfois surestimés. Il est plus difficile de représenter correctement la réponse des PM aux variations de température car celle-ci, contrairement aux précipitations et au vent, affecte chaque composant des $PM_{2.5}$ d'une manière différente. Les changements de signe dans la réponse des PM aux variations de la température sont toujours bien reproduits par le modèle aux différentes stations.

☞ **Incertitudes**

La surestimation des concentrations de nitrate et d'ammonium constitue le principal défaut de cette simulation. Celle-ci peut être due à plusieurs facteurs : la légère sous-estimation du sulfate, qui pourrait conduire à une plus grande formation du nitrate d'ammonium, la volatilisation du nitrate d'ammonium des filtres utilisés pour les mesures, ou encore la variation temporelle de l'ammoniac, qui reste encore mal connue et qui est, par conséquent, une grande source d'incertitudes. La performance du modèle pour le nitrate et l'ammonium est cependant comparable à celle des autres modèles, qui peinent également à bien simuler les concentrations de ces deux espèces. Le faible nombre de stations utilisé pour l'évaluation dynamique constitue également une limite.

☞ **Perspectives**

L'application principale des modèles de qualité de l'air est l'étude de scénarios d'émissions sur la qualité de l'air (par exemple, études d'impact et prospectives). Les évaluations dynamiques de ces modèles ont donc été jusqu'à présent limitées à l'effet des émissions de polluants atmosphériques primaires sur les concentrations de polluants amosphériques secondaires (ozone, $PM_{2.5}$). Ce travail constitue ainsi la première évaluation dynamique quantitative d'un modèle de qualité de l'air concernant l'effet de la météorologie sur les $PM_{2.5}$ et leurs composants. Ces résultats prometteurs justifient l'utilisation des résultats du modèle pour étudier l'effet du changement climatique sur les $PM_{2.5}$ dans le prochain chapitre, mais soulignent aussi les incertitudes associées à l'effet de la température sur les composants semi-volatils des $PM_{2.5}$.

Chapitre 4

Une méthode statistique pour étudier les relations entre $PM_{2.5}$ et variables météorologiques et son application au changement climatique

Sommaire

Résumé **93**

4.1 Introduction **97**

4.2 Data and methods **99**

4.2.1 $PM_{2.5}$ pseudo-observations and meteorological variables over Europe 100

4.2.2 Weather types 101

4.2.3 The statistical algorithm 103

4.3 Evaluation of the algorithm over the learning period **107**

4.4 Application to the effect of climate change **109**

4.4.1 Climate change scenarios 109

4.4.2 Future **$PM_{2.5}$** over Europe 110

4.4.3 Discussion 115

4.5 Conclusions **121**

Synthèse et perspectives **125**

Résumé

De nombreuses études ont d'ores et déjà modélisé l'impact du climat et/ou du changement climatique sur les concentrations d'ozone et de $PM_{2.5}$ à l'échelle du continent nord-américain. Ces dernières années, de plus en plus de travaux similaires sont également menés à l'échelle du continent européen. Cependant, la majorité de ces travaux se concentre sur l'ozone ou n'isole pas l'effet du changement climatique de celui de l'évolution des émissions polluantes. Cette problématique reste ainsi encore relativement peu examinée en Europe.

Le but de ce chapitre est donc d'étudier, à l'aide d'une méthode statistique, l'impact du changement climatique seul sur les concentrations de $PM_{2.5}$ en Europe aux horizons 2050 et 2100. Cette méthode utilise une représentation de la météorologie basée sur les types de temps, et a déjà été employée par le passé dans les domaines de l'hydrologie et de l'éolien. Le principe est de trouver une relation permettant d'estimer les concentrations observées de $PM_{2.5}$ à partir des types de temps et de quelques variables météorologiques, puis de projeter cette relation sur les scénarios de climat futur. Nous désignons par *période d'apprentissage* la période sur laquelle nous établissons, puis évaluons la relation entre $PM_{2.5}$ et météorologie (2000-2008 dans le cadre de cette thèse). Pour ce faire, nous utilisons les types de temps construits dans le Chapitre 2, les concentrations de $PM_{2.5}$ simulées et évaluées dans le Chapitre 3 en guise de pseudo-observations, et quatre variables météorologiques de surface (pression, température, vent et précipitations) issues des réanalyses NCEP et ECMWF.

La relation entre concentrations de $PM_{2.5}$, types de temps et variables météorologiques est établie en deux étapes : une étape de régression, puis une étape de ré-échantillonnage, appelée aussi étape des analogues. Cette relation doit être définie spécifiquement pour chaque saison (DJF, MAM, JJA et SON) car la circulation atmosphérique aux moyennes latitudes diffère selon les périodes de l'année.

L'étape de régression consiste à résoudre une équation de régression linéaire, dont la variable expliquée est la série temporelle des concentrations de $PM_{2.5}$ en un point géographique (x, y) donné, et dont les variables explicatives sont, d'une part, les séries temporelles de pression, de température, du vent et des précipitations au point (x, y) et, d'autre part, la distance, en termes de pression de surface, entre chaque jour de la période d'apprentissage et les centroïdes des types de temps. Afin de garantir une bonne approximation par régression linéaire, il est nécessaire que la variable expliquée ait une distribution normale. Les concentrations de $PM_{2.5}$ ayant une distribution log-normale, la variable expliquée est en réalité le logarithme népérien des $PM_{2.5}$. L'équation de régression est résolue pour tout point géographique (x, y). À l'issue de cette étape, nous obtenons une approximation du logarithme népérien des $PM_{2.5}$ en tout point de l'espace et pour toute la période d'apprentissage $\left(\text{notée } \ln\left(\text{PM}_{2.5}^{\text{P-REG}}(t,x,y)\right)\right)$, ainsi que des coefficients de régression associés à chaque variable explicative pour chaque point de l'espace.

L'étape des analogues consiste à ré-échantillonner les concentrations pseudo-observées de $PM_{2.5}$ sur la période d'apprentissage. Soit t un jour de la période d'apprentissage dont on cherche à estimer les concentrations de $PM_{2.5}$. Cette estimation se déroule de la façon suivante :

- détermination du type de temps observé le jour t, noté WT_t ;
- création du sous-ensemble E_t contenant tous les jours de la période d'apprentissage pour lesquels le type de temps WT_t est observé, à l'exception de ceux qui se trouvent dans la même année que t. Cette étape permet d'obtenir un sous-ensemble de jours ayant une circulation atmosphérique semblable à celle observée le jour t, tout en s'assurant qu'il ne contienne ni le jour t ni un de ses jours voisins ;
- pour tout jour j appartenant au sous-ensemble E_t, calcul de la corrélation spatiale entre les cartes $\ln\left(\text{PM}_{2.5}^{\text{P-REG}}(j,x,y)\right)$ et $\ln\left(\text{PM}_{2.5}^{\text{P-REG}}(t,x,y)\right)$. Cette corrélation spatiale est maximale pour un jour noté $j_{\max}$;
- la valeur estimée (reconstruite) des concentrations de $PM_{2.5}$ pour le jour t est la valeur observée des $PM_{2.5}$ pour le jour $j_{\max}$: $\text{PM}_{2.5}^{\text{P-REC}}(t,x,y) = \text{PM}_{2.5}^{\text{SIM}}(j_{\max},x,y)$.

Cet algorithme est ainsi répété pour chaque jour de la période d'apprentissage. À l'issue de cette étape, nous obtenons ainsi des concentrations de $PM_{2.5}$ uniquement construites à partir de pseudo-

observations de $PM_{2.5}$, des types de temps et de variables météorologiques sur la période d'apprentissage.

L'erreur relative entre concentrations de $PM_{2.5}$ pseudo-observées et reconstruites varie entre -10 et 12.5%, avec une moyenne de -1.5%. La corrélation mensuelle entre ces deux jeux de données est de 55% en moyenne. Les distributions des deux jeux de données sont identiques. La méthode génère donc des concentrations de $PM_{2.5}$ semblables aux concentrations pseudo-observées.

Cette méthode statistique est applicable à un scénario de climat futur dès lors que celui-ci fournit les quatre variables météorologiques nécessaires à l'équation de régression. De plus, la pression de surface permet d'identifier à quel type de temps de la période d'apprentissage appartient chaque jour de la période future (2020-2049 et 2070-2099 dans le cadre de cette thèse). Il est nécessaire de projeter également la relation sur une période historique fournie par le même modèle météorologique (1975-2004 dans le cadre de cette thèse). Nous pourrons ainsi comparer l'évolution des concentrations de $PM_{2.5}$ obtenues dans le futur par rapport à celles obtenues pour la période historique en admettant que les biais présents dans le modèle fournissant les variables météorologiques s'annulent. Tout comme pour la période d'apprentissage, l'estimation des concentrations de $PM_{2.5}$ se déroule en deux étapes.

Dans l'étape de régression, le logarithme népérien des concentrations de $PM_{2.5}$ sur la période historique (resp. future) est estimé en chaque point de l'espace grâce aux variables explicatives données par le modèle pour le scénario considéré, et grâce aux coefficients de régression calculés pour la période d'apprentissage. Nous obtenons ainsi à l'issue de cette étape une approximation du logarithme népérien des concentrations de $PM_{2.5}$ pour chaque jour de la période historique (resp. future), notée $\ln\left(\mathrm{PM}_{2.5}^{\text{H-REG}}(t,x,y)\right)$ $\left(\text{resp. } \ln\left(\mathrm{PM}_{2.5}^{\text{F-REG}}(t,x,y)\right)\right)$.

L'étape des analogues consiste, pour la période historique, à ré-échantillonner les concentrations de $PM_{2.5}$ de la période d'apprentissage sur la période historique. L'étape des analogues pour la période future est similaire à celle pour la période historique, à la différence que ce sont les concentrations de la période historique qui sont ré-échantillonnées sur la période future.

Deux scénarios climatiques du GIEC sont étudiés : RCP4.5 et RCP8.5. Les concentrations annuelles de $PM_{2.5}$ projetées dans le futur sont inférieures à celles projetées sur la période historique dans le nord et l'est de l'Europe, ainsi qu'en Italie, en Pologne et dans le sud-est de l'Europe (jusqu'à -0.83 μg m^{-3}), quels que soient le scénario et la période considérés. Elles sont supérieures à celles projetées sur la période historique au Royaume-Uni, dans le nord de la France, au Benelux ainsi que dans les Balkans (jusqu'à 0.76 μg m^{-3}). Pour d'autres régions, telle que la péninsule Ibérique ou encore l'Europe centrale, le signe de cette évolution n'est pas systématiquement le même en fonction des scénarios et des périodes futures considérées. Cette évolution est généralement inférieure à la variabilité inter-annuelle des $PM_{2.5}$, à l'exception de la période 2070-2099 pour le scénario RCP8.5, où elle la dépasse. Les évolutions saisonnières montrent de plus forts signaux, pouvant par exemple aller jusqu'à -2.41 μg m^{-3} en Europe de l'est en automne, ou encore +1.22 μg m^{-3} en Europe centrale en hiver, par rapport à la période historique.

Les changements en termes de variables météorologiques entre les périodes historique et futures expliquent une partie des changements projetés en termes de $PM_{2.5}$. Les précipitations (resp. le vent) lessivent (resp. disperse) la plupart des composants des $PM_{2.5}$, à l'exception des sels marins dont la formation et la mise en suspension au-dessus des mers sont favorisées par des conditions météorologiques instables. Sur les côtes, les concentrations de sulfate, dont une petite fraction est contenue dans les sels marins, augmentent avec les précipitations et le vent. La relation entre les composants des $PM_{2.5}$ et la température est plus délicate à décrire et à comprendre. Les concentrations de $SO_4^=$ diminuent en

hiver (resp. augmentent en été) en réponse à l'augmentation de la température. Ceci peut s'expliquer, en hiver, par la diminution des besoins en chauffage qui génère des émissions de SO_2 et, en été, par une oxydation plus rapide du SO_2 en conséquence de températures plus élevées. Les concentrations de NO_3^- et de NH_4^+ diminuent également dans la plupart des régions d'Europe car le nitrate d'ammonium est transféré en phase gazeuse à des températures plus élevées. Les concentrations de sels marins diminuent en réponse à l'augmentation de température. Les concentrations de matière organique diminuent (resp. augmentent) principalement en hiver (resp. en été), montrant que les températures élevées pour cette saison favorisent la volatilisation des composés organiques semi-volatils (resp. les émissions biogéniques). La température ne semble en revanche pas influencer beaucoup les concentrations de poussières minérales et de BC. Si les changements en termes de variables météorologiques expliquent sur de nombreuses régions les changements en termes de concentrations de $PM_{2.5}$ et de ses composants, ceci n'est pas systématiquement le cas partout et pour toutes les saisons, suggérant que d'autres processus interviennent également.

Nous avons donc exprimé les changements en termes de concentrations de $PM_{2.5}$ comme la somme des changements dus aux modifications inter-types (fréquence des types de temps), à ceux dus à des changements intra-types et d'un terme résiduel. Cette décomposition a permis de mettre en avant : (i) que le terme résiduel est négligeable, (ii) que les changements sur les régions bordant l'océan Atlantique (péninsule Ibérique, Royaume-Uni et Norvège) sont plus souvent dus aux modifications des fréquences des régimes de temps que les autres régions, (iii) que dans beaucoup de régions, les changements inter et intra-types sont du même ordre de grandeur. Ce dernier point suggère que la relation entre circulation atmosphérique et types de temps peut évoluer dans le futur, modifiant a fortiori l'état moyen des variables météorologiques et des concentrations de $PM_{2.5}$ à l'intérieur des types de temps (changements intra-types). Les changements dans les concentrations de $PM_{2.5}$ dus au changement climatique sont généralement moindres que la variabilité inter-annuelle de ces concentrations sauf pour le scénario RCP8.5 pour la période 2070-2099. Néanmoins, l'effet du changement climatique est suffisamment important (près de 1 μg m^{-3}) pour influencer la capacité des États à respecter les seuils règlementaires.

Bien que des incertitudes persistent concernant ces résultats, cet algorithme offre une nouvelle façon d'étudier l'influence du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$ et permet de s'affranchir des incertitudes liées aux modèles de chimie-transport, dans le cas où un réseau de mesures appropriées existe pour le polluant, la période et le domaine considérés. De plus, le temps de calcul gagné pourra permettre également de pouvoir comparer les résultats obtenus en considérant plusieurs modèles météorologiques différents. Enfin, une telle méthode peut être appliquée à d'autres polluants (e.g., ozone, PM_{10}, ...), ainsi que sur d'autres régions du globe. Les résultats de cette approche seront d'autant plus robustes si la région examinée dispose d'un vaste réseau d'observations du polluant étudié.

Ce chapitre est constitué de :
Lecœur, È., Pagé, C., Seigneur, C., & Terray L., **A statistical method to estimate $PM_{2.5}$ concentrations from meteorology and its application to the effect of climate change.** *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, in press (doi : 10.1002/2013JD021172).

4.1 Introduction

Air pollution is strongly sensitive to meteorological conditions and is, therefore, likely to be affected by climate change. Among air pollutants of current public health concern, fine particulate matter with an aerodynamic diameter less than 2.5 μm ($PM_{2.5}$) is of particular interest because it is a complex mixture of particles of different sizes and chemical compositions, and its relationship to meteorological variables can, therefore, be complex. $PM_{2.5}$ includes primary components, which are directly emitted in the atmosphere from various anthropogenic and natural sources (e.g., road traffic, construction sites, sea salt, soil dust, fires), and secondary components, which are formed in the atmosphere via chemical reactions. Nitrate (NO_3^-), sulfate ($SO_4^=$), and ammonium (NH_4^+) are the major secondary inorganic components of $PM_{2.5}$; in Europe, they typically account for 3 to 8 μg m^{-3} of $PM_{2.5}$ annual concentrations at regional sites and urban areas and up to 4 to 13 μg m^{-3} in intensively industrialized regions or heavily polluted areas (Querol et al., 2004). Carbonaceous PM includes both primary components such as black carbon (BC) and some organic compounds, and secondary components, which comprise a large number of organic compounds of anthropogenic and biogenic origins. In Europe, carbonaceous $PM_{2.5}$ annual concentrations range from about 1 μg m^{-3} in the rural background to over 20 μg m^{-3} at monitoring sites located near traffic (Querol et al., 2004). Many $PM_{2.5}$ compounds are semivolatile, which implies that they partition between the gas phase and the particulate phase as a function of temperature, relative humidity, and $PM_{2.5}$ composition and concentration.

All the studies focusing on the impact of climate change alone on $PM_{2.5}$, including this one, are summarized in Table 4.1. Jacob & Winner (2009) reviewed a number of studies that used chemical-transport models (CTMs) driven by general circulation models (GCMs) to investigate the effects of climate change on air quality. Many studies pertained to North America (Steiner et al., 2006; Dawson et al., 2007; Zhang et al., 2008; Mahmud et al., 2008; Chen et al., 2009; Dawson et al., 2009; Tai et al., 2010; Mahmud et al., 2010; Jiang et al., 2010; Lam et al., 2011; Kelly et al., 2012; Tai et al., 2012a,b; Singh & Palazoglu, 2012). This large body of studies for North America is in part due to the fact that $PM_{2.5}$ regulations exist in the U.S. since 1997 and in Canada since 2000, whereas $PM_{2.5}$ has only been regulated in Europe in 2008. Moreover, such research has been a priority in North America, especially in the U.S. Accordingly, an increasing number of studies now focus on Europe (Jiménez-Guerrero et al., 2011, 2012; Galindo et al., 2011; Manders et al., 2012; Hedegaard et al., 2013). These studies agree on the effect of the major meteorological variables on $PM_{2.5}$ concentrations. First, precipitation removes all $PM_{2.5}$ components from the atmosphere. Second, increased wind speed leads to changes in transport and dilution resulting in lower $PM_{2.5}$ but increases emissions of sea salt and soil dust. Third, changes in the planetary boundary layer (PBL) height affect dilution. Fourth, absolute humidity increases $PM_{2.5}$. Finally, temperature favors formation of sulfate, emissions of biogenic volatile organic compounds (VOC) and their oxidation to semivolatile organic compounds (SVOC), but increases SVOC volatility. When the effect of the climate change includes associated changes in anthropogenic emissions, most studies find that annual $PM_{2.5}$ concentrations will decrease in the United States (Tagaris et al., 2007; Avise et al., 2009; Lam et al., 2011; Kelly et al., 2012). However, the results vary when investigating the sole effect of climate change. Dawson et al. (2009) concluded that climate change alone leads to a decrease in January of 0.3 μg m^{-3} and an increase in July of 2.5 μg m^{-3} in the eastern U.S. Kelly et al. (2012) found that climate change will lead to worse air quality compared to current conditions, but Zhang et al. (2008) found a decrease in $PM_{2.5}$ concentrations due to climate change in the U.S. Therefore, there is no consensus on the effect of climate change alone on $PM_{2.5}$ concentrations and the overall agreement on the decrease of $PM_{2.5}$ concentrations in future years appears to be driven by the decrease in emissions of $PM_{2.5}$ and its precursors.

Table 4.1: Review of the studies that have investigated the impact of climate change (alone) on $PM_{2.5}$ concentrations.

References	Domain covered	GCM	CTM	Horizontal resolution	Scenario	Projection	Averaging period	Major findings ($\mu g\ m^{-3}$, except stated otherwise)
Liao et al. (2006), Racherla & Adams (2006)	Global	GISS GCM	GISS GCM	4° × 5°	A2	2100 vs 2000	Annual mean	Central Europe: +1 ($SO_4^=$), U.S.: +0.5-1 (carbonaceous) Eastern U.S.: +1 ($SO_4^=$)
Tagaris et al. (2007)	U.S.	GISS GCM	CMAQ	36 km	A1B	2050 vs 2000	Annual mean	U.S.:-10% ($PM_{2.5}$)
Heald et al. (2008)	Global Urban	AGCM	CAM-Chem	2° × 2.5°	A1B	2100 vs 2000	Annual mean	Eastern U.S.: +0.5 (OM)
Zhang et al. (2008)	U.S.	PNNL-MM5	CMAQ	36 km	A1B	2050 vs 2000	JJA mean	[-8.7; 0] ($PM_{2.5}$), [-4.3; 0] ($SO_4^=$), [-1.8; 0] (OM)
Pye et al. (2009)	Global	GISS GCM III	GEOS-Chem	4° × 5°	A1B	2050 vs 2000	Annual mean	U.S.: [-0.3; 0.3] ($SO_4^=$), [-0.2; 0] (NO_3^-)
Dawson et al. (2009)	U.S	GISS-GCM II	CAMx	4° × 5°	A2	2050 vs 2000	January mean	-0.33 ($PM_{2.5}$), -0.17 ($SO_4^=$), -0.01 (NO_3^-), -0.04 (NH_4^+), -0.04 (SOA), -0.08 (POA)
							July mean	+2.48 ($PM_{2.5}$), +1.37 ($SO_4^=$), +0.03 (NO_3^-), +0.5 (NH_4^+), +0.54 (SOA), +0.03 (POA)
Avise et al. (2009)	U.S.	PCM	CMAQ	36 km	A2	2050 vs 2000	July mean	-1 ($PM_{2.5}$)
Mahmud et al. (2010)	California	WRF	CIT-UCD	8 km	A1B	2050 vs 2000	Annual	[-1.1; -0.6] ($PM_{2.5}$)
Kelly et al. (2012)	North America	CGCM/CRCM	AURAMS	45 km	A2	2050 vs 2000	Annual mean	[-0.5; 1.7] ($PM_{2.5}$)
Tai et al. (2012b)	U.S.	15 IPCC AR4 GCMs			A1B	2050 vs 2000	JJA mean	[-0.6; 0.6] ($PM_{2.5}$)
Jiménez-Guerrero et al. (2012)	Iberian Peninsula	ECHO-G/MM5	CHIMERE	3.75° × 2.5°	A2	2100 vs 2000	Annual mean	+2 ($SO_4^=$), +2.5 (SOA)
Manders et al. (2012)	Europe	RACMO2	LOTOS-EUROS	0.44°	A1B	2050 vs 2000	Annual mean	[-1; 1] (PM_{10})
Colette et al. (2013)	Europe	ISPL-CM5/WRF	CHIMERE	0.5°	RCP2.6 & RCP8.5	2050 vs 2000	Annual mean	[-4.1; -2.3] ($PM_{2.5}$)
Hedegaard et al. (2013)	Northern Hemisphere	ECHAM5	DEHM		RCP4.5	2100 vs 2000	Annual Mean	[-40; 15]% ($PM_{2.5}$)
This work	**Europe**	**CNRM-CM5**	**Polair3D**	**0.5°**	**RCP4.5 & RCP8.5**	**2050 vs 2000 & 2100 vs 2000**	**Annual and seasonal means**	**See below**

Other studies considered climate as a succession of atmospheric situations rather than an ensemble of meteorological variables that can be examined individually. Thishan Dharshana et al. (2010) established connections between day-to-day variability of sea-level pressure, surface air temperature, precipitation and that of $PM_{2.5}$ concentrations over the U.S. Ménégoz et al. (2010) studied the winter interactions between weather regimes and some $PM_{2.5}$ components ($SO_4^=$, BC, and soil dust) over the North Atlantic European region and showed that atmospheric dynamic processes associated with the different weather regimes can impact sulfate and BC concentrations by up to 25%, and dust concentrations by up to 80%. Tai et al. (2012b) studied the effect of 2000-2050 climate change on $PM_{2.5}$ over the U.S. They first analyzed the 1999-2010 observations of eight meteorological variables to identify the dominant meteorological modes driving $PM_{2.5}$ variability in different regions of the U.S. and their synoptic periods ($PM_{2.5}$ observations came from the U.S. EPA Air Quality System over 1999-2010). They projected the changes in frequency of these meteorological modes simulated by 15 GCM following the scenario A1B from the Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) and found that general circulation affects $PM_{2.5}$ in the eastern and northwestern U.S., temperature affects $PM_{2.5}$ in the southeastern U.S. (organic matter and nitrate mainly), that vegetation dynamics affects organic matter (OM) in the midwestern and western U.S., and that wildfires affect both organic matter and BC in the northwestern U.S. These approaches are based on the relationships between patterns, such as weather regimes and $PM_{2.5}$ concentrations. Changes in emissions are, therefore, limited to those influenced by meteorological variables (e.g., biogenic emissions, soil dust, sea salt emissions).

Therefore, the goal of this study is to develop a statistical method, based on synoptic climatology, which estimates $PM_{2.5}$ concentrations from a few meteorological variables and to apply it to investigate the impact of climate change on $PM_{2.5}$ concentrations. Such an approach is based on statistics and linear regression, which allows one to perform this experimentation over 30-year periods for both climate and $PM_{2.5}$, to include more scenarios, and to discuss the results on both annual and seasonal bases.

Anthropogenic emissions are kept constant to isolate the effect of climate change alone, but biogenic and sea salt emissions implicitly change with changes in meteorological variables. Here, the estimation of the relationships of $PM_{2.5}$ to major meteorological variables is obtained from a model simulation because of the lack of sufficient $PM_{2.5}$ data over Europe. However, the method is applicable to $PM_{2.5}$ observations (if a sufficient monitoring network exists), which could remove some of the uncertainties associated with semivolatile PM.

The statistical algorithm and the necessary data are presented in Section 4.2. The algorithm is then evaluated in Section 4.3. It is applied to two climate scenarios from the Coupled Model Intercomparison Project Phase 5 (CMIP5) exercise in Section 4.4. Conclusions and recommendations for future work are presented in Section 4.5.

4.2 Data and methods

The algorithm presented here estimates $PM_{2.5}$ concentrations over Europe (see Figure 4.1) for any time period from some specific meteorological variables and from $PM_{2.5}$ observations (or pseudo-observations) over a long past time period. Sections 4.2.1 and 4.2.2 present the meteorological variables needed and an overview of the statistical algorithm, respectively. Finally, the algorithm is presented in Section 4.2.3.

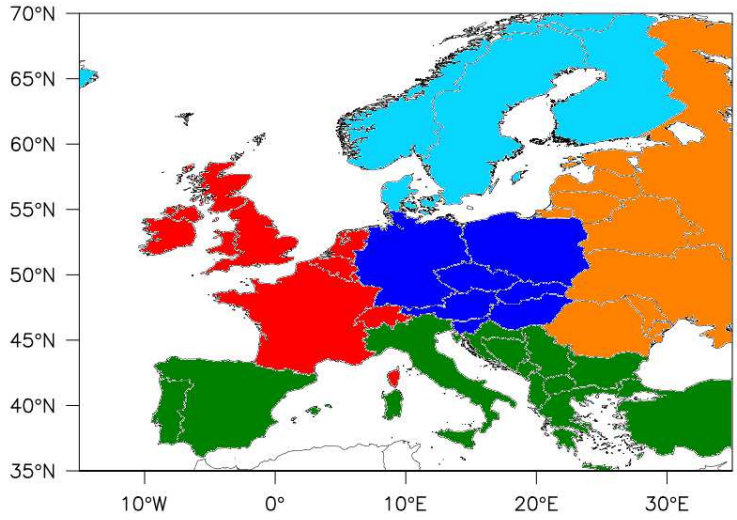


Figure 4.1: Study domain, with highlights of five sub-regions: western Europe in red, central Europe in dark blue, northern Europe in light blue, southern Europe in green, and eastern Europe in orange.

4.2.1 $PM_{2.5}$ pseudo-observations and meteorological variables over Europe

The regulation of $PM_{2.5}$ over Europe is recent and does not concern $PM_{2.5}$ speciation. Hence, there is a lack of observed $PM_{2.5}$ concentrations with speciation over a long time period, over the whole Europe, and on a daily basis. Consequently, we use here the results of the 9-year (2000-2008) simulation of Lecœur & Seigneur (2013) as $PM_{2.5}$ pseudo-observations for this statistical method. The long duration of the simulation allows us to assume that the effect of the inter-annual atmospheric variability on the $PM_{2.5}$ concentrations is taken into account, without being influenced significantly by changes in anthropogenic emissions. We have evaluated this simulation by conducting both operational and dynamic evaluations, using available observations from the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) (Lecœur & Seigneur, 2013). On one hand, the operational evaluation showed that the concentrations of $PM_{2.5}$ and its main components (sulfate, nitrate, ammonium, and carbonaceous compounds) are well estimated. In particular, ozone (O_3), $PM_{2.5}$, and $SO_4^=$ meet the performace goal of Boylan & Russell (2006). NO_3^- and NH_4^+ concentrations are overestimated but NH_4^+ still meets the performance criteria (see Table 4.2). The overestimation of NO_3^- and NH_4^+ is the main drawback of the actual CTMs. In the simulation of Lecœur & Seigneur (2013), this overestimation results from a combination of factors. First, artifacts in the measurement methods, due to the volatilization of ammonium nitrate (NH_4NO_3) from filters, can contribute to the model overestimation. Second, the overestimation of NO_3^- could be due to the slight underestimation of $SO_4^=$ by the model, because less ammonia is then neutralized by $SO_4^=$, favoring more formation of NH_4NO_3. Also, there is still a significant uncertainty about ammonia emissions, including their magnitude and temporal variability. Finally taking the mean over 5 years to generate pseudo-climatological boundary conditions for aerosols and gases is also a source of uncertainty. The comparison with other 1-year model simulations over Europe showed that all models overestimate NO_3^-. The performance for $PM_{2.5}$, $SO_4^=$, and NH_4^+ is comparable to that of the other models (Lecœur & Seigneur, 2013).

The model also shows satisfactorily results for OM and EC (Couvidat et al., 2012). The dynamic evaluation showed that the response of the simulated $PM_{2.5}$ to changes in meteorology is correctly reproduced by the model. The evolution of $PM_{2.5}$ as a function of changes in meteorology is well represented for precipitation and wind speed overall, although the model tends to overestimate the $PM_{2.5}$ response to wind speed. This overestimation could be due to the fact that measurements at

Table 4.2: Operational evaluation of the model using the correlation coefficient ρ and the relative error e_r between simulated and observed data (%), and the criteria* of Boylan & Russell (2006) for PM and its components (expressed in %).

	$PM_{2.5}$				$SO_4^=$				NO_3^-				NH_4^+			
Years	ρ	e_r	MFB	MFE	ρ	e_r	MFB	MFE	ρ	e_r	MFB	MFE	ρ	e_r	MFB	MFE
2000	51	64	55	62	59	36	28	48	27	255	89	103	48	200	84	89
2001	62	18	25	42	53	4	0	45	29	89	3	93	47	27	1	55
2002	60	31	36	50	60	-7	-6	44	43	64	25	84	51	29	-7	55
2003	62	14	25	45	60	-7	-9	43	52	57	28	76	71	83	43	59
2004	60	10	22	42	57	0	-3	40	39	80	29	83	67	40	-5	52
2005	60	24	33	48	50	-9	-7	45	39	65	6	86	55	50	7	57
2006	53	5	0	40	56	-18	-12	44	51	21	5	71	56	38	23	50
2007	69	30	37	53	57	-5	-3	41	44	53	8	78	61	50	24	47
2008	51	12	25	47	56	-11	-7	39	49	41	-8	75	65	44	17	40
2000–2008	**59**	**20**	**29.8**	**47.4**	**56**	**-4**	**−2.1**	**43.2**	**42**	**80**	**20.5**	**83.2**	**58**	**55**	**20.8**	**56**

*The performance goal (resp. criterion) is met when |MFB| < 30 % (60 %) and MFE < 50 % (75 %) for PM modeling. $\text{MFB} = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\frac{\text{sim}-\text{obs}}{(\text{sim}+\text{obs})/2}$ (%) and $\text{MFE} = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\frac{|\text{sim}-\text{obs}|}{(\text{sim}+\text{obs})/2}$ (%), where N is the number of observed/simulated data at a given station.

the EMEP stations responds to a very local wind speed, which cannot be captured exactly by a model which has a 0.5° (about 50 km) horizontal resolution. The relationship between $PM_{2.5}$ components and temperature is complex and the $PM_{2.5}$ response to changes in temperature varies depending on the station and the PM component. The sign of the response is always well reproduced by the model (Lecœur & Seigneur, 2013). Some uncertainties remain concerning semivolatile species, which is also the case for all the CTM studies mentioned above. Based on these results, we consider that $PM_{2.5}$ concentrations obtained with this simulation are suitable to be used as pseudo-observations to investigate the effects of climate change on $PM_{2.5}$ (Lecœur & Seigneur, 2013).

Four meteorological variables are used as predictors in the first step of the algorithm. We choose to use the pressure at sea level (PSL), the surface air temperature, precipitation, and the surface wind speed for the 2000-2008 period, as they are considered to be the meteorological variables that affect $PM_{2.5}$ concentrations the most (Dawson et al., 2007; Mahmud et al., 2010; Galindo et al., 2011). The PBL height and humidity are also influential but the former is not a meteorological variable per se and the latter is not available in meteorological projections. For the learning period, PSL, temperature, precipitation, and wind speed are given by the ECMWF analyses and reanalyses with the following horizontal resolutions: 1.125° for 2000, 0.36° for 2001-2005, and 0.25° for 2006-2008. The reanalyses at 1.125° were interpolated and those at 0.36° or 0.25° were aggregated to match the same grid as the $PM_{2.5}$ pseudo-observations (0.5° over Europe).

4.2.2 Weather types

The concept of weather regimes was first introduced in the 1950's in synoptic climatology. Weather regimes are recurrent patterns that are representative of the large-scale circulation (LSC) over a specific region. Each weather regime defines a group of days with similar LSC and is closely related to a specific weather over the specific region. Since the atmospheric circulation is not the same over the whole year over the mid- and high-latitudes, these LSC depend on seasons. The four seasons are defined as

follows: winter is noted as DJF for December-January-February, summer as JJA for June-July-August, spring as MAM for March-April-May, and autumn as SON for September-October-November. The most common weather regimes over the North Atlantic and Europe have been defined and analyzed by Vautard (1990). He showed that four recurring weather regimes can be defined per season. Since the local meteorology affects $PM_{2.5}$, so should the weather regimes. For example, Ménégoz et al. (2010) showed that the blocking weather regime in winter, which is chacaracterized by an anticyclonic situation over Europe leads to more BC and $SO_4^=$ concentrations, than those charaterized by a cyclonic situation (e.g., Atlantic Ridge and NAO^-). Thishan Dharshana et al. (2010) have found similar results over the U.S. Weather regimes are built with a classification algorithm, which is performed using the first ten principal components of an Empirical Orthogonal Function (EOF) of a variable that is representative of the LSC (typically PSL). However, common weather regimes are not properly adequate to investigate the impacts of climate on a specific variable such as $PM_{2.5}$ because they do not reflect the meteorological variables that are the most influential for $PM_{2.5}$. In this case, the term *weather types* has been introduced. Weather types are improved weather regimes, in the sense that they are built to be more representative of the effect of meteorology on the variable of interest. We used the software package DSclim, developed by Pagé et al. (2009) to build these weather types. Dsclim provides an innovative statistical downscaling methodology based on weather typing, as an alternative to dynamic downscaling methods, which are very expensive in terms of CPU and disk space. Indeed, statistical techniques do not require much computing since they rely on simple regression analyses between large-scale atmospheric fields and regional-scale fields. This methodology has already been used to provide downscaled climate scenarios over France for many groups in the climate impacts community. The building of weather types is only a part of what this package provides. The classification of the LSC variable is based on a clustering with a k-means automatic partitioning algorithm (Michelangeli et al., 1995). Clusters are randomly initialized in the EOF space. Each day is then attributed to one of those clusters depending on their distance to it. Clusters are then redefined by taking the barycenter of each cluster cloud. This last step is repeated until the barycenters of each cluster cloud do not move anymore between two steps (Michelangeli et al., 1995). It is performed using the first ten principal components of an EOF space composed of both the LSC variable (here the PSL) and a local-scale variable, which has an impact on the variable of interest. Precipitation has been chosen as this locale-scale variable, as many studies emphasize the role of changing precipitation intensity and area on $PM_{2.5}$ concentrations (Racherla & Adams, 2006; Tagaris et al., 2007; Chen et al., 2009; Lecœur & Seigneur, 2013). We could have used another variable, such as temperature. This would have led to different spatial structures, but the method would have stayed the same. Furthermore the effects of precipitation on $PM_{2.5}$ and its components are relatively straightforward and are better understood than those of temperature. In the classification algorithm, each season is treated separately. In the k-means partitioning algorithm, the number of clusters is chosen a priori. In this case, 14 weather types are built per season, which is in agreement with the numbers of clusters listed in the weather type data base (Philipp et al., 2010). The 14 weather types are represented by a map of the PSL anomaly (i.e., the difference between the average PSL for a given weather type and the seasonal average PSL). These weather types are described in Section B.7 in the Appendix. They have each a discriminating power regarding the $PM_{2.5}$ concentrations defined as $\rho = \frac{\text{variance}(PM_{2.5})^{\text{WT}}}{\text{variance}(PM_{2.5})^{\text{season}}}$. The smaller ρ is, the more the weather type (WT) has a discriminating power on the $PM_{2.5}$ concentrations. Therefore, the discriminating power of a weather type regarding $PM_{2.5}$ can be very different from a region to another.

For this classification, we use the NCEP reanalysis over the 1950-2008 period for both PSL and temperature. Precipitation is given by the E-OBS[1] data set over the same period. Thus, each day

[1] http://eca.knmi.nl/download/ensembles/ensembles.php

of the 1950-2008 period is classified to the nearest weather type. The distance between a day and a weather type is computed in terms of PSL. As a day and a weather type are both represented here by their daily maps of pressure, these two maps can be considered as two vectors of dimensions (number of latitude points × number of longitude points). We then compute the euclidian distance between these two vectors.

4.2.3 The statistical algorithm

The statistical algorithm consists of two steps: the regression step and the analog step. This algorithm needs to be developed and evaluated first on a past period (the learning period; here 2000-2008), before being applied to historical and future periods. The regression step for the learning period is fundamental, as it provides the basis for the regression step of historical and future periods. We recall that each season is processed independently in this algorithm.

4.2.3.1 The learning period

The algorithm is developed over the 2000-2008 learning period and subsequently for that same period to check whether the algorithm is able to reconstruct the $PM_{2.5}$ concentrations over the period. Each day of the learning period has pseudo-observed $PM_{2.5}$ concentrations, as well as a daily value of PSL, temperature, precipitation, and wind speed. Moreover, each day of this period is associated with one of the 14 weather types, and is at a certain distance in terms of PSL of each one of the 14 weather types. A similar approach has already been applied to hydrology (Boé et al., 2006) and to surface winds (Najac et al., 2009) in France.

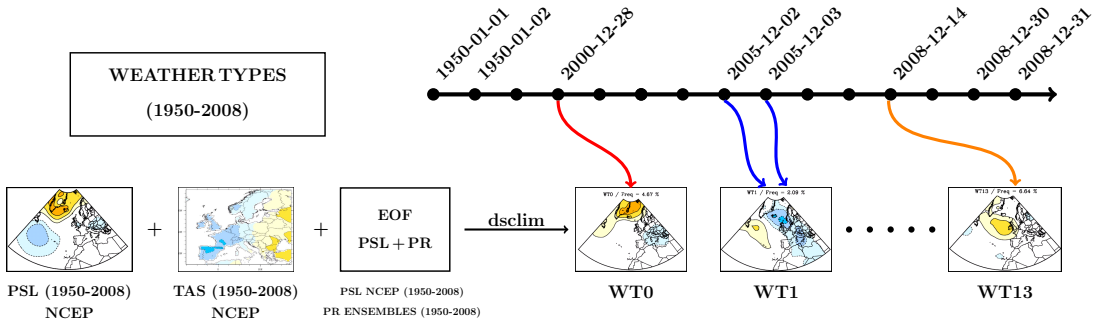


Figure 4.2: Building weather types over the learning period. Pressure (PSL) and temperature (TAS, only for summer) anomalies from NCEP reanalyses are projected on the space composed by the EOF of PSL and of precipitation (PR). Dsclim classifies these anomalies and attributes each day of the 1950-2008 period to one of the 14 WTs.

In the **regression step**, the variable of interest is expressed for any time step with a regression equation whose predictors are variables reflecting the weather types and some meteorological variables that impact the variable of interest. The choice of the variables used in the regression equation is discussed in Section 4.3. It is important that the variable of interest has a normal distribution to use a regression equation. $PM_{2.5}$ concentrations have a log-normal distribution (see Figure 4.7c). Thus, we express the logarithm of the $PM_{2.5}$ concentrations at the location (x, y) for any day t (noted $\ln\left(PM^{p}_{2.5}(t,x,y)\right)$) as a linear combination of the distance of day t to the most discriminating weather types for the location (x, y), noted $d\left(t, WT_i(x,y)\right)$ and of the temperature $(X_1(t,x,y))$, precipitation $(X_2(t,x,y))$, wind speed $(X_3(t,x,y))$, and PSL $(X_4(t,x,y))$ (see Equation 4.1). The first three variables

correspond to those for which the $PM_{2.5}$ model was tested in terms of its ability to reproduce changes in $PM_{2.5}$ due to changes in meteorology (Lecœur & Seigneur, 2013). Since the discriminating power of a weather type depends on location, the number of weather types considered, noted $N(x,y)$, depends on the location (x,y).

$$\begin{pmatrix} \ln\left(PM_{2.5}^{P}(t_0,x,y)\right) \\ \ln\left(PM_{2.5}^{P}(t_1,x,y)\right) \\ \vdots \\ \ln\left(PM_{2.5}^{P}(t_n,x,y)\right) \end{pmatrix} = \sum_{i=1}^{N(x,y)} a_i(x,y) \times \begin{pmatrix} d\left(t_0, WT_i(x,y)\right) \\ d\left(t_1, WT_i(x,y)\right) \\ \vdots \\ d\left(t_n, WT_i(x,y)\right) \end{pmatrix} + \sum_{j=1}^{4} b_j(x,y) \times \begin{pmatrix} X_j(t_0,x,y) \\ X_j(t_1,x,y) \\ \vdots \\ X_j(t_n,x,y) \end{pmatrix} \quad (4.1)$$

After solving this regression equation at each location, we obtain regression coefficients $(a_i(x,y))_{i=1,N(x,y)}$ and $(b_j(x,y))_{j=1,4}$. We use them to approximate the logarithm of the $PM_{2.5}$ concentrations on the present period, noted $\ln\left(PM_{2.5}^{P\text{-}REG}(t,x,y)\right)$, since all the terms on the right-hand side of Equation 4.1 are known.

The **analog step** consists in re-sampling the pseudo-observed $PM_{2.5}$ concentrations over the learning period with the following method. Let t be a day of the learning period (e.g., 31 December 2005 in Figure 4.3) and WT_t (WT2 in Figure 4.3) the associated weather type. We consider the subset E_t of days in the learning period for which WT_t is also observed, excluding all days in the same year as t (so that we make sure not to re-sample day t with itself). Thus, E_t contains all days with similar LSC as t. These days are represented on the right of Figure 4.3. The spatial correlation between the maps $\ln\left(PM_{2.5}^{P\text{-}REG}(t,x,y)\right)$ and $\ln\left(PM_{2.5}^{P\text{-}REG}(j,x,y)\right)$ is computed for all j in E_t. Let j_{max} be the day for which the spatial correlation with t is maximal (j_{max} = 5 December 2008 in Figure 4.3).

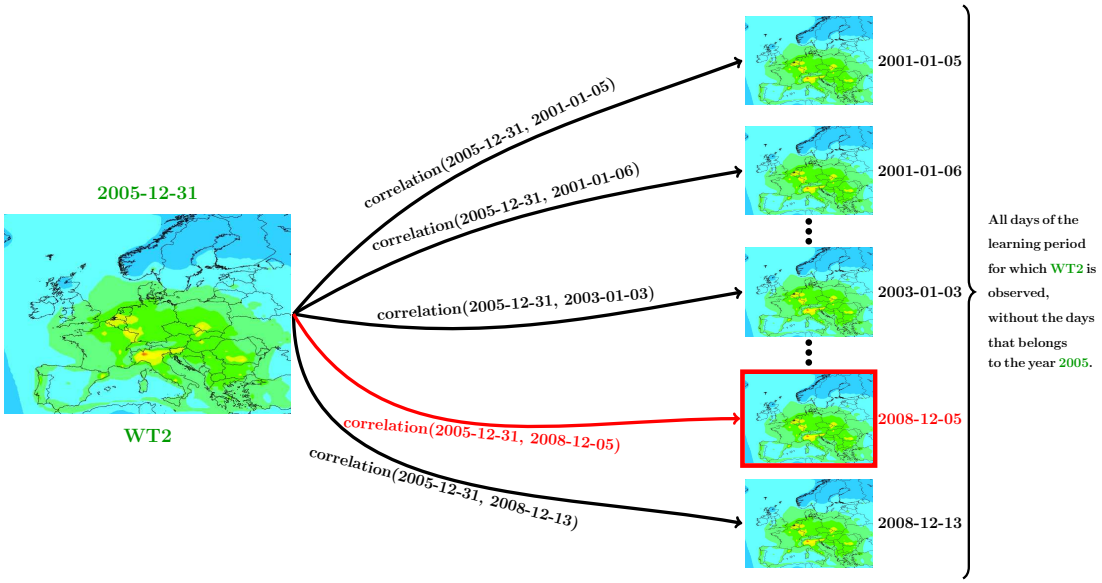


Figure 4.3: Re-sampling $PM_{2.5}$ pseudo-observations over the learning period: finding the analog day of 5 December 2005. All days of the learning period for which WT2 is observed (minus the days belonging to year 2005) are displayed on the right-hand side of the Figure. The spatial correlation between these maps are computed. 5 December 2008 (in red) provides the best correlation.

The pseudo-observed value of the $PM_{2.5}$ concentrations on day j_{max} is attributed to the recon-

structed (REC) value of the $PM_{2.5}$ concentrations for day t (represented by the orange arrow Figure 4.4). By repeating this algorithm for all days of the learning period, we reconstruct a data set of $PM_{2.5}$, denoted by $PM_{2.5}^{\text{P-REC}}(t,x,y)$. As shown in Figure 4.4, several days of the simulated period can be resampled to different days in the reconstructed data set (red arrows).

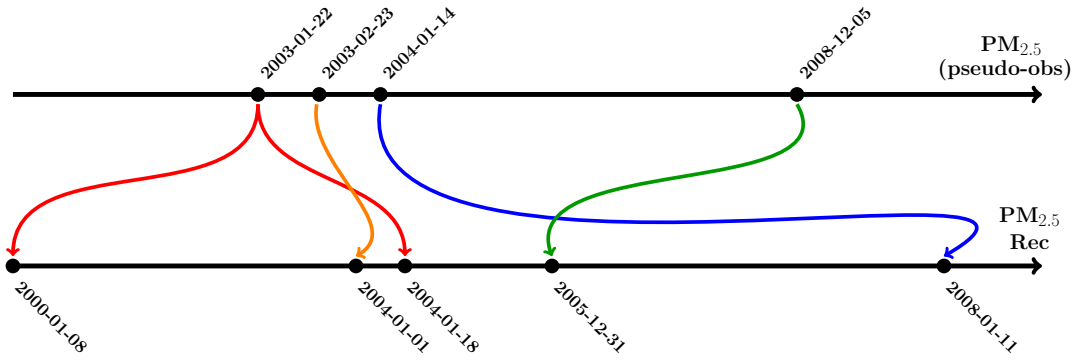


Figure 4.4: Re-sampling $PM_{2.5}$ pseudo-observations over the learning period. The analog day of 31 December 2005 is 5 December 2008 (green arrow), the analog day of both 18 January 2004 and 8 January 2000 is 22 January 2003 (red arrow).

4.2.3.2 Historical period

To avoid bias that can be present in the meteorological model, we need to apply the algorithm over a historical period from the model, before applying it to the future periods. With the PSL and the temperature given by the model over the historical period, we can attribute each day of this period to one of 14 weather types built before. Using the same EOF as in the learning period (see Figure 4.5) ensures that we obtain the same weather types as in the learning period. PSL also allows us to compute the distance in terms of PSL between each day and each one of the 14 weather types. Thus, this algorithm implies a quasi-stationarity hypothesis on the weather types: it is assumed that climate change will only change their frequency, but not the recurring patterns themselves.

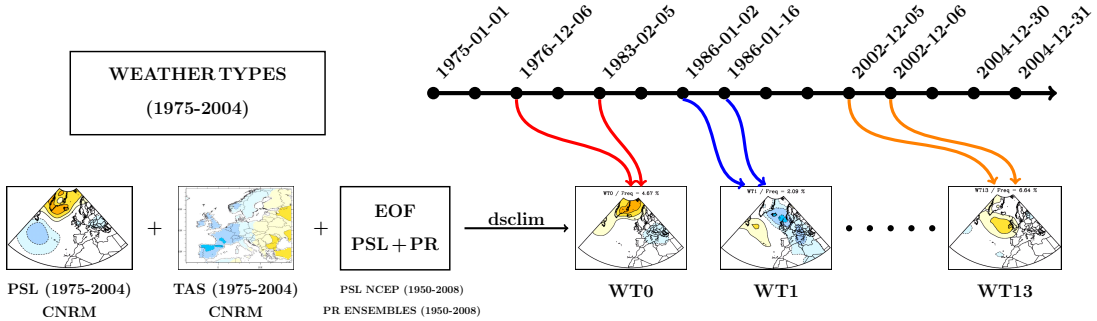


Figure 4.5: Building weather types over the historical period. PSL and TAS (only for summer) anomalies from Centre National des Recherches Météorologiques - Climate Model 5 (CNRM-CM5) (1975-2004) are projected on the space composed by the EOF of PSL and of PR (from the learning period). Dsclim classifies these anomalies and attributes each day of the 1975-2004 period to one of the 14 WTs of the learning period.

The regression coefficients $(a_i(x,y))_{i=1,N(x,y)}$ and $(b_j(x,y))_{j=1,4}$ obtained for the learning period are used to approximate the logarithm of the $PM_{2.5}$ concentrations under these historical conditions, noted $\ln\left(PM_{2.5}^{\text{H-REG}}(t,x,y)\right)$.

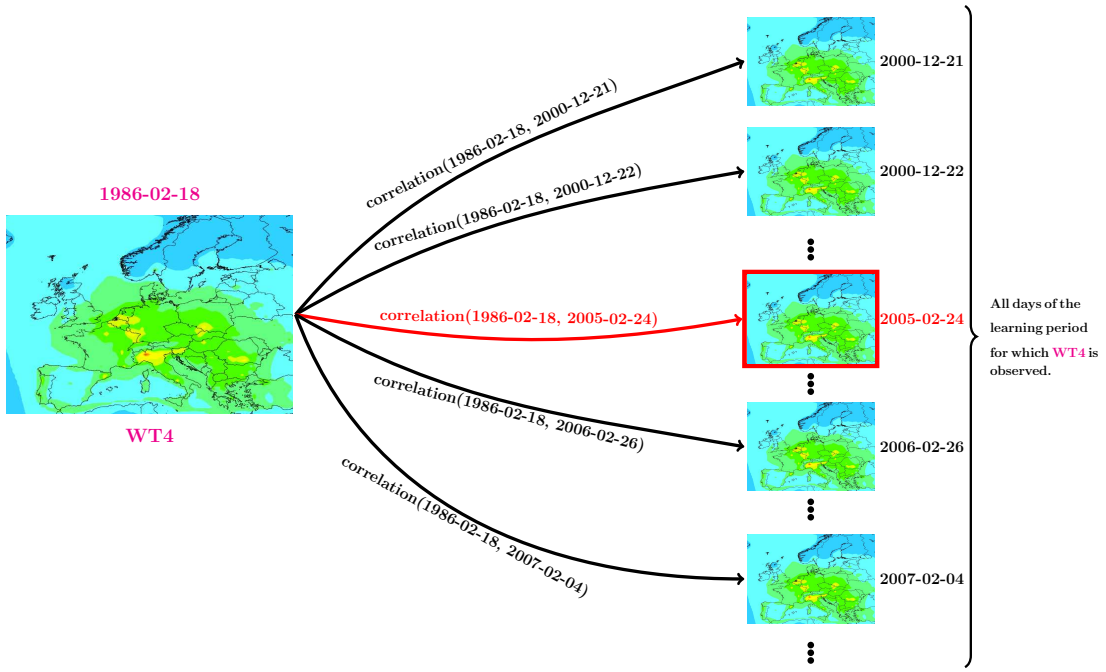


Figure 4.6: Re-sampling $PM_{2.5}$ pseudo-observations over the historical period.

The analog step is similar to that of the learning period. Let t be a day in the historical period (e.g., 18 February 1986 in Figure 4.6) and WT_t the associated weather type (e.g., WT4 in Figure 4.6). We consider the subset E_t of days in the learning period for which WT_t is also observed, so that we have all days in the learning period with the same LSC (represented on the right-hand side of Figure 4.6). The spatial correlation between the maps of $\ln\left(PM_{2.5}^{\text{H-REG}}(t,x,y)\right)$ and $\ln\left(PM_{2.5}^{\text{P-REG}}(j,x,y)\right)$ is computed for all j in E_t. Let $j_{\max}$ (e.g., 5 December 2008 in Figure 4.6) be the day for which the spatial correlation with t is the best. The pseudo-observed value of the $PM_{2.5}$ concentrations on day $j_{\max}$ is attributed to the $PM_{2.5}$ concentrations for day t in the historical period. By repeating this algorithm for all days of the historical period, we get a 30-year data set of $PM_{2.5}$ concentrations, noted $PM_{2.5}^{\text{H}}(t,x,y)$. Historical data sets of PSL, temperature, precipitation, and wind speed were obtained from the CNRM-CM5 model (Voldoire et al., 2013) on a 1.4° × 1.4° horizontal grid. Since $PM_{2.5}$ pseudo-observations are on a 0.5° × 0.5° horizontal grid and since these two data sets need to match the same grid for the regression equation, we need either to aggregate the $PM_{2.5}$ data to 1.4° or to interpolate the CNRM meteorological fields down to 0.5°. Aggregating the $PM_{2.5}$ pseudo-observations from 0.5° to 1.4° would smooth greatly the impacts of anthropogenic emissions on $PM_{2.5}$ concentrations (e.g., urban centers). The 1.4° horizontal grid for the meteorological fields is fine enough to capture synoptical and meso-alpha meteorological gradients, except perhaps in moutainous regions (e.g., the Alps). Therefore, we believe that it is preferable to interpolate the meteorological fields down to 0.5° for our analysis. Thus, the CNRM-CM5 data were interpolated to match the Polyphemus/Polair3D grid, using the `linint2` command[2] from the NCAR Command Language (NCL). This command interpolates from a rectilinear grid to another rectilinear grid using bilinear interpolation.

4.2.3.3 Future meteorological conditions

Under future meteorological conditions, the building of weather types is similar to that of the historical period. The regression coefficients $(a_i(x,y))_{i=1,N(x,y)}$ and $(b_j(x,y))_{j=1,4}$ obtained for the learning period

[2] http://www.ncl.ucar.edu/Document/Functions/Built-in/linint2.shtml

are used to approximate the logarithm of the $PM_{2.5}$ concentrations under these future conditions, noted $\ln\left(PM_{2.5}^{\text{F-REG}}(t,x,y)\right)$.

The analog step is similar to that of the historical period, with the exception that we compute the spatial correlation between the day t that we would like to estimate and all the days of the **historical period** and identify the day of the historical period corresponding to the maximal correlation. The $PM_{2.5}^{H}$ value for that day is then assigned to the day of the future period. By repeating this algorithm for all days of the future period, a data set of future $PM_{2.5}$ concentrations, noted $PM_{2.5}^{F}(t,x,y)$ is created.

Future data sets of PSL, temperature, precipitation, and wind speed were obtained from the CNRM-CM5 model (Voldoire et al., 2013) for two future scenarios RCP4.5 (Thomson et al., 2011) and RCP8.5 (Riahi et al., 2011), and for two 30-year periods (2020-2049 and 2070-2099). These data were interpolated using NCL to match the same grid as the $PM_{2.5}$ pseudo-observations (from 1.4 ° to 0.5° over Europe).

4.3 Evaluation of the algorithm over the learning period

Before applying the statistical algorithm to historical and future meteorological conditions given by the CNRM-CM5 model, we need to ensure that the reconstructed $PM_{2.5}$ data set over the learning period reproduces the original data set satisfactorily. To evaluate the algorithm, we must check the monthly correlation coefficient, the mean relative error (%), and the probability density function (PDF).

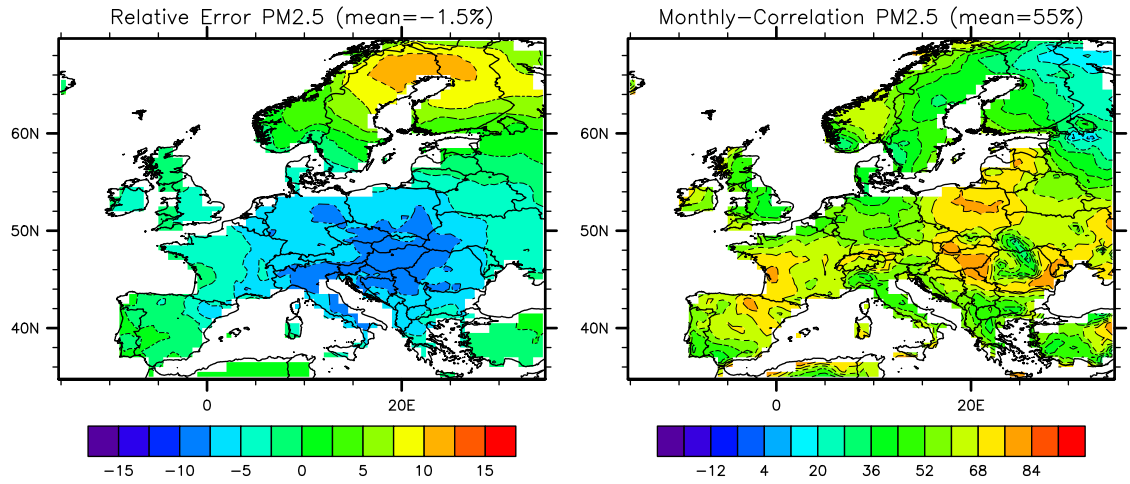
Several predictors for the regression equation were tested. On one hand, we needed to choose which meteorological variables to use among PSL, surface air temperature, surface wind speed, and precipitation. PSL and surface temperature were considered in every case for the regression equation. Evaluations showed that using only precipitation or surface wind speed in addition to these meteorological variables leads to a $PM_{2.5}$ data set that does not have the same PDF as the original $PM_{2.5}$, while using all four variables systematically does. On the other hand, we needed to choose how many weather types to use in the regression equation. Evaluations showed that using the same weather types for all locations is not necessarily efficient, since the discriminating power of weather types depends on location. We had to choose a number of weather types whose discriminating power ρ remains less than or equal to a certain threshold. Several thresholds were tested ranging from 0.3 to 0.8, in addition to considering all weather types.

Table 4.3 shows that increasing the number of weather types improves the reconstructed data set. The monthly correlation coefficient improves from 0.517 to 0.55, as well as the mean relative error (from -2% to -1.5%). Thus, we chose to use the four meteorological variables for the regression equation, as well as all the weather types, since this configuration gives the best results.

Table 4.3: Evaluation of the algorithm on the learning period using different thresholds for ρ. Best results are emphasized in bold.

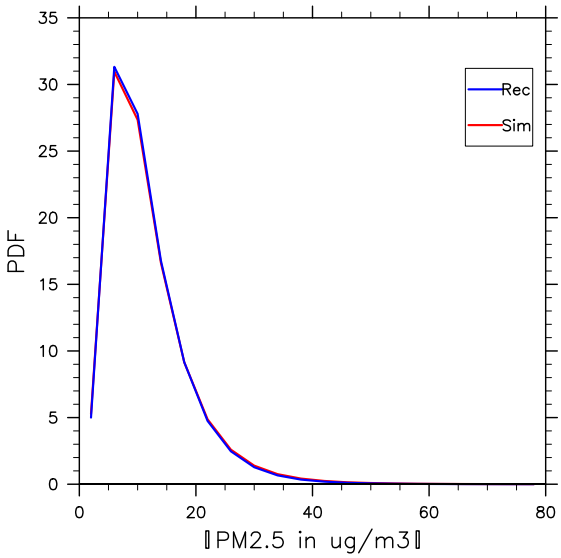
Threshold	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	all WTs
Simulated mean ($\mu g\ m^{-3}$)	12.25	12.25	12.25	12.25	12.25	12.25	12.25	12.25
Reconstructed mean ($\mu g\ m^{-3}$)	11.77	11.79	11.82	11.82	11.82	11.8	11.8	**11.84**
Mean relative error (%)	-2	-1.9	-1.7	-1.7	-1.7	-1.8	-1.8	**-1.5**
Monthly correlation coefficient	0.52	0.517	0.516	0.525	0.529	0.527	0.528	**0.55**

Figure 4.7a presents the mean relative error between the reconstructed and the pseudo-observed $PM_{2.5}$ over the learning period. The relative error is within ±15% over Europe and within ±5% in southern Scandinavia and in the westernmost and easternmost parts of Europe. The reconstructed data set tends



(a) Mean relative error

(b) Monthly correlation coefficient



(c) PDF

Figure 4.7: Mean relative error (4.7a) and monthly correlation coefficient (4.7b) between the reconstructed and the pseudo-observed $PM_{2.5}$ concentrations over the learning period, expressed in %. PDF of the reconstructed (Rec) and pseudo-observed (Sim) $PM_{2.5}$ concentrations ($\mu g\ m^{-3}$), over the learning period, in blue and red respectively (4.7c).

to overestimate $PM_{2.5}$ by 5 to 12.5% in the northernmost part of Europe, which represents an error less than or equal to 1 $\mu g\ m^{-3}$. On the contrary, the reconstructed data set underestimates $PM_{2.5}$ by -5 to -10% over central Europe (from eastern France to Romania), which represents a bias ranging between -1 and -3 $\mu g\ m^{-3}$. Figure 4.7b shows the monthly correlation coefficient between the reconstructed and the pseudo-observed $PM_{2.5}$ concentrations over the learning period. On average, this correlation coefficient is 0.55. It is less than 0.2 in some small and isolated areas in northeastern Europe, and is close to 0.5 in Scandinavia, Germany, the U.K., Ireland, Benelux, Portugal, southern Spain, Italy, Greece and their surrounding countries. The monthly correlation coefficient is greater than 0.6 in western France, northern Spain, southern Norway, and eastern Europe. Figure 4.7c shows that the reconstructed and pseudo-observed $PM_{2.5}$ concentrations have nearly the same PDF.

The evaluation of the reconstructed $PM_{2.5}$ concentrations shows that the statistical method provides satisfactory performance to estimate $PM_{2.5}$ concentrations from meteorology and that, consequently, it

can be used to study the impact of climate change on $PM_{2.5}$ concentrations.

4.4 Application to the effect of climate change

In this section, we apply the statistical method to meteorological projections given by the CNRM-CM5 model. We first estimate $PM_{2.5}$ concentrations for the historical period (1975-2004), and then for two scenarios from the IPCC (RCP4.5 and RCP8.5) over two future periods: 2020-2049, referred to as near future and 2070-2099, referred to as distant future. The two scenarios were selected because they depict two really different worlds. Indeed, the former is a stabilizing scenario, while in the latter, GHG emissions and radiative forcing are the largest among the RCP family of scenarios. Moreover, they correspond closely to scenarios A1B and A2, which where the most commonly used scenarios in earlier studies. They are briefly described in Section 4.4.1. Section 4.4.2 presents the estimation of future $PM_{2.5}$ concentrations and Section 4.4.3 discusses these results.

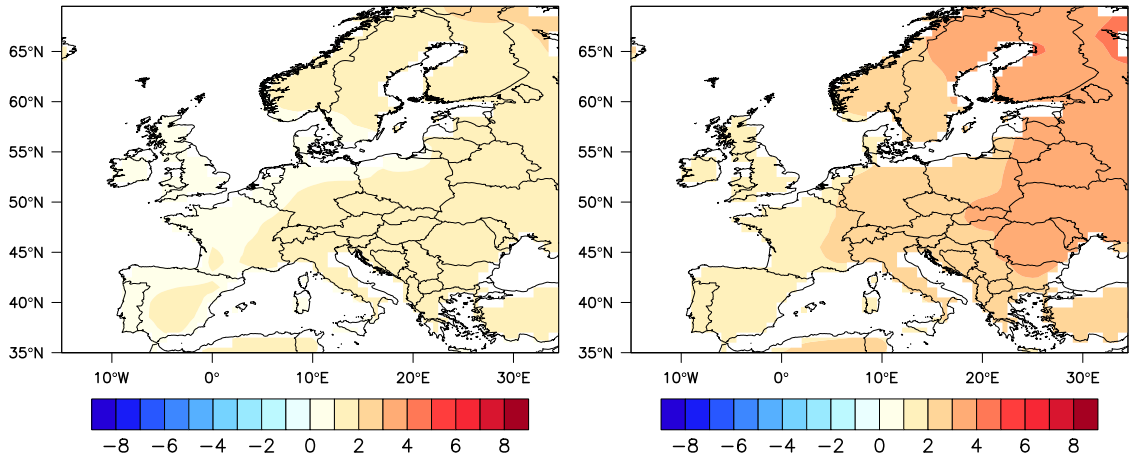
4.4.1 Climate change scenarios

4.4.1.1 RCP4.5 scenario

RCP4.5's storyline describes a world where radiative forcing is stabilized at 4.5 Wm^{-2} in the year 2100 without ever exceeding that value. Under this scenario, the global population reaches a maximum of more than 9 billion in 2065 and then declines to 8.7 billion in 2100. It also assumes that climate policies are invoked to achieve the goal of limiting emissions and radiative forcing. RCP4.5 depicts declines in overall energy use, while substantial increases in both renewable energy forms and nuclear energy occur. In the near future, the average temperature is slightly higher than in the historical period (from +0.5 K in the westernmost part of Europe to +4 K over northern Scandinavia). Over most of Europe, the average temperature is 2 to 3 K higher than in the historical period (see Figure 4.8a). The average temperature in the distant future shows the same spatial distribution as in the near future (see Figure 4.8b), but with stronger differences compared to the historical period (from +1 K near the Atlantic Ocean to + 4 K in northern and eastern Europe).

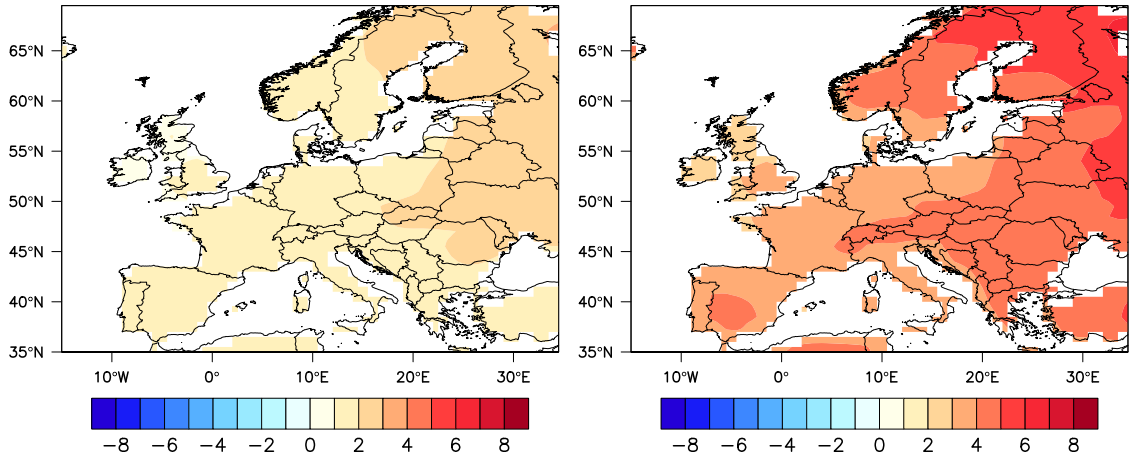
4.4.1.2 RCP8.5 scenario

RCP8.5 is a scenario that depicts a heterogeneous world with a continuously increasing global population (12 billion by 2100) and an absence of climate change policies. At the same time, income growth, technological change, and energy improvement are relatively slow. This leads to high energy demand and increasing greenhouse gas (GHG) emissions, resulting in a radiative forcing of 8.5 Wm^{-2} by the end of the century. Among the different RPC scenarios, RCP8.5 is the scenario with the largest increase in GHG emissions. The average temperature shows similar patterns than for the RCP4.5 scenarios, increasing from the Atlantic Ocean to northeastern Europe. In the near and distant futures, the average temperature is 1 to 3 K and 3 to 6 K, respectively, higher than in the historical period (see Figure 4.9).



(a) 2020-2049 (b) 2070-2099

Figure 4.8: Difference (K) (4.8a) between the average temperature in the near future and in the historical period, and (4.8b) between the average temperature in the distant future and in the historical period under the RCP4.5 scenario.



(a) 2020-2049 (b) 2070-2099

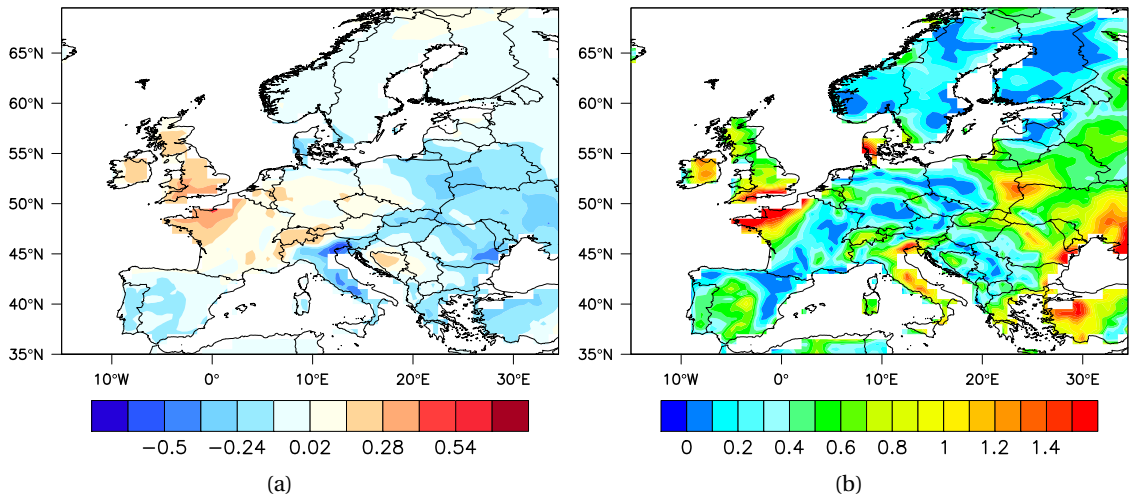
Figure 4.9: Difference (K) (4.9a) between the average temperature in the near future and in the historical period, and (4.9b) between the average temperature in the distant future and in the historical period under the RCP8.5 scenario.

4.4.2 Future $PM_{2.5}$ over Europe

4.4.2.1 Projected $PM_{2.5}$ for the RCP4.5 scenario in the near future

The difference between the projected $PM_{2.5}$ concentrations for the near future (2020-2049) compared to the historical period (1975-2004) is depicted in Figure 4.10a. Table B1 in Appendix B.6 presents the range of variation of $PM_{2.5}$ and its components compared to the historical period for each season and each European region. The differences in annual $PM_{2.5}$ concentrations vary within [-0.63; 0.48] $\mu g\ m^{-3}$. $PM_{2.5}$ concentrations are mainly lower in northern, southern and eastern Europe and higher in western and central Europe (see Figure 4.10a). For most European regions, these changes account for less than the $PM_{2.5}$ interannual variability (the ratio of the changes due to climate change and the interannual variability varies from 10% in Scandinavia to 80% in Spain). However, in some localized areas, such as

northwestern France, Denmark, Italy, Ireland, eastern Poland, and around the Black Sea, this ratio may be as high as 100% to 140% (see Figure 4.10b). These regions correspond to those with the largest $PM_{2.5}$ variation between the near future and historical periods.



(a) (b)

Figure 4.10: (4.10a) Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration ($\mu g\ m^{-3}$) in the near future and in the historical period; (4.10b) ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and $PM_{2.5}$ interannual variability under the RCP4.5 scenario.

When considering each season separately (see Appendix B.1, Figure B1), we see that the change in annual $PM_{2.5}$ concentrations typically results from increases in some seasons and decreases in others. The annual $PM_{2.5}$ response in northern Europe is the consequence of a decrease of $PM_{2.5}$ over southern Scandinavia in MAM and JJA (down to -0.47 $\mu g\ m^{-3}$) and an increase of $PM_{2.5}$ over northern Scandinavia in MAM and JJA (up to 0.34 $\mu g\ m^{-3}$). $PM_{2.5}$ concentrations are lower in SON over northern Europe (down to -0.45 $\mu g\ m^{-3}$), and higher in DJF (up to +1.05 $\mu g\ m^{-3}$), except in Denmark (down to -0.83 $\mu g\ m^{-3}$). The annual response over southern Europe results from a decrease in DJF and MAM (down to -1.5 $\mu g\ m^{-3}$) and an increase in SON and JJA (up to +1.03 $\mu g\ m^{-3}$), except for Italy and northern Spain in JJA (down to -0.47 $\mu g\ m^{-3}$). Germany and Poland often show opposite responses among the seasons. For example, the annual $PM_{2.5}$ change in Germany results from a decrease in JJA (down to -0.61 $\mu g\ m^{-3}$) and from an increase in MAM and SON (up to +0.77 $\mu g\ m^{-3}$), while the annual $PM_{2.5}$ change in Poland results from an increase in JJA (up to +0.58 $\mu g\ m^{-3}$) and a decrease in MAM and SON (down to -0.7 $\mu g\ m^{-3}$). The response in the U.K. results from an increase in DJF, MAM, and JJA (up to +0.85) and a decrease in SON (down to -0.28 $\mu g\ m^{-3}$). In the remaining part of western Europe, the annual $PM_{2.5}$ change results from a decrease in DJF (down to -0.7 $\mu g\ m^{-3}$) and an increase for the other seasons (up to +0.85 $\mu g\ m^{-3}$). The response is more uniform in eastern Europe, where the annual $PM_{2.5}$ change results from a decrease in DJF, MAM, and SON (down to -1.01 $\mu g\ m^{-3}$), and from an increase in JJA (up to +0.51 $\mu g\ m^{-3}$).

4.4.2.2 Projected $PM_{2.5}$ for the RCP4.5 scenario in the distant future

The difference between the projected $PM_{2.5}$ concentrations for the distant future (2070-2099) compared to the historical period (1975-2004) is shown in Figure 4.11a. Table B2 in Appendix B.6 presents the range of variation of $PM_{2.5}$ and its components compared to the historical period for each season and each European region. The differences in annual $PM_{2.5}$ concentrations vary within $\pm 0.4\ \mu g\ m^{-3}$. $PM_{2.5}$ concentrations are mostly lower in northern and eastern Europe and higher in western, central and

southern Europe, except in Italy, Spain, and southern France (see Figure 4.11a). For most European regions, these changes account for less than the $PM_{2.5}$ interannual variability (ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and $PM_{2.5}$ interannual variability ranging from 10% in Spain to 80% in Scandinavia). In some localized areas, such as Ireland and Germany, the $PM_{2.5}$ changes due to climate change represent 100% to 140% of the $PM_{2.5}$ interannual variability (see Figure 4.11b).

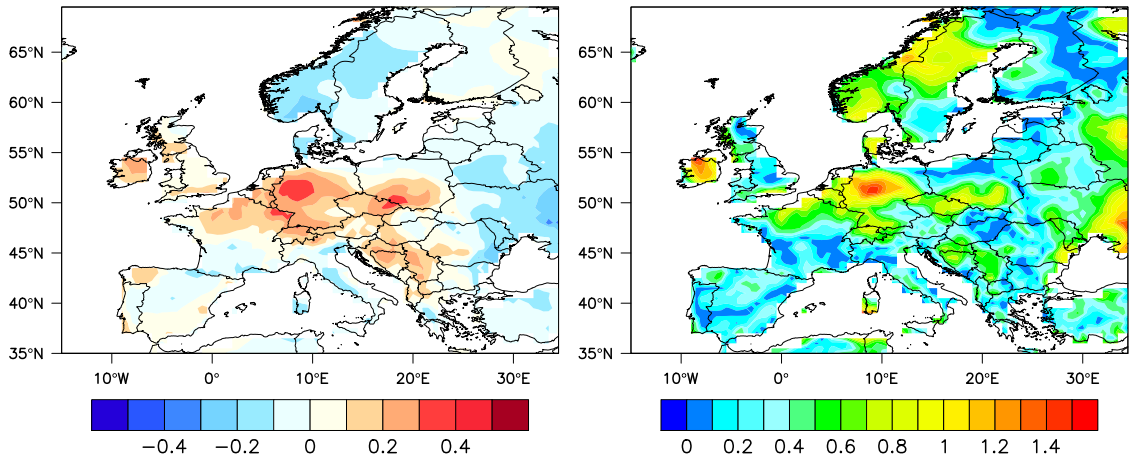


Figure 4.11: (4.11a) Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration (µg m^{-3}) in the far future and in the historical period; (4.11b) ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and $PM_{2.5}$ interannual variability under the RCP4.5 scenario.

Considering each season separately shows stronger signals (see Appendix B.1, Figure B2). The annual response in northern Europe results from a decrease in DJF, MAM, and SON (down to -0.6 µg m^{-3}) and an increase in JJA (up to 0.78 µg m^{-3}). The annual response in southern Europe results from an increase in MAM, JJA, and SON (up to 1.13 µg m^{-3}), and a decrease in DJF (down to -0.84 µg m^{-3}). $PM_{2.5}$ in central Europe results from an increase in DJF and JJA (up to +1.22 µg m^{-3}). Germany and Poland show opposite responses in MAM and SON, with a decrease of $PM_{2.5}$ concentrations in Poland (down to -0.79 µg m^{-3}), and an increase of $PM_{2.5}$ concentrations in Germany (up to +0.97 µg m^{-3}). The annual response over western Europe results from an increase in MAM and SON (up to 1.18 µg m^{-3}), and from a decrease in DJF and JJA (down to -0.92 µg m^{-3}). $PM_{2.5}$ concentrations in eastern Europe result from a decrease in DJF, MAM, and SON (down to -0.96 µg m^{-3}) and from an increase in JJA (up to 0.88 µg m^{-3}).

4.4.2.3 Projected $PM_{2.5}$ for the RCP8.5 scenario in the near future

The difference between the projected $PM_{2.5}$ concentrations for the near future (2020-2049) compared to the historical period (1975-2004) is depicted in Figure 4.12a. Table B3 in Appendix B.6 presents the range of variation of $PM_{2.5}$ and its components compared to the historical period for each season and each European region. The changes in annual $PM_{2.5}$ concentrations vary within [-0.36; 0.48] µg m^{-3}. $PM_{2.5}$ concentrations are mostly lower in northern and eastern Europe and higher in western, central and southern Europe, except in Italy (see Figure 4.12a). This response of $PM_{2.5}$ to future climate change resembles more to that of RCP4.5 in the distant future (see Figure 4.11) than to that in the near future (see Figure 4.10). These changes account for less than the $PM_{2.5}$ interannual variability (ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and interannual variability ranging from 10% in the U.K. to 80% in Scandinavia) almost everywhere. However, ratios reach 100% to 140% in Denmark and near the English

Channel (see Figure 4.12b).

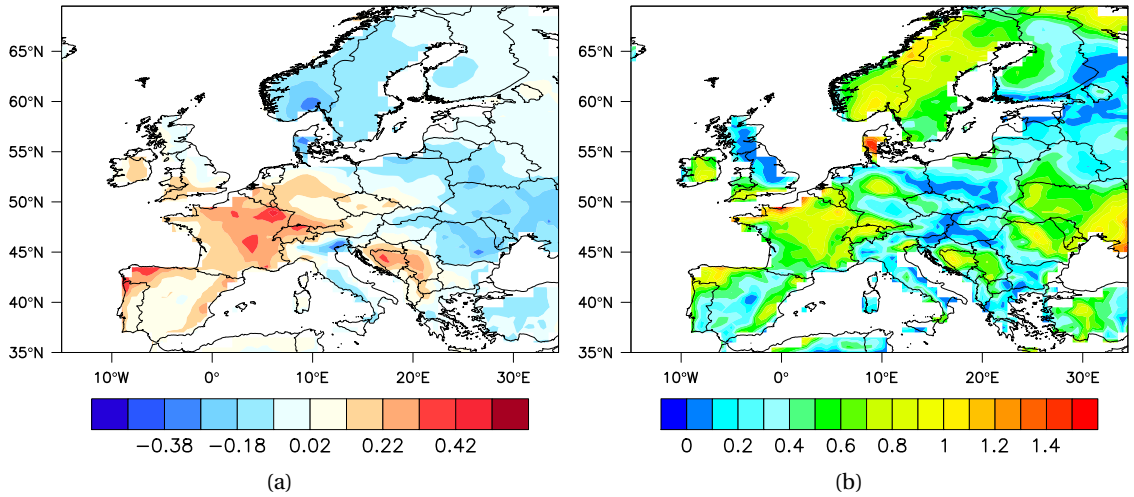


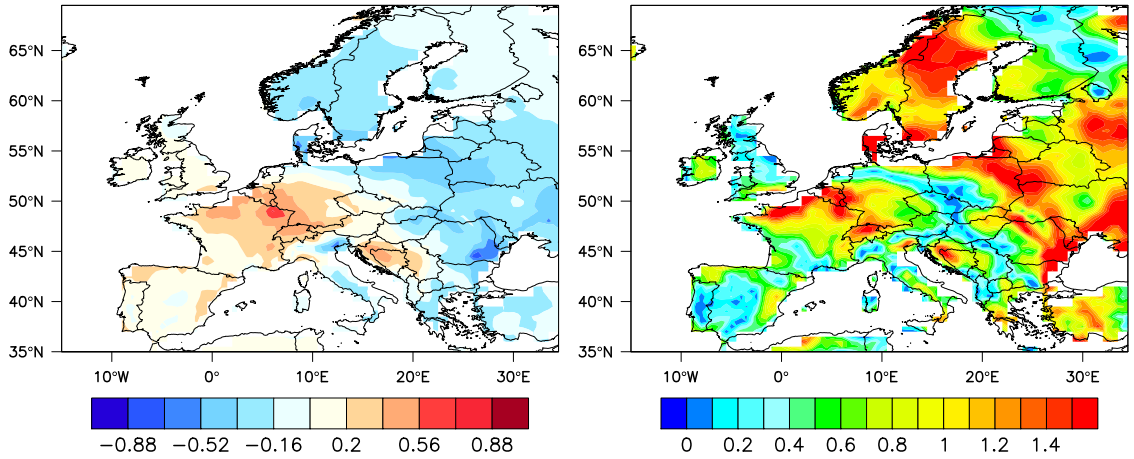
Figure 4.12: (4.12a) Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration (µg m^{-3}) in the near future and in the historical period; (4.12b) ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and $PM_{2.5}$ interannual variability under the RCP4.5 scenario.

As for RCP4.5, stronger responses appear when they are resolved by seasons (see Appendix B.2, Figure B3). The decreased $PM_{2.5}$ concentrations in northern Europe result from decreases for all seasons (down to -0.7 µg m^{-3}). The $PM_{2.5}$ response in southern Europe results from increases of $PM_{2.5}$ concentrations in MAM, JJA and SON (up to 1.17 µg m^{-3}) and from a decrease in DJF (down to -0.71 µg m^{-3}). $PM_{2.5}$ in central Europe results from an increase in DJF and JJA (up to 0.85 µg m^{-3}). Germany and Poland show opposite responses in MAM and SON: $PM_{2.5}$ concentrations increase in Germany (up to 0.92 µg m^{-3}), while they decrease in Poland (down to -0.87 µg m^{-3}). The increased $PM_{2.5}$ in western Europe results from increasing $PM_{2.5}$ in MAM and SON (up to 0.95 µg m^{-3}). The U.K. and the remaining part of western Europe show opposite responses in DJF and JJA. $PM_{2.5}$ concentrations in the U.K. increase in DJF (up to +0.36 µg m^{-3}) and decrease in JJA (down to -0.71 µg m^{-3}), while they decrease in DJF (down to -0.45 µg m^{-3}) and increase in JJA (up to 0.52 µg m^{-3}) for the remaining part of western Europe. The lower $PM_{2.5}$ in eastern Europe results from a decrease in DJF, MAM, and SON (down to -0.85 µg m^{-3}) and an increase in JJA (up to +0.64 µg m^{-3}) (see Figure 4.12b).

4.4.2.4 Projected $PM_{2.5}$ for the RCP8.5 scenario in the distant future

The difference between the projected $PM_{2.5}$ concentrations for the near future (2070-2099) compared to the historical period (1975-2004) is presented in Figure 4.13a. Table B4 in Appendix B.6 presents the range of variation of $PM_{2.5}$ and its components compared to the historical period for each season and each European region. The changes in annual $PM_{2.5}$ concentrations vary within [-0.83; 0.76] µg m^{-3}. $PM_{2.5}$ concentrations are mostly lower in the northernmost and westernmost parts of Europe and higher in the westernmost part (see Figure 4.13a). These changes exceed the $PM_{2.5}$ interannual variability (ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and interannual variability ranging from 100% to 140%) over a large part of Europe (northern Frnace, Benelux, Switzerland, Scandinavia, Croatia, and eastern Europe) compared to the other period and scenario (see Figure 4.13b).

The annual decrease in northern Europe is the consequence of a decrease in MAM, JJA, and SON (down to -1.22 µg m^{-3}) and an increase in DJF (up to 0.83 µg m^{-3}). The $PM_{2.5}$ response in southern Europe is the consequence of a decrease in DJF (down to -1.78 µg m^{-3}) and an increase in MAM, JJA, and



(a) (b)

Figure 4.13: (4.13a) Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration (µg m^{-3}) in the distant future and in the historical period; (4.13b) ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and $PM_{2.5}$ interannual variability under the RCP4.5 scenario.

SON (up to 1.53 µg m^{-3}). $PM_{2.5}$ concentrations over central Europe result mostly from an increase in DJF and JJA (up to 1.54 µg m^{-3}). As for the previous cases, Germany and Poland show opposite responses in MAM and SON. $PM_{2.5}$ concentrations increase in Germany (up to 1.31 µg m^{-3}) and decrease in Poland (down to -1.56 µg m^{-3}). The increased $PM_{2.5}$ in western Europe results mostly from an increase in MAM and SON (up to 1.31 µg m^{-3}). $PM_{2.5}$ concentrations increase in JJA over France and Benelux (up to 0.94 µg m^{-3}), but decrease in the U.K. (down to -0.68 µg m^{-3}). In DJF, $PM_{2.5}$ concentrations increase over most of western Europe (up to +0.47 µg m^{-3}), except southern France, where they decrease (down to -1.05 µg m^{-3}). The $PM_{2.5}$ concentrations decrease over eastern Europe result from a decrease in MAM and SON (down to -2.41 µg m^{-3}) and an increase in JJA (up to +0.89 µg m^{-3}).

4.4.2.5 Comparison of $PM_{2.5}$ response between the distant and near futures

Figure 4.14 displays the difference of the $PM_{2.5}$ response between the distant and near futures for both scenarios. For the RCP4.5 scenario, $PM_{2.5}$ concentrations are higher in the distant future than in the near future in southern, central, and eastern Europe as a response to an increased temperature, compensated in part by an increased precipitation (respectively wind speed) in southern Europe (respectively in central Europe), and enhanced by a decreased precipitation (respectively wind speed) in central Europe (respectively southern and eastern Europe) (see Figures B17a, B18a, and B19a in Appendix B.5). $PM_{2.5}$ concentrations are lower in the distant future than in the near future elsewhere, as a response to increased temperature and precipitation, and a decreased wind speed in Scandinavia but partially compensated by increased wind speed in the U.K., Ireland, Benelux, and France (see Figures B17a, B18a, and B19a in Appendix B.5).

For the RCP8.5 scenario, $PM_{2.5}$ concentrations are mostly lower in the distant future than in the near future, especially in eastern Europe, where the precipitation increases by 12% to 20% (see Figure B18b). Temperature and wind speed are higher and lower, respectively, in the distant future than in the near future (see Figures B17b, B18b, and B19b in Appendix B.5). $PM_{2.5}$ concentrations are higher in the distant future than in the near future over northern France, Benelux, Switzerland, and southern and western Germany, as a response to increased temperature and decreased wind speed, which dominate over increased precipitation.

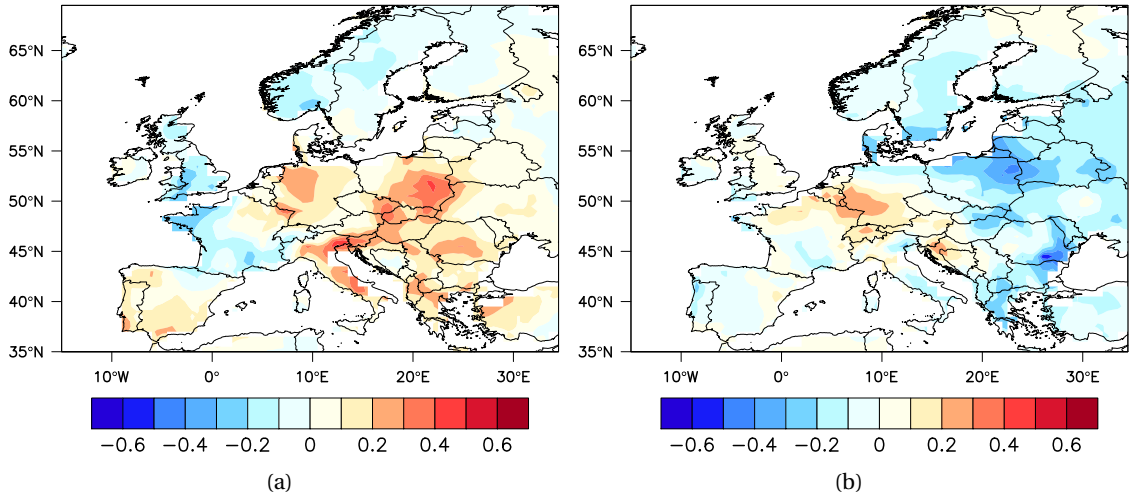


Figure 4.14: Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration ($\mu g\, m^{-3}$) in the distant and near futures for the RCP4.5 (4.14a) and RCP8.5 (4.14b) scenarios.

4.4.2.6 $PM_{2.5}$ components driving the $PM_{2.5}$ response

In this section, we identify the $PM_{2.5}$ components that influence the most the total $PM_{2.5}$ response to climate change among regions and scenarios. Tables B1, B2, B3, and B4 in Appendix B.6 provide the range of variation of $PM_{2.5}$ and their components for each scenario, future period, season, and European region. The evolution of NO_3^- and OM always contributes to the $PM_{2.5}$ response. The evolution of NH_4^+ follows that of NO_3^- but with a smaller influence because it is also associated with $SO_4^=$. $SO_4^=$ systematically contributes to the $PM_{2.5}$ response over eastern Europe, and depending on the scenarios over southern and central Europe. Sea salt contributes to the $PM_{2.5}$ response along the Atlantic coast, but with a smaller influence compared to those of other components. Dust shows some influence mainly over northern and eastern Europe; it is, as for sea salt, less important than those of $SO_4^=$, NO_3^-, and OM.

4.4.3 Discussion

This section aims at explaining the results and tendencies for $PM_{2.5}$ concentrations, by looking at both the response of its components to changes in mean values of major meteorological variables (temperature, precipitations, and wind speed) (Section 4.4.3.1), and the changes in weather type frequencies between the considered periods (Section 4.4.3.2).

4.4.3.1 $PM_{2.5}$ component responses to changes in meteorological variables

The relationship between precipitation and PM is straightforward. An increased precipitation generally leads to less $PM_{2.5}$, since it decreases the concentrations of most of its components (mineral dust, black carbon, organic matter, $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+) (Lecœur & Seigneur, 2013). Sea salt is the PM component whose presence is favored by precipitation. This result is due to the fact that increased precipitation is associated with storms that lead to sea salt particle formation as a consequence of high winds. An increased precipitation (see Figures B6, B9, B12, and B15 in Appendix) thus leads to more sea salt along the Atlantic, Baltic and Mediterranean coasts. Despite the fact that sea salt represents a large fraction of $PM_{2.5}$ in those areas, an increased precipitation usually does not lead to increased $PM_{2.5}$ concentrations

because of the compensating effect of precipitation scavenging on the other $PM_{2.5}$ components. In our projections, an increase in $PM_{2.5}$ happens only for the RCP4.5 scenario (2070-2099, MAM) over western France and the U.K. Sea salt also contains a small fraction of sulfate, which explains that in some cases, more precipitation leads to more $SO_4^=$ along the coasts (see Table 4.4 for details).

Table 4.4: Regions, scenarios and projections for which an increased precipitation (compared to 1975-2004) leads to increased $SO_4^=$, along with the associated changes in precipitation (%) and $SO_4^=$ ($\mu g\ m^{-3}$) compared to 1975-2004.

Scenario	Future period	Season	Region	Increase in precipitation (%)	Decrease in $SO_4^=$ ($\mu g\ m^{-3}$)
RCP4.5	2020-2049	JJA	Baltic	[15; 30]	[0.02; 0.08]
RCP4.5	2020-2049	SON	Adriactic	[10; 20]	[0.06; 0.24]
RCP4.5	2070-2099	MAM	Adriatic	[10; 20]	[0; 0.01]
RCP4.5	2070-2099	JJA	Baltic	[15; 35]	[0; 0.19]
RCP4.5	2070-2099	SON	Adriatic	[15; 40]	[0; 0.21]
RCP8.5	2020-2049	DJF	Adriatic	[10; 15]	[0; 0.39]
RCP8.5	2020-2049	JJA	Baltic	[15; 45]	[0; 0.15]
RCP8.5	2020-2049	SON	Adriatic	[10; 30]	[0; 0.28]
RCP8.5	2070-2099	DJF	Adriatic	[15; 45]	[0; 0.45]
RCP8.5	2070-2099	SON	Adriatic	[15; 50]	[0; 0.4]

As for precipitation, the relationship between $PM_{2.5}$ components and wind speed is straightforward. An increased wind speed favors dispersion of most of $PM_{2.5}$ components ($SO_4^=$, NO_3^-, NH_4^+, organic matter, black carbon, mineral dust) (Lecœur & Seigneur, 2013), while a decreased wind speed leads to the accumulation of particle pollution in the atmosphere. Along the coasts, higher wind speeds (see Figures B7, B10, B13, and B16 in Appendix) lead to the formation of atmospheric sea salt particles, and in some cases to increased $SO_4^=$ concentrations (see Table 4.5 for details).

Table 4.5: Regions, scenarios and projections for which an increased wind speed (compared to 1975-2004) leads to increased $SO_4^=$, along with the associated changes in wind speed ($m\ s^{-1}$) and $SO_4^=$ ($\mu g\ m^{-3}$) compared to 1975-2004.

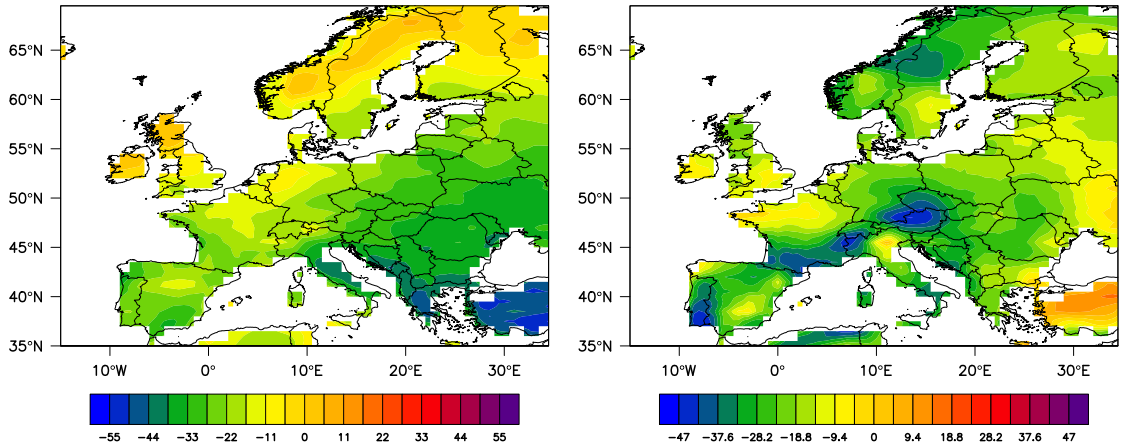
Scenario	Future period	Season	Region	Increase in wind speed ($m\ s^{-1}$)	Decrease in $SO_4^=$ ($\mu g\ m^{-3}$)
RCP4.5	2020-2049	MAM	Adriatic	[0.1; 0.3]	[0.1; 0.2]
RCP4.5	2020-2049	JJA	Adriatic	[0.1; 0.3]	[0.05; 0.1]
RCP4.5	2070-2099	MAM	Adriatic	[0.1; 0.3]	[0.05; 0.1]
RCP8.5	2020-2049	MAM	Adriatic	[0.1; 0.3]	[0.1; 0.3]
RCP8.5	2020-2049	JJA	Adriatic	[0.2; 0.3]	[0; 0.15]
RCP8.5	2070-2099	MAM	Adriatic	[0.1; 0.3]	[0.1; 0.15]
RCP8.5	2070-2099	JJA	Adriatic	[0.1; 0.3]	[0.06; 0.24]

The relationship between temperature and $PM_{2.5}$ components is more complex. We only describe the relationships in DJF and JJA, as MAM and SON can be considered as intermediate seasons, in which the response can be either close to the DJF or JJA response, depending on the season and region.

For all considered scenarios and future periods, annual $SO_4^=$ concentrations decrease over most of Europe. As temperature increases in the projections (see Figures B5, B8, B11, and B14 in Appendix), the decrease of $SO_4^=$ concentrations could be explained by the decrease in winter of fuel heating, which generates the sulfate precursor SO_2 (Lecœur & Seigneur, 2013). In JJA, $SO_4^=$ concentrations increase over most parts of Europe. The increase in $SO_4^=$ is a consequence of an increased temperature, which favors

SO_2 oxidation. These results also suggest that other processes are involved over some regions (the U.K., central Europe, northern Europe, and southeastern Europe, depending on the seasons and scenarios) where $SO_4^=$ does not respond in terms of these major trends.

For all considered scenarios and future periods, NO_3^- and NH_4^+ concentrations mostly decrease compared to the historical period. As temperature increases in those projections, it favors the partitioning of ammonium nitrate toward the gas phase, and thus a decrease in particulate ammonium nitrate concentrations (Lecœur & Seigneur, 2013). NO_3^- and NH_4^+ concentrations increase as temperature increases over the same regions as $SO_4^=$ (the U.K., central, northern, and southeastern Europe), as higher temperatures in summer are associated with stagnation periods in the future (see Figure 4.15), which dominates over the volatilization of NO_3^- and NH_4^+ at higher temperatures.



(a) Temperature & Precipitations

(b) Temperature & Wind speed

Figure 4.15: Correlation (%) (4.15a) between temperature and precipitation and (4.15b) between temperature and wind speed in JJA for the 2070-2099 period under the RCP8.5 scenario. Similar maps are obtained for all scenarios and future periods.

Temperature does not seem to have an impact on mineral dust concentrations, since mineral dust concentration either increases or decreases depending on the regions and the scenario considered, while temperature always increases. In DJF, black carbon concentrations decrease as temperature increases (the need of fuel heating decreases), except in some specific areas in eastern France, and central Europe. In JJA, black carbon concentrations mostly increase over Europe. Sea salt decreases in Europe, especially in JJA, as higher temperatures in summer are associated with anticyclonic conditions, which leads to less precipitation and wind (see Figure 4.15).

In DJF, OM concentrations decrease over most of Europe (except northern and southeastern Europe) as temperature increases. This decrease is due to the volatilization of semi-volatile organic compounds (SVOC) at higher temperatures, which is not compensated by increased biogenic emissions, since they are negligible in winter (Lecœur & Seigneur, 2013). In JJA, OM concentrations increase in eastern and southeastern Europe, but decrease in western, central and northern Europe as temperature increases. This shows that opposing processes take place: increasing temperatures lead to higher biogenic emissions, and faster formation of SVOC, but favor SVOC partitioning toward the gas phase.

4.4.3.2 $PM_{2.5}$ projections and weather types

The $PM_{2.5}$ response cannot be entirely explained by the mean changes in meteorological variables, which suggests that the evolution of the occurrence of the various weather types must be taken into account. We study here the impact of changes in weather type frequencies on $PM_{2.5}$ concentrations. To do so, we use the same approach as the one used by Najac (2008). We decompose the difference of the average variable X between a future period and a historical period as follows:

$$\Delta X = X^F - X^H = \sum_{i=1}^{N} \left(f_i^F x_i^F - f_i^H x_i^H \right), \tag{4.2}$$

where X^H (X^F) is the average value of variable X over the historical (future) period, N is the number of weather types, f_i^H (f_i^F) is the frequency of weather type i over the historical (future) period, and x_i^H (x_i^F) is the average value of variable X when weather type i is observed in the historical (future) period. Equation 4.2 can be rewritten as follows:

$$\begin{aligned}
\Delta X &= \sum_{i=1}^{N} \left(f_i^F x_i^F - f_i^H x_i^H + f_i^H x_i^F - f_i^H x_i^F \right) \\
\Delta X &= \sum_{i=1}^{N} \left(\left(f_i^F - f_i^H \right) x_i^F + f_i^H \left(x_i^F - x_i^H \right) \right) \\
\Delta X &= \sum_{i=1}^{N} \left(\left(f_i^F - f_i^H \right) \left(x_i^F + x_i^H - x_i^H \right) + f_i^H \left(x_i^F - x_i^H \right) \right) \\
\Delta X &= \sum_{i=1}^{N} \left(\left(f_i^F - f_i^H \right) \left(x_i^H \right) + \left(f_i^F - f_i^H \right) \left(x_i^F - x_i^H \right) + f_i^H \left(x_i^F - x_i^H \right) \right).
\end{aligned}$$

Finally, Equation 4.2 can be expressed as :

$$\Delta X = \underbrace{\sum_{i=1}^{N} \left(\Delta f_i \, x_i^H \right)}_{\text{inter}} + \underbrace{\sum_{i=1}^{N} \left(\Delta x_i \, f_i^H \right)}_{\text{intra}} + \underbrace{\sum_{i=1}^{N} \left(\Delta x_i \, \Delta f_i \right)}_{\text{residual}}, \tag{4.3}$$

where $\Delta x_i = x_i^F - x_i^H$ and $\Delta f_i = f_i^F - f_i^H$. The first term on the right-hand side of Equation 4.3 represents the changes that are due to modifications in weather type frequencies (inter-type changes). The second term represents the changes that are due to modifications of the large-scale circulation for a given weather type (intra-type changes). These modifications can lead either to different inflows of $PM_{2.5}$ in the domain or to a different average value of meteorological variables within the weather type, and a fortiori to a different average value of the variable X (here $PM_{2.5}$). The last term is a residual term which is related to both changes jointly (weather type frequency and variable X within a weather type and is, therefore, second-order in terms of changes). We apply this decomposition to the $PM_{2.5}$ projections that were presented (see Figures 4.16, 4.17, 4.18, and 4.19 above).

This decomposition provides valuable information regarding the respective effects of changes in weather type frequencies and mean values of meteorological variables on the total changes in $PM_{2.5}$ concentrations for all seasons, scenarios, and future periods considered. The residual changes are negligible compared to the inter-type and intra-type changes for all scenarios, seasons, and future periods considered. Therefore, our analysis focuses on the inter-type and intra-type changes.

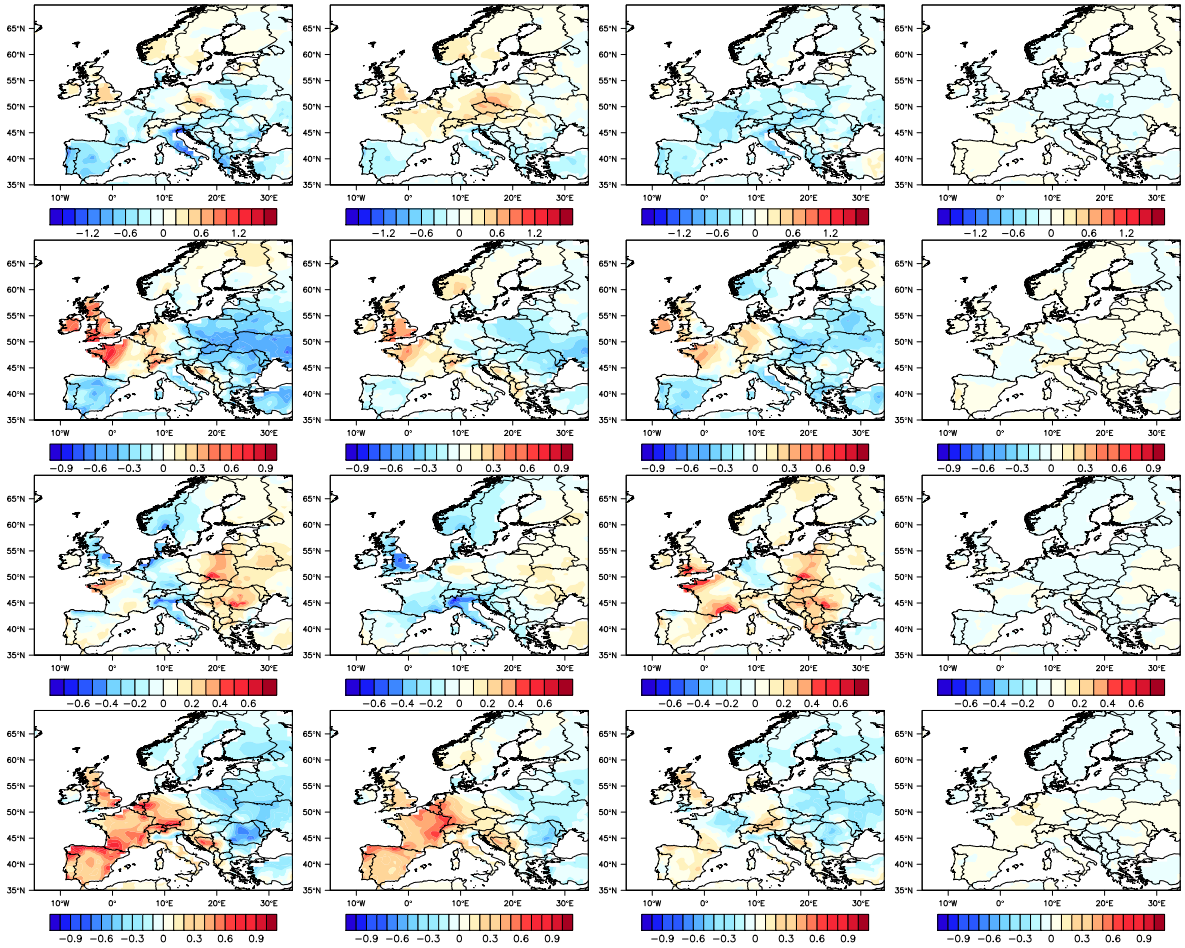


Figure 4.16: Total (first column), inter-type (second column), intra-type (third column), and residual (last column) $PM_{2.5}$ changes between the historical (1975-2004) and near future (2020-2049) periods (scenario RCP4.5) in DJF (first row), MAM (second row), JJA (third row), and SON (last row). All changes are expressed in $\mu g\ m^{-3}$.

Over **northern Europe**, the influence of inter and intra-type changes are on the same order of magnitude in DJF, MAM, and SON. In JJA, the inter-type changes dominate over Scandinavia, while the intra-type changes dominate over Finland. Over Scandinavia, $PM_{2.5}$ concentrations decrease between 0 and -1.2 $\mu g\ m^{-3}$ depending on the scenario and future period. The weather types associated with less $PM_{2.5}$ over Scandinavia are WT1, WT2, WT3, WT5, and WT8. They represent 30.5% of the days for the historical period, while they represent 37.8% to 41% of the days of the future periods (see Tables B5, B6, and B7 in Appendix). Finland is less influenced by the changes of weather type frequencies, since it is located further away from the Atlantic Ocean. Moreover, the increase of temperature in JJA is stronger in northeastern Europe than in Scandinavia, which leads to greater changes in the relationship between weather type and $PM_{2.5}$ concentrations in northeastern Europe.

Over **southern Europe**, the influence of inter- and intra-type changes are on the same order of magnitude in MAM. In JJA, the inter-type (respectively intra-type) changes dominate in the western (respectively eastern) part. Since the southwestern part of Europe is closer to the Atlantic Ocean than the southeastern part, it seems logical that the frequency of weather types impacts this region more. Moreover, changes in temperature are stronger in southeastern Europe than in southwestern Europe, which leads to changes in the relationship between weather types and $PM_{2.5}$ concentrations. In SON, the inter-type changes dominate for the RCP4.5 scenario, while the inter- and intra-type changes are

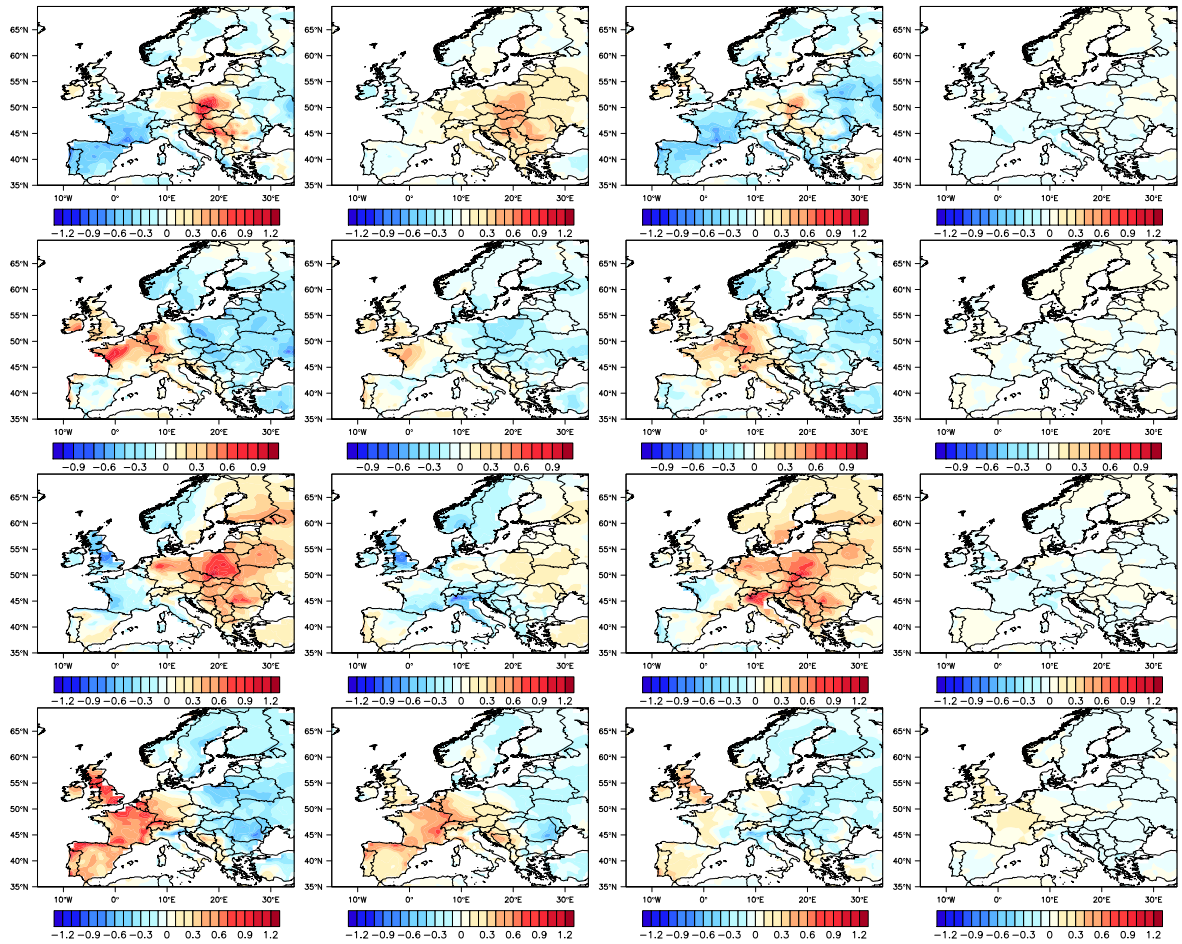


Figure 4.17: Total (first column), inter-type (second column), intra-type (third column), and residual (last column) $PM_{2.5}$ changes between the historical (1975-2004) and distant future (2070-2099) periods (scenario RCP4.5) in DJF (first row), MAM (second row), JJA (third row), and SON (last row). All changes are expressed in $\mu g\ m^{-3}$.

on the same order of magnitude for the RCP8.5 scenario. Since the frequency of the weather types that are associated with high $PM_{2.5}$ concentrations (WT0, WT1, WT2, WT10, and WT13) does not really change between the present period (30.3% of the days) and the future periods (from 31.2% to 33.5% of the days) (see Tables B5, B6, and B7 in Appendix), the evolution in the fractions of total changes that are attributable to inter- and intra-type changes between the RCP4.5 and RCP8.5 scenarios is due to changes in temperature, since temperature changes are stronger for the RCP8.5 scenario than for the RCP4.5 scenario. In DJF, the intra-type changes dominate over the inter-type ones.

Over **central Europe**, the influence of inter-type (respectively intra-type) changes dominates in DJF (respectively JJA). In DJF, the frequency of the weather types associated with high $PM_{2.5}$ concentrations (WT0, WT3, WT4, and WT5) varies from 36.3% over the historical period to 38.4-42.2% for the future period (see Tables B5, B6, and B7 in Appendix), which explains why the inter-type changes dominate. In MAM, they are on the same order of magnitude for RCP4.5, while the intra-type changes dominate for RCP8.5. The increased temperature leads to changes within the weather type-$PM_{2.5}$ relationship in MAM and JJA. In SON, the inter-type (respectively, intra-type) changes dominate over Germany (respectively, Poland), which is due to the fact that the temperature increase is greater in Poland than in Germany.

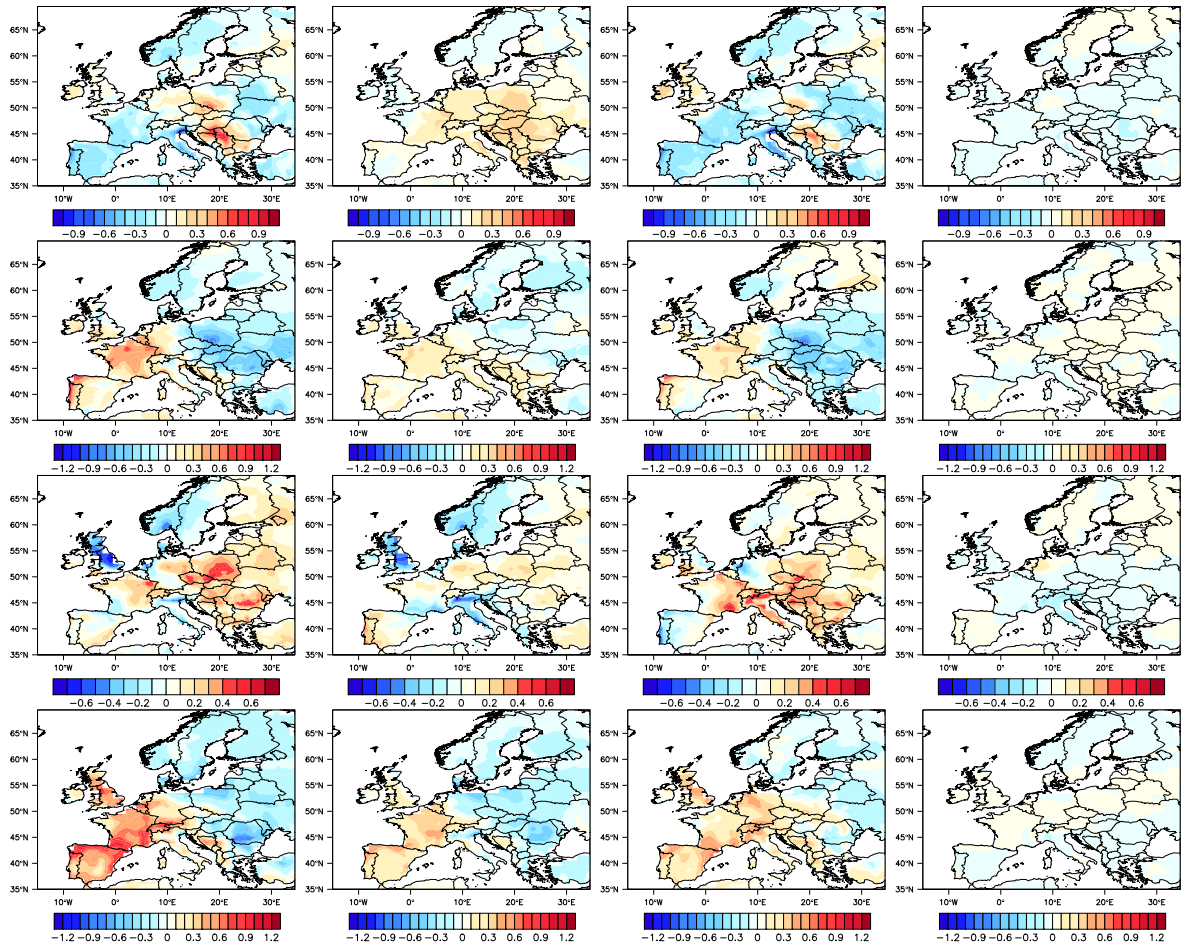


Figure 4.18: Total (first column), inter-type (second column), intra-type (third column), and residual (last column) $PM_{2.5}$ changes between the historical (1975-2004) and near future (2020-2049) periods (scenario RCP8.5) in DJF (first row), MAM (second row), JJA (third row), and SON (last row). All changes are expressed in $\mu g\ m^{-3}$.

Over **western Europe**, the influence of inter-type (intra-type) changes dominates in SON (DJF). In SON, the frequency of the weather types associated with high concentrations of $PM_{2.5}$ varies from 27.4% in the historical period to 30.1-43.9% in the future periods (see Tables B5, B6, and B7 in Appendix). In DJF, the changes in temperature lead to changes within the weather type- $PM_{2.5}$ relationships. In MAM, they are on the same order of magnitude. In JJA, the influence of inter-type (intra-type) changes dominates over the U.K. and Benelux (France).

Over **eastern Europe**, the influence of intra-type changes dominates in DJF, MAM, and JJA (temperature increase), while the influences of inter-type and intra-type changes are on the same order of magnitude in SON.

4.5 Conclusions

A statistical algorithm was developed to estimate $PM_{2.5}$ concentrations over Europe based on a weather-type representation of the meteorology. This statistical algorithm was constructed using relationships between $PM_{2.5}$ observations and four meteorological variables (pressure at sea level, surface air temperature, precipitation, and surface wind speed). Because of a lack of $PM_{2.5}$ speciated measurements over

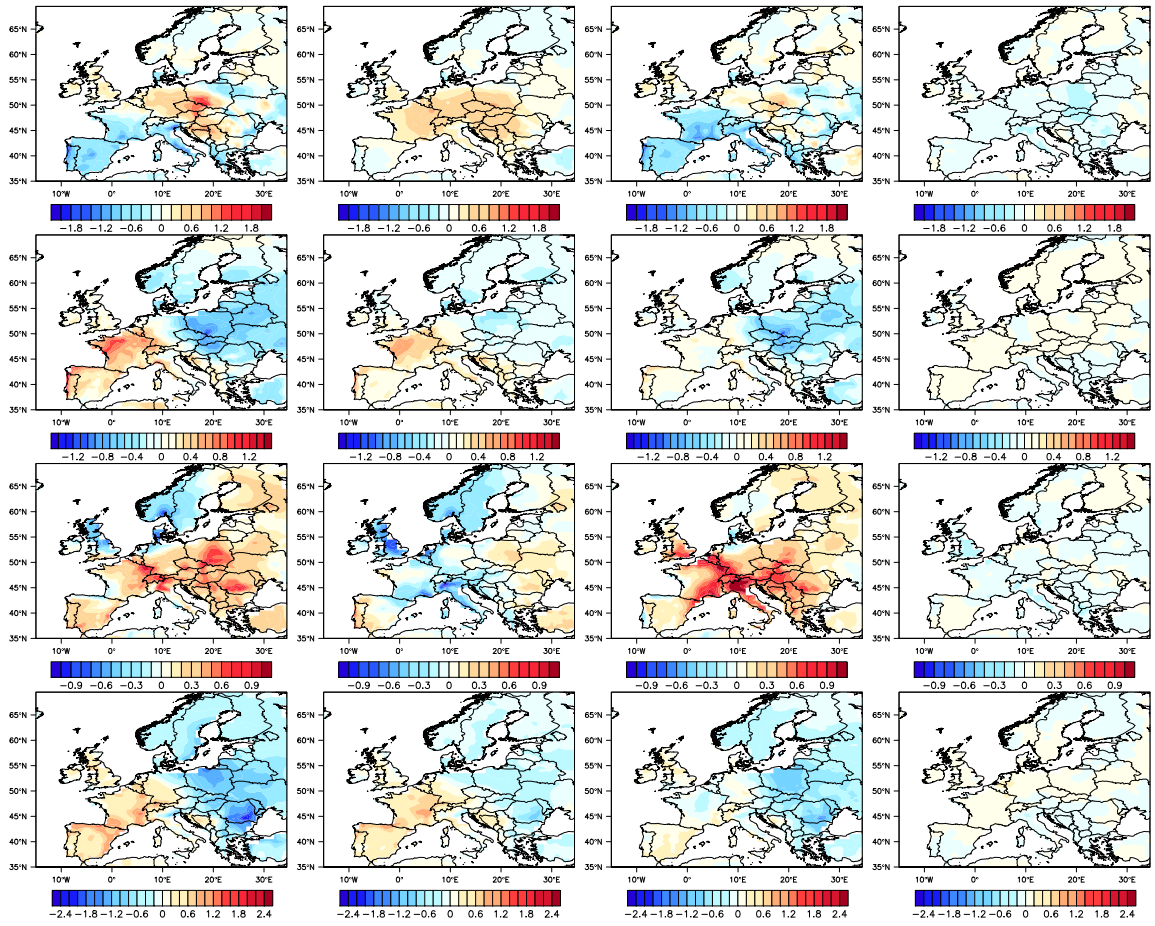


Figure 4.19: Total (first column), inter-type (second column), intra-type (third column), and residual (last column) $PM_{2.5}$ changes between the historical (1975-2004) and distant future (2070-2099) periods (scenario RCP8.5) in DJF (first row), MAM (second row), JJA (third row), and SON (last row). All changes are expressed in $\mu g\ m^{-3}$.

Europe, modeled $PM_{2.5}$ concentrations were used as pseudo-observations. This algorithm re-samples observed values of $PM_{2.5}$ concentrations on a given day of a given period, based on the large-scale circulation and on the similarity between the regression-based $PM_{2.5}$ estimated concentrations of that given day and that of all days with the same large-scale circulation. The algorithm was evaluated on the learning period (2000-2008) to test its ability to reproduce the pseudo-observed data set. It was then applied to the projections given by the CNRM-CM5 meteorological model: a historical period (1975-2004), and two future periods using two different climate scenarios: RCP4.5 and RCP8.5. Under RCP4.5, radiative forcing is stabilized at 4.5 $W\ m^{-2}$. Under RCP8.5, the world population continues to increase and climate change policies are lacking, which leads to high demands on food and energy, resulting in a radiative forcing of 8.5 $W\ m^{-2}$ by 2100. The two future periods are 2020-2049 (near future) and 2070-2099 (distant future).

For all considered scenarios and periods, annual $PM_{2.5}$ concentrations decrease over northern Europe, eastern Europe, Italy, Poland, and southeastern Europe (down to -0.83 $\mu g\ m^{-3}$) compared to the historical period, while they increase over the U.K., northern France, Benelux, and the Balkans (up to 0.76 $\mu g\ m^{-3}$). Over other regions, such as the Iberian Peninsula and central Europe, the evolution of annual $PM_{2.5}$ concentrations depends on the scenarios. Considering each season separately shows stronger responses. Those may vary among seasons for a given region and scenario.

These projections show a sign agreement with Jiménez-Guerrero et al. (2012) for $SO_4^=$ and NH_4^+ in MAM and JJA, but Jiménez-Guerrero et al. (2012) find a stronger signal (from 0 to +2 μg m^{-3} for $SO_4^=$, and from 0 to +0.4 μg m^{-3} for NH_4^+) than obtained here (from 0 to +1 μg m^{-3} for $SO_4^=$, and from 0 to +0.3 μg m^{-3} for NH_4^+). These projections from this study are rather different than the ones found by Colette et al. (2013), whose results depict a decrease of $PM_{2.5}$ concentrations over all Europe, although the order of magnitude of this variation (about 1 μg m^{-3}) is closer to the one of our projections. Finally, Hedegaard et al. (2013) show a similar annual response of $PM_{2.5}$ over the Iberian peninsula. Although these studies do not show good agreement, it may not be relevant to compare these results, because the scenarios, the spatial resolutions, the years, and the number of years considered in the projected periods differ. Such differences in the numerical experiment protocols may cause these differences.

Changes in meteorological conditions between the historical and the future periods explain part of the changes found in this study. While precipitation scavenges most of $PM_{2.5}$ components, the wind disperses them. However, the formation of sea salt particles is favored by unstable weather conditions over sea (i.e., high precipitation and wind speed), and since a small fraction of sulfate is contained in sea salt, sulfate concentrations along the coasts also increase under such conditions. The relationship between $PM_{2.5}$ components and temperature is more complex. For most European regions, $SO_4^=$ concentrations decrease in winter and increase in summer as temperature increases, as expected, since SO_2, which is the precursor of sulfate, is generated by fuel heating in winter, and since SO_2 oxidation in summer is favored at higher temperatures. As temperature increases in future scenarios, NO_3^- and NH_4^+ concentrations decrease over most of Europe, since high temperatures favor the shifting of ammonium nitrate toward the gas phase. Temperature does not impact mineral dust or black carbon concentrations much, as these components increase or decrease depending on the seasons and scenarios. Sea salt decreases in the projections, which suggests that higher temperatures will be mainly associated with anticylonic conditions for which the formation of atmospheric sea salt particles is not favored. OM concentrations decrease mainly in winter but increase in summer, as an increased temperature leads to the volatilization of SVOC in winter but increases biogenic emissions in summer. In other regions, $PM_{2.5}$ components do not respond to changes in meteorological variables as expected, which suggests that changes in weather type frequencies must be taken into account.

We decomposed the changes in $PM_{2.5}$ concentrations as the sum of inter-type changes, intra-type changes, and a residual term. The first term represents the part of the $PM_{2.5}$ change, which is due to modifications in weather type frequencies. The second term combines all changes due to the modifications of the large-scale circulation for a given weather type. Such modifications affect either the $PM_{2.5}$ flow through the study domain, or the average value of the meteorological variables associated with a weather type, which leads to changes in the average value of $PM_{2.5}$ concentrations within this weather type. The last term is a residual term, which includes inter- and intra-type changes jointly. This decomposition provides valuable information to understand the causes of the $PM_{2.5}$ changes between the historical and future periods. It shows that the residual term is negligible. It appears that changes in regions near the ocean (Norway, the U.K., the Iberian Peninsula) result mostly from changes in weather-type frequency, as changes in the large-scale circulation over the Atlantic Ocean directly impact coastal areas. In most regions, the inter- and intra-type changes are on the same order of magnitude. The importance of intra-type changes suggests that the relationships between weather type (meteorological variables) and $PM_{2.5}$ may evolve in the future (e.g., an increase in mean temperature will lead to lower $PM_{2.5}$ concentrations of semi-volatile particulate matter for a given weather type).

Some uncertainties are associated with these results, such as the meteorological variables and the number of weather types included in the classification and in the regression equation, and the use of modeled $PM_{2.5}$ as pseudo-observations. The statistical algorithm could be expanded to include

additional meteorological variables (e.g., planetary boundary layer height, relative humidity, cloud cover) to investigate whether this would lead to noticeable improvements. The effect of changes in $PM_{2.5}$ concentrations at the boundary of the domain is another uncertainty. Such effect was not taken into account in this study. The evolution of boundary conditions is negligible for most $PM_{2.5}$ components (NO_3^-, NH_4^+, OM), but is not for $SO_4^=$ (Racherla & Adams, 2006) and might be important for other components (e.g., dust, as a consequence of changes in land use). This effect could be considered by simulating the impact of climate change on $PM_{2.5}$ concentrations at a global scale.

The results of this study should be treated with caution since we used only one meteorological model. Although the predictions of this model is near the mean of a multi-model ensemble at for temperature (Cattiaux et al., 2013), a multi-model analysis would be more robust to estimate the impact of climate change on $PM_{2.5}$.

This novel approach can be seen as an alternative solution to the use of PM air quality models, because it will lead to lower computational costs (see Table B8 in Appendix). Moreover, this approach can be used with speciated $PM_{2.5}$ observations if a sufficiently dense monitoring work were available. Thus, uncertainties associated with models could be removed, particularly those associated with semivolatile PM (although artifacts also occur with measurements).

Our analysis focused on the effect of climate change on season-averaged $PM_{2.5}$ concentrations, and larger effects were calculated for the annual averaged $PM_{2.5}$ concentrations. It would be interesting to investigate whether larger changes could yet be obtained when focusing on shorter time periods such as high-$PM_{2.5}$ episodes. Furthermore, this approach can be applied to the effect of climate change on other pollutants that are strongly linked to meteorological variables (e.g., ozone) and/or to other regions.

Synthèse et perspectives

☞ **Objectifs —** Dans ce chapitre, nous :

- développons une méthode statistique permettant d'estimer les concentrations de $PM_{2.5}$ en Europe à partir de pseudo-observatiosns de $PM_{2.5}$, des types de temps et de quatre variables météorologiques de surface (pression, température, vent et précipitations) ;
- évaluons cette méthode statistique sur une période d'apprentissage (2000-2008) et la projetons sur une période historique (1975-2004) et deux périodes futures (2020-2049 et 2070-2099) fournies par le modèle CNRM-CM5 pour deux scénarios (RCP4.5 et RCP8.5). Ces données ont été générées dans le cadre de l'exercice CMIP5 du GIEC ;
- expliquons les projections obtenues en analysant les réponses des composants des $PM_{2.5}$ aux changements en termes de variables météorologiques et en étudiant la part de responsabilité des changements inter- et intra-types.

☞ **Données et méthodes**

- La méthode statistique se décompose en deux étapes : une étape de régression et une étape de ré-échantillonnage. Pour la période d'apprentissage, les données météorologiques proviennent des réanalyses ECMWF. Pour les périodes historique et futures, elles sont issues des résultats de simulations du modèle CNRM-CM5.
- L'étape de régression consiste à résoudre une équation de régression linéaire dont la variable expliquée est le logarithme népérien des $PM_{2.5}$ en un point géographique (x, y) donné, et dont les variables explicatives sont, d'une part les séries temporelles de pression, température, vent et précipitations et, d'autre part, la distance en termes de pression entre chaque jour de la période d'apprentissage et les centroïdes des types de temps. Cette étape permet d'obtenir une approximation des concentrations de $PM_{2.5}$ sur la période d'apprentissage et des coefficients de régression associés à chaque type de temps et chaque variable météorologique en chaque point du domaine. Ces coefficients de régression sont utilisés dans les projections historique et futures pour estimer le logarithme népérien des concentrations de $PM_{2.5}$.
- L'étape des analogues consiste à ré-échantillonner les concentrations de $PM_{2.5}$ de la période d'apprentissage sur les périodes d'apprentissage pour l'évalution de la méthode et sur la période historique pour reconstruire un jeu de données de $PM_{2.5}$ sur le présent. Pour un scénario futur, ce sont les concentrations de $PM_{2.5}$ de la période historique qui sont ré-échantillonnées sur les périodes futures, pour prendre en compte les changements de fréquence des régimes de temps et éliminer le biais présent dans le modèle fournissant les données météorologiques.

☞ **Évaluation de la méthode sur la période d'apprentissage**

Plusieurs variables météorologiques et plusieurs nombres de types de temps ont été testés afin de trouver quelle configuration permet la meilleure estimation des concentrations de $PM_{2.5}$ sur la période d'apprentissage. La configuration retenue est celle contenant les quatre variables météorologiques et tous les types de temps dans l'équation de régression. La méthode sous-estime les concentrations pseudo-observées de 1.5% en moyenne. L'erreur relative varie entre -10% en Europe centrale et +12.5% dans l'extrême nord de l'Europe. Ces résultats sont considérés comme satisfaisants et la méthode peut être appliquée pour l'estimation des concentrations de $PM_{2.5}$.

☞ **Application de la méthode au changement climatique**

Les concentrations annuelles de $PM_{2.5}$ projetées dans le futur sont inférieures à celles de la période historique dans le nord et l'est de l'Europe, en Italie, en Pologne et dans le sud-est de l'Europe. Elles sont supérieures à celles de la période historique au Royaume-Uni, dans le nord de la France, au Benelux et dans les Balkans. Pour d'autres régions, telle que la pénisule Ibérique ou encore l'Europe centrale, le signe de l'évolution n'est pas systématiquement le même selon les scénarios et les périodes considérés. Les évolutions saisonnières montrent des signaux plus forts, qui peuvent se compenser en partie. Les évolutions annuelles des concentrations de $PM_{2.5}$ dues au changement climatique sont généralement plus faibles que leur variabilité inter-annuelle, sauf pour le scénario RCP8.5 et la période 2070-2099. Néanmoins, l'imact du changement climatique étant dans de nombreux cas supérieur à 0.5 $\mu g\,m^{-3}$, il est pertinent pour le respect des normes règlementaires.

☞ **Réponse des $PM_{2.5}$ et de ses composants aux changements en termes de variables météorologiques**

Nous retrouvons dans beaucoup de régions d'Europe une réponse *attendue* des composants des $PM_{2.5}$ aux changements climatiques :

- lessivage de tous les composants des $PM_{2.5}$ par la pluie, sauf les sels marins et le $SO_4^=$ sur les côtes, qui augmentent en période de tempête ;
- dispersion de tous les composants des $PM_{2.5}$ par le vent, sauf les sels marins et le $SO_4^=$ sur les côtes, qui sont favorisés par les vents forts ;
- oxydation du SO_2, émissions biogéniques et volatilisation du nitrate d'ammonium favorisées par les températures plus élevées en été ;
- diminution des concentrations de $SO_4^=$ en hiver due à l'augmentation des températures hivernales et donc une baisse d'utilisation de fuel pour le chauffage, menant à moins d'émissions de SO_2, précurseur du $SO_4^=$.

Dans d'autres régions, la réponse des $PM_{2.5}$ n'est pas celle attendue. Ceci implique que l'évolution de la fréquence des types de temps doit être prise en compte.

☞ **$PM_{2.5}$ et types de temps**

Nous avons décomposé l'évolution des concentrations de $PM_{2.5}$ en trois termes. Le premier représente la part de l'évolution due aux changements de fréquences des types de temps (inter-types). Le second terme regroupe les changements dus aux modifications de circulation atmosphérique au sein d'un type de temps, qui affectent ainsi les valeurs moyennes des variables météorologique et des concentrations de $PM_{2.5}$ (intra-types). Le troisième est un terme résiduel. Cette décomposition permet de bien reconstruire les changements observés. Elle met également en évidence le fait que les régions bordant l'océan Atlantique sont plus enclines à être influencées par les fréquences des types de temps que celles situées à l'intérieur des terres. Pour beaucoup de régions, les changements inter et intra-types sont du même ordre de grandeur. Les relations entre types de temps, variables météorologiques et concentrations de $PM_{2.5}$ peuvent être amenées à évoluer dans le futur.

☞ **Perspectives**

Ce chapitre présente une nouvelle approche pour étudier l'influence du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$. Cette méthode permet notamment de s'affranchir des incertitudes liées aux modèles de chimie-transport, dans le cas où la région étudiée possède un réseau suffisamment dense. De plus, le temps de calcul économisé permettra de réaliser des comparaisons multi-modèles concernant l'évolution du climat. Enfin, une telle méthode peut être appliquée à d'autres polluants et/ou d'autres régions du monde, dès lors que la circulation de grande échelle est bien caractérisée.

Chapitre 5

Conclusions et perspectives

L'objectif de cette thèse était d'étudier l'effet du changement climatique sur la formation des particules fines en Europe au moyen d'une approche statistique. Or, la complexité du système climatique et des effets de la météorologie sur les particules fines ($PM_{2.5}$) rend cette tâche délicate. Nous nous sommes donc efforcés dans ce manuscrit de décrire et d'introduire en amont de l'approche statistique chaque élément nécessaire à son implémentation. Malgré les nombreuses incertitudes décelées dans ce travail de recherche, nous avons pu d'une part, apporter quelques éléments de réponse importants aux questions concernant les interactions entre climat et qualité de l'air et, d'autre part, présenter de nouvelles méthodes pour l'évaluation dynamique des modèles de qualité de l'air et pour l'estimation de l'effet du changement climatique sur la pollution par les particules fines.

Une étude bibliographique a permis de recenser les principales études déjà menées sur cette problématique. En raison de l'ancienneté de la règlementation sur les concentrations de PM_{10} et de $PM_{2.5}$ aux États-Unis (1997) et au Canada (1998) par rapport à l'Europe (2008), la plupart des travaux ainsi recensés ont été réalisés à l'échelle du continent nord-américain. Ils se distinguent principalement par leur méthodologie. Certaines de ces études se concentrent notamment sur l'impact individuel de chaque variable météorologique sur les concentrations de $PM_{2.5}$. De telles approches ont mis en avant, d'une part les rôles respectifs de la pluie, du vent, de l'humidité et de la hauteur de la couche de mélange dans le lessivage, le transport, le transfert en phase particulaire des espèces semi-volatiles et la dilution des particules et, d'autre part, la complexité de l'effet de la variable température. Néanmoins, elles ne permettent pas d'estimer l'impact du changement climatique, qui ne peut pas s'exprimer comme une simple addition de ces effets individuels.

D'autres études ont conjointement utilisé des scénarios d'émissions de polluants atmosphériques et de climat afin d'examiner l'impact du changement climatique et de ces émissions futures sur les concentrations de $PM_{2.5}$. Un consensus semble avoir été ici atteint, que ce soit à l'échelle du continent nord-américain ou du continent européen. En effet, les résultats de ces études tendent vers une diminution des concentrations de $PM_{2.5}$, en réponse aux diminutions des émissions de $PM_{2.5}$ primaires et de précurseurs de $PM_{2.5}$ secondaires. En revanche, de telles analyses ne permettent généralement pas d'isoler l'effet du climat sur les concentrations de $PM_{2.5}$.

Enfin, d'autres travaux se sont intéressés à la réponse des observations de $PM_{2.5}$ à la fois aux variables météorologiques de surface et aux situations synoptiques récurrentes (du genre régimes de temps). Une telle approche nous a paru pertinente et a servi de point de départ à la méthode développée et utilisée (Chapitre 4) dans le cadre de la présente thèse. Cette méthode statistique est implémentée sur une période dite d'apprentissage, puis projetée sur des périodes historique et futures. Trois éléments

sont nécessaires pour mener une telle étude : une caractérisation de la circulation atmosphérique de grande échelle sur la zone Europe-Atlantique Nord (Chapitre 2), des données de $PM_{2.5}$ (Chapitre 3), et des données de variables météorologiques de surface pour des périodes historique et futures à l'échelle du continent européen.

Le Chapitre 2 a été consacré à la caractérisation de la circulation atmosphérique de grande échelle sur la zone Europe-Atlantique Nord, ainsi qu'à la présentation d'outils efficaces pour la décrire. Cette circulation s'organise autour d'un certain nombre de structures spatiales préférentielles, appelées régimes de temps. D'une durée de vie comprise entre 5 et 10 jours et obtenus par la classification d'une variable représentative de la dynamique atmosphérique (typiquement la pression de surface), les régimes de temps permettent de caractériser certains modes dominants de la circulation atmosphérique. Ils constituent ainsi un outil efficace pour décrire ses liens avec les climats régionaux. De tels régimes de temps affectent a fortiori les concentrations de $PM_{2.5}$. En revanche, ils ne sont pas pertinents pour des études d'impact de la météorologie sur la pollution atmosphérique. Nous avons donc amélioré ces régimes de temps de sorte qu'ils soient plus adaptés aux $PM_{2.5}$. Pour ce faire, nous avons utilisé les précipitations en plus de la pression de surface pour la construction de l'espace de classification. Nous obtenons ainsi 14 types de temps par saison. Ce chapitre a également mis en évidence la nécessité de prendre en compte le paramètre température dans la méthode statistique, car de nombreuses études ont montré que les changements en termes de fréquence de régimes (ou types) de temps ne suffisent pas à expliquer les changements observés.

Si un dense réseau d'observations journalières de $PM_{2.5}$ avec spéciation chimique est disponible aux États-Unis, ce n'est pas encore le cas en Europe. Or, l'attribution de chaque jour de la période d'apprentissage à l'un des 14 types de temps impose que de telles observations soient disponibles. Dans le Chapitre 3, nous avons donc créé un jeu de données de concentrations de $PM_{2.5}$ à l'aide du modèle de chimie-transport Polyphemus/Polair3D développé au CEREA. Le domaine de cette simulation s'étend par mailles d'environ 50 km de l'Islande à Moscou en longitude, et du détroit de Gibraltar au cap Nord en latitude, avec 14 niveaux verticaux (de la surface jusqu'à environ 12 km d'altitude). Les données d'entrées du modèles sont fournies par les réanalyses ECMWF pour les variables météorologiques, EMEP pour les émissions anthropiques et MOZART-4 pour les conditions aux limites. Avant de pouvoir utiliser les sorties du modèle en tant que pseudo-observations de concentrations de $PM_{2.5}$, il a été nécessaire d'évaluer ce jeu de données. Nous avons donc comparé les résultats de cette simulation aux observations fournies par le réseau EMEP. Deux types d'évaluations ont ainsi été menées : une évaluation opérationnelle et une évaluation dynamique. L'évaluation opérationnelle a permis de vérifier que la simulation reproduisait bien les concentrations de $PM_{2.5}$ et de ses principaux composants. À cette fin, nous avons utilisé des scores classiques et comparé la performance du modèle à celles d'autres modèles ayant simulé au moins un an de concentrations de particules fines sur l'Europe. À la mesure d'une telle comparaison, la performance du modèle est satisfaisante et comparable à celle des autres modèles de chimie-transport, avec notamment les même faiblesses concernant l'estimation des concentrations de nitrate et d'ammonium. Toutefois, le jeu de données est avant tout conçu pour estimer l'impact du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$. Il est donc essentiel de s'assurer que les concentrations simulées de $PM_{2.5}$ reproduisent de manière satisfaisante la réponse des $PM_{2.5}$ et de ses composants à des changements dans les variables météorologiques : c'est le but de l'évaluation dynamique. Nous avons donc calculé, pour les données observées et simulées, la corrélation entre la température (ainsi que le vent et les précipitations) pour un jour donné et les concentrations de $PM_{2.5}$ et de ses composants le jour même et pour les 10 jours suivants. La réponse des $PM_{2.5}$ aux changements dans la météorologie diffère sensiblement en fonction des stations et des variables météorologiques examinées. Les effets des précipitations et du vent sont bien reproduits par le modèle, bien qu'ils soient

parfois surestimés. Il est, en revanche, plus difficile de représenter correctement la réponse des $PM_{2.5}$ aux variations de température car celle-ci, contrairement au vent et aux précipitations, affecte chaque composant des $PM_{2.5}$ de façon différente. La réponse du modèle est cependant toujours du même signe que celle des observations, quels que soient les stations et les polluants considérés. Cette étude représente, à notre connaissance, la première évaluation dynamique d'une simulation de polluants en fonction de la météorologie.

Le Chapitre 4 a été non seulement consacré au développement d'une nouvelle méthode statistique permettant d'estimer les concentrations de $PM_{2.5}$ en fonction de la météorologie, mais également à l'évaluation et à l'application de cette méthode au changement climatique. Le but d'une telle méthode est d'établir une relation entre concentrations de $PM_{2.5}$ (ici pseudo-observées), types de temps et variables météorologiques (pression de surface, température, précipitations et vent). Une telle relation est établie puis évaluée sur la période d'apprentissage (200-2008), période sur laquelle nous disposons de concentrations pseudo-observées de $PM_{2.5}$ sur l'Europe. L'établissement d'une telle relation se déroule en deux étapes : l'étape de régression et l'étape des jours analogues. Dans la première, une estimation préliminaire est obtenue à partir des variables météorologiques, des types de temps et des concentrations pseudo-observées de $PM_{2.5}$. Dans la seconde, un ré-échantillonnage est établi en fonction des types de temps observés (sélection de jours partageant la même circulation atmosphérique) et des cartes de $PM_{2.5}$ estimées par l'équation de régression. Une fois évaluée, la relation a ensuite été projetée à l'aide des scénarios climatiques fournis par le CNRM, réalisés dans le cadre du $5^{\text{ème}}$ Rapport du GIEC, sur les périodes 1975-2004 (période historique), 2020-2049 et 2070-2099 (périodes futures). Un tel choix permet ainsi des comparaisons de type *futur* − *présent* en s'affranchissant des biais présents dans le modèle climatique. Nous montrons ainsi l'augmentation systématique des concentrations de particules fines au Royaume-Uni, dans le nord de la France, au Benelux ainsi que dans les Balkans, et leur diminution dans le nord, le sud-est et l'est de l'Europe, en Italie et en Pologne. Nous remarquons également que l'évolution moyenne des variables météorologiques ne suffit pas à expliquer les variations observées en termes de concentrations de particules fines. Nous avons donc quantifié les parts de changements dues à des modifications de type inter-types (c'est-à-dire l'évolution des fréquences des types de temps) et celles dues à des modifications de type intra-types (c'est-à-dire pour un type de temps donné, l'évolution de la relation entre météorologie et $PM_{2.5}$ ou l'évolution des valeurs des variables météorologiques). Il apparaît que les régions les plus proches de l'océan Atlantique sont plus enclines à subir les modifications des fréquences de régimes de temps que les autres régions. En outre, dans beaucoup de régions, les parts de changements dues aux modifications inter et intra-régimes sont du même ordre de grandeur. La relation entre les types de temps et les concentrations de $PM_{2.5}$ peut évoluer dans le futur, de même que la relation entre les types de temps et les variables météorologiques ou encore celle entre types de temps et circulation atmosphérique.

Cette thèse apporte ainsi des éléments de réponse concernant l'influence du changement climatique sur la qualité de l'air. Cependant, les travaux qui ont été menés comportent quelques limites.

Tout d'abord, le nombre de stations de mesures utilisé pour l'évaluation dynamique dans le Chapitre 3 demeure insuffisant pour conclure de manière définitive sur la capacité du modèle à reproduire correctement les concentrations de $PM_{2.5}$ sur toute l'Europe en fonction des changements dans les variables météorologiques. Le réseau de mesures de $PM_{2.5}$ et de ses composants devrait cependant continuer à s'étendre dans les années à venir et permettre ainsi de mener de telles évaluations de façon systématique.

Ensuite, l'approche statistique développée dans le Chapitre 4 pourra être améliorée de plusieurs façons. Tout d'abord, les résultats de cette étude doivent être considérés avec prudence car ils n'ont été

obtenus qu'à partir d'un seul modèle météorologique. De plus, il serait préférable, pour améliorer la performance de la méthode et par conséquent les projections de $PM_{2.5}$, que l'algorithme soit construit et évalué à partir d'observations. Ceci peut être fait pour l'Amérique du Nord où un réseau de mesures de $PM_{2.5}$ suffisamment complet existe, et dans le futur en Europe si un réseau suffisamment dense et continu est implémenté. Par ailleurs, des incertitudes demeurent également concernant les types de temps (utilisation de deux saisons plutôt que quatre, nombre différent de types de temps selon le lieu ou la saison dans l'équation de régression, ...) ainsi que les variables météorologiques utilisées pour l'équation de régression.

Enfin le choix du nombre de types de temps dans l'algorithme de classification représente également une limite. En effet, il a été nécessaire de choisir un nombre de types de temps pour lequel il y avait suffisamment de jours au sein de chaque type de temps. Pour une période d'apprentissage de neuf ans, ceci représente un véritable défi.

Plusieurs perspectives peuvent être dégagées à l'issue de ce travail de recherche. La démonstration de l'algorithme a été effectuée avec un seul modèle climatique. Il pourra être appliqué à différents modèles dans des travaux futurs. Ainsi, en utilisant un ensemble de simulations de modèles climatiques pour chaque scénario considéré, nous pourrions estimer la gamme de variation des $PM_{2.5}$, et différencier quelle part des changements est due à l'incertitude liée aux modèles climatiques, aux scénarios d'émissions de gaz à effet de serre et au changement climatique.

Une autre perspective intéressante consisterait à étudier la future fréquence des évènements extrêmes de pollution. Ceci imposerait des développements supplémentaires (par exemple, considérer des quantiles au lieu d'anomalies standardisées dans l'équation de régression) car la méthode statistique peine, en l'état, à reproduire de tels évènements sur la période d'apprentissage.

Il serait également pertinent d'affiner la définition des types de temps, de sorte qu'ils soient plus adaptés à chaque sous-région d'Europe. Ceci permettrait alors de diminuer localement la variabilité intra-type. Néanmoins, il est nécessaire de faire attention à ne pas tomber dans l'extrême inverse car les types de temps doivent, par définition, être et rester témoins de la circulation de grande échelle.

L'effet des conditions aux limites du domaine étudié n'a pas été pris en compte dans cette thèse. Si l'évolution de ces conditions aux limites est négligeable pour de nombreux composants des $PM_{2.5}$ (nitrate, ammonium, composés carbonés), elle ne l'est pas pour le sulfate et pourrait être importante pour d'autres espèces (poussières telluriques par exemple, en raison du changement de l'utilisation des sols). Cet effet pourrait être pris en compte à partir de résultats de simulations globales de l'effet du changement climatique sur les $PM_{2.5}$.

Enfin, il est essentiel de continuer les efforts en termes de mise à disposition et d'uniformisation des données, qu'elles soient observées ou simulées. De telles bases de données fournissent un nombre considérable d'informations, permettant ainsi de réaliser des études d'impact crédibles du changement climatique.

Annexes

A Annexes du Chapitre 3

A.1 Comparison with other modeling studies in the context of AQMEII

Table A1: Comparisons to observations for surface PM_{10} and $PM_{2.5}$ over Europe (concentrations and RMSE are in $\mu g\,m^{-3}$) from 7 July to 31 August for this simulation (2000–2008) and the AQMEII models (2006) (Sartelet et al., 2012).

	PM_{10}				$PM_{2.5}$			
	This work	AQMEII models			This work	AQMEII models		
		Min	Mean	Max		Min	Mean	Max
Number of stations	12	235	235	235	7	39	39	39
Mean observed	15.9	23.2	23.2	23.2	11.5	13.3	13.3	13.3
Mean simulated	16.6	6.2	12.9	23.4	16	5	12.3	21.4
RMSE	7.7	16.2	23.2	24.6	7.2	11.4	24.1	69.2
Correlation	57.3 %	8.2 %	17.3 %	25 %	67.6 %	3.2 %	11.8 %	21.1 %
MFB	7.6 %	−111.0 %	−64.3 %	3.9 %	32.7 %	−85.7 %	−30.5 %	44.9 %
MFE	35.4 %	44.5 %	80.8 %	113 %	43.4 %	55.1 %	72.3 %	94.2 %

A.2 Comparison with model performance evaluations of 1 year simulations over Europe

Table A2: Comparison for $PM_{2.5}$ with Péré et al. (2010), Pay et al. (2010), Tuccella et al. (2012), and Appel et al. (2012). The data from this work are averaged over 2000–2008.

References	Péré et al.	Pay et al.	Tuccella et al.	Appel et al.	This work
Models	CHIMERE	CALIOPE-EU	WRF/Chem	CMAQ	Polair3D
Year(s) simulated	(2003)	(2004)	(2007)	(2006)	(averaged 2000–2008)
Number of stations	11	16	NA	160	22
Obs ($\mu g\,m^{-3}$)	12.2	13.0	12.6		13.3
Sim ($\mu g\,m^{-3}$)	15.1	6.3	8.6		15.9
Correlation (%)	73	45	41		59
RMSE ($\mu g\,m^{-3}$)		11.6			9
MFB (%)		−74			29.8
MFE (%)		81			47.7
MNB (%)			−7.3		62
MNE (%)			59.6		76
NMB (%)	24.2			−46.6	26.4
NME (%)				55.2	53.1

Table A3: Comparison for sulfate with Péré et al. (2010) and Tuccella et al. (2012). The data from this work are averaged over 2000–2008.

References	Péré et al.	Tuccella et al.	This work
Models	CHIMERE	WRF/Chem	Polair3D
Year(s) simulated	(2003)	(2007)	(averaged 2000–2008)
Number of stations	11	NA	77
Obs (μg m^{-3})	3.9	2.4	2.3
Sim (μg m^{-3})	4.0	0.9	2.2
Correlation (%)	50	50	56
MNB (%)		−46.9	16.6
MNE (%)		64.9	51.3
NMB (%)	4.25		4.5

Table A4: Comparison for nitrate with Péré et al. (2010) and Tuccella et al. (2012). The data from this work are averaged over 2000–2008.

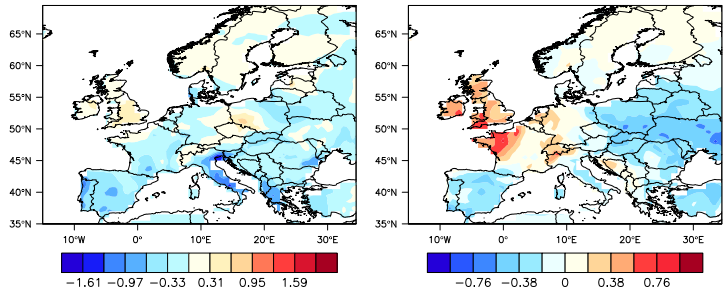
References	Péré et al.	Tuccella et al.	This work
Models	CHIMERE	WRF/Chem	Polair3D
Year(s) simulated	(2003)	(2007)	(averaged 2000–2008)
Number of stations	11	NA	33
Obs (μg m^{-3})	3.1	2.9	2
Sim (μg m^{-3})	4.6	4.4	3.6
Correlation (%)	59	48	42
MNB (%)		115.2	123.8
MNE (%)		169.3	163.7
NMB (%)	36.7		112.2

Table A5: Comparison for ammonium with Péré et al. (2010) and Tuccella et al. (2012). The data from this work are averaged over 2000–2008.

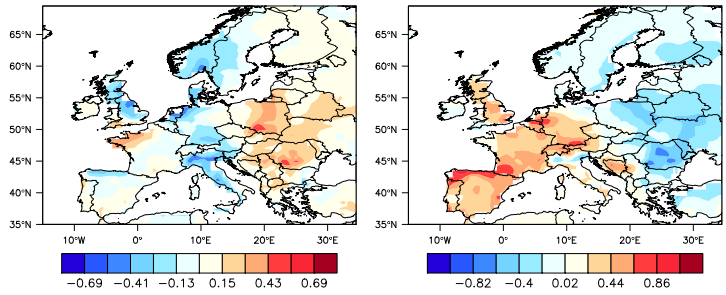
References	Péré et al.	Tuccella et al.	This work
Models	CHIMERE	WRF/Chem	Polair3D
Year(s) simulated	(2003)	(2007)	(averaged 2000–2008)
Number of stations	11	NA	34
Obs (μg m^{-3})	2.1	1.8	0.9
Sim (μg m^{-3})	3.1	1.7	1.4
Correlation (%)	60	57	58
MNB (%)		96.4	59.9
MNE (%)		139	86.2
NMB (%)	48.5		47.7

B Annexes du Chapitre 4

B.1 Seasonal response of $PM_{2.5}$ under RCP4.5

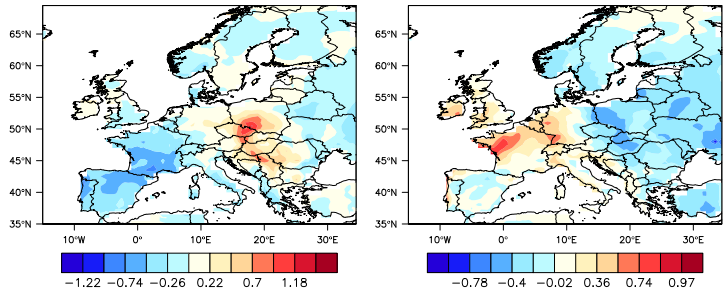


(a) DJF (b) MAM

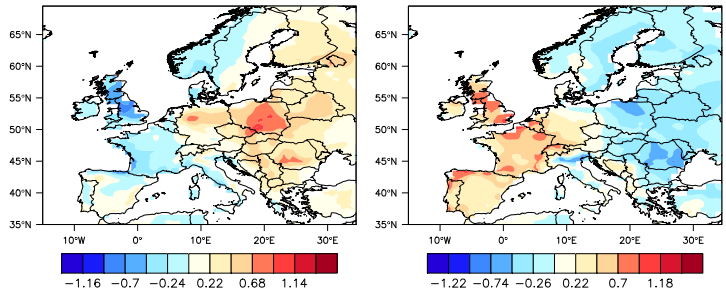


(c) JJA (d) SON

Figure B1: Difference between the average $PM_{2.5}$ in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario ($\mu g\,m^{-3}$).



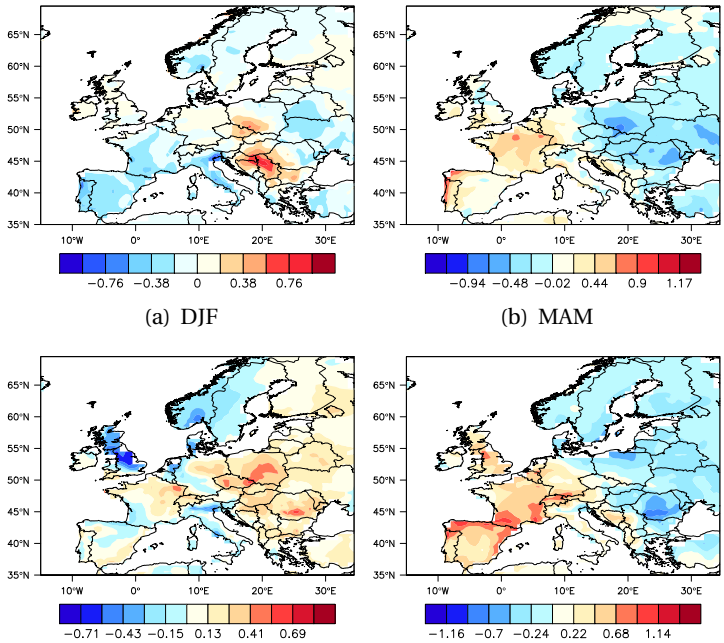
(a) DJF (b) MAM



(c) JJA (d) SON

Figure B2: Difference between the average $PM_{2.5}$ in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario ($\mu g\,m^{-3}$).

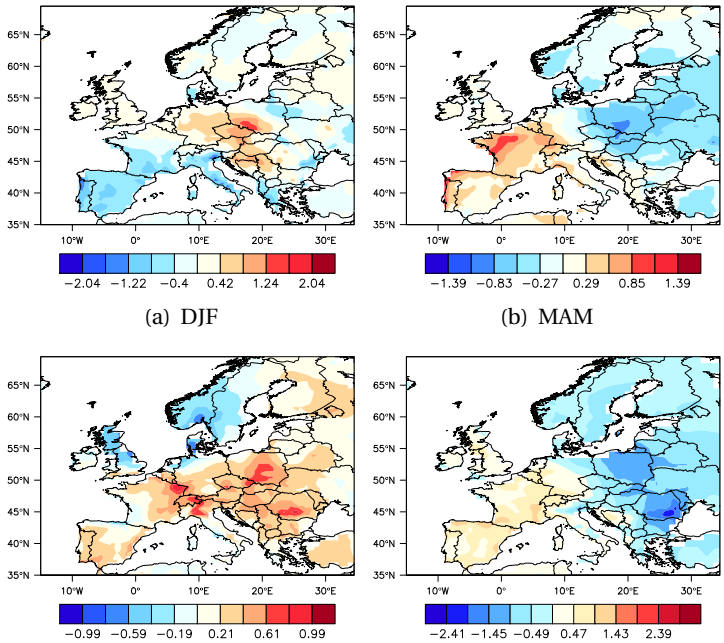
B.2 Seasonal response of $PM_{2.5}$ under RCP8.5



(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

Figure B3: Difference between the average $PM_{2.5}$ in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario ($\mu g\,m^{-3}$).

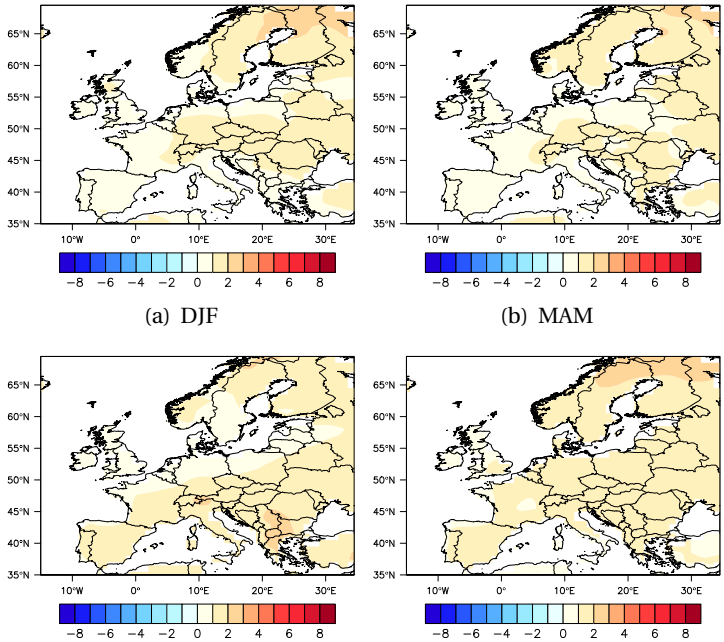


(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

Figure B4: Difference between the average $PM_{2.5}$ in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario ($\mu g\,m^{-3}$).

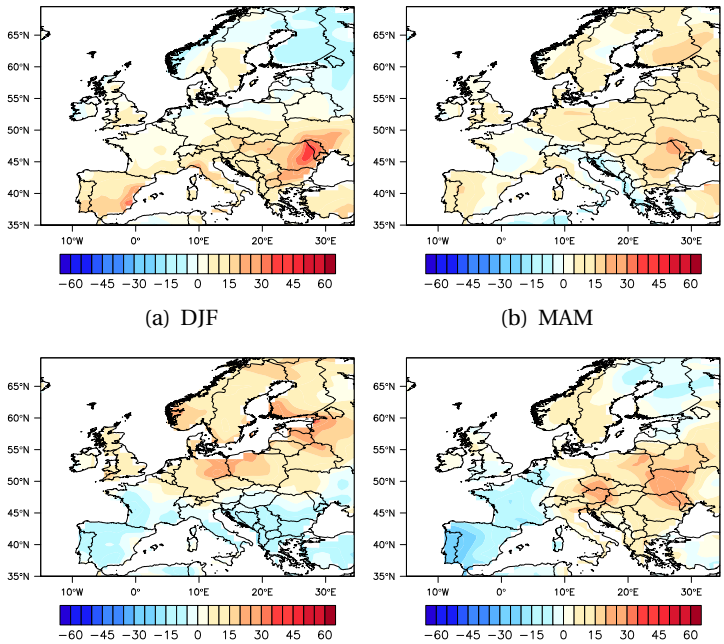
B.3 Seasonal response of meteorological variables under RCP4.5



(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

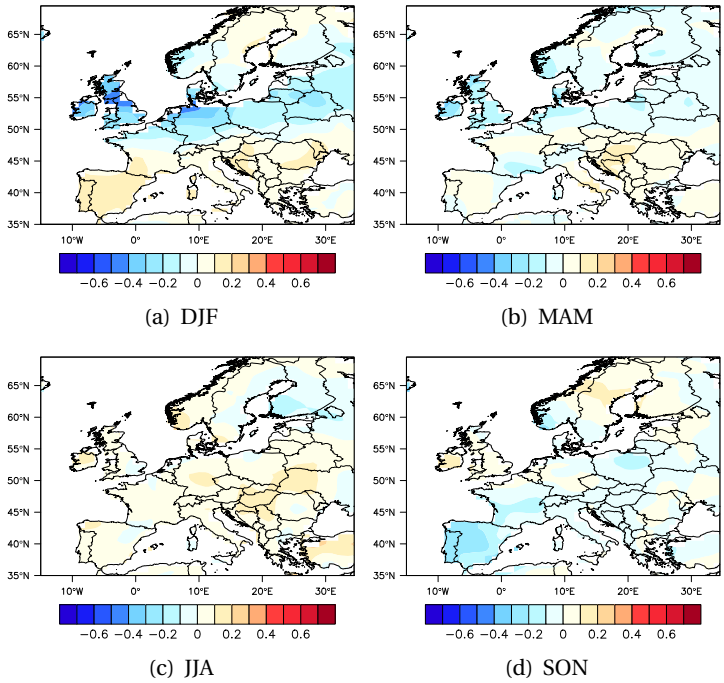
Figure B5: Difference between the average temperature in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (K).



(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

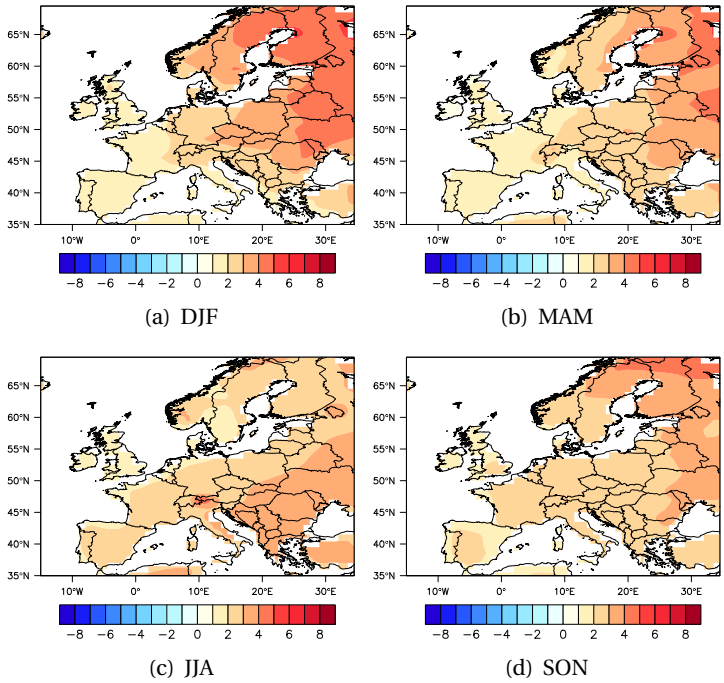
Figure B6: Evolution of the average precipitation in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (%).



(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

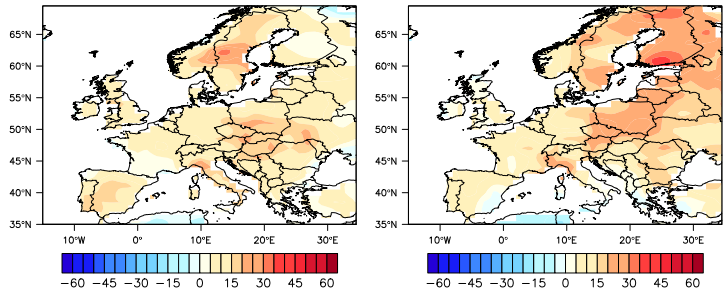
Figure B7: Difference between the average surface wind speed in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (m s^{-1}).



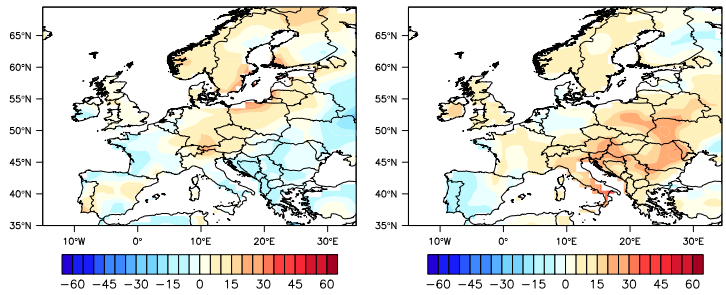
(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

Figure B8: Difference between the average temperature in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (K).

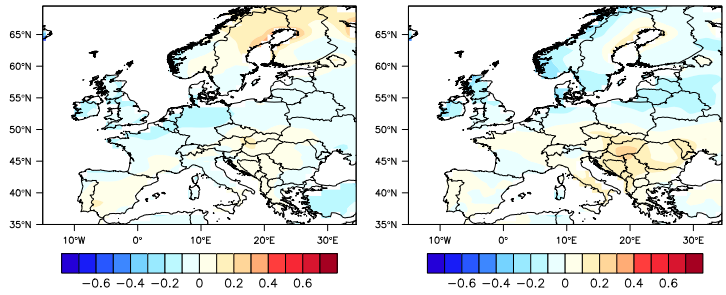


(a) DJF (b) MAM

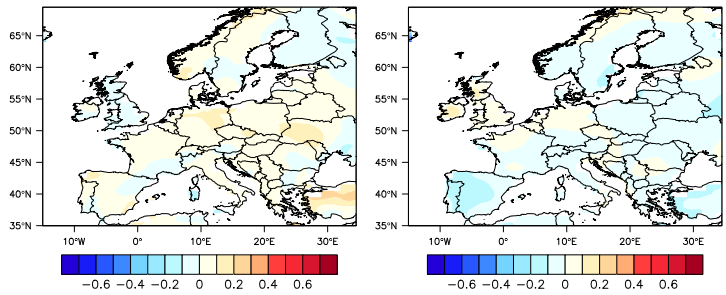


(c) JJA (d) SON

Figure B9: Evolution of the average precipitation in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (%).



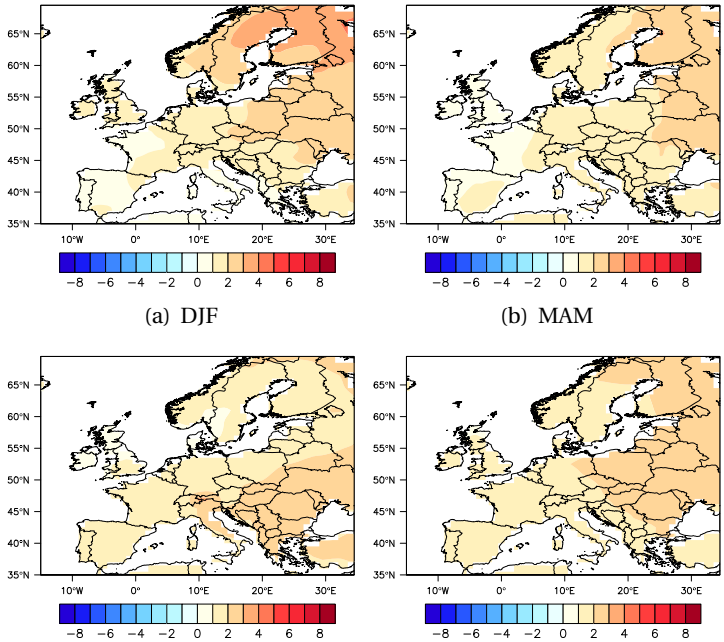
(a) DJF (b) MAM



(c) JJA (d) SON

Figure B10: Difference between the average surface wind speed in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (m s^{-1}).

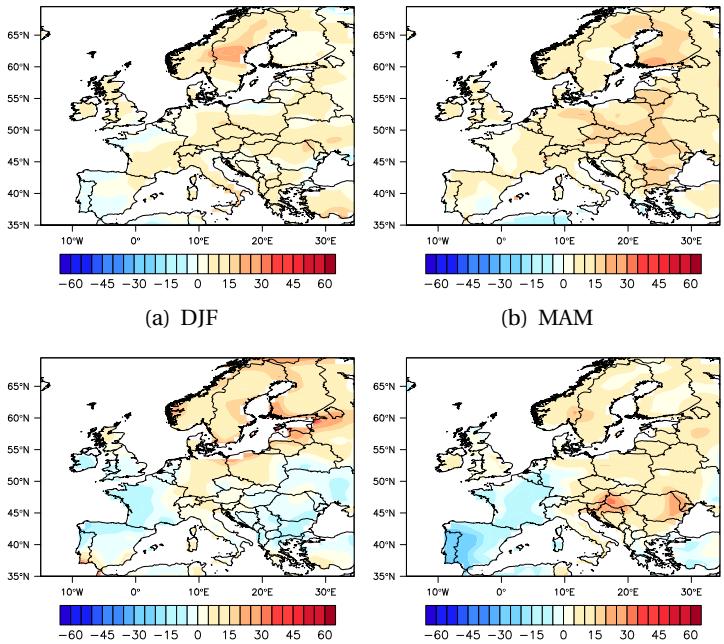
B.4 Seasonal response of meteorological variables under RCP8.5



(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

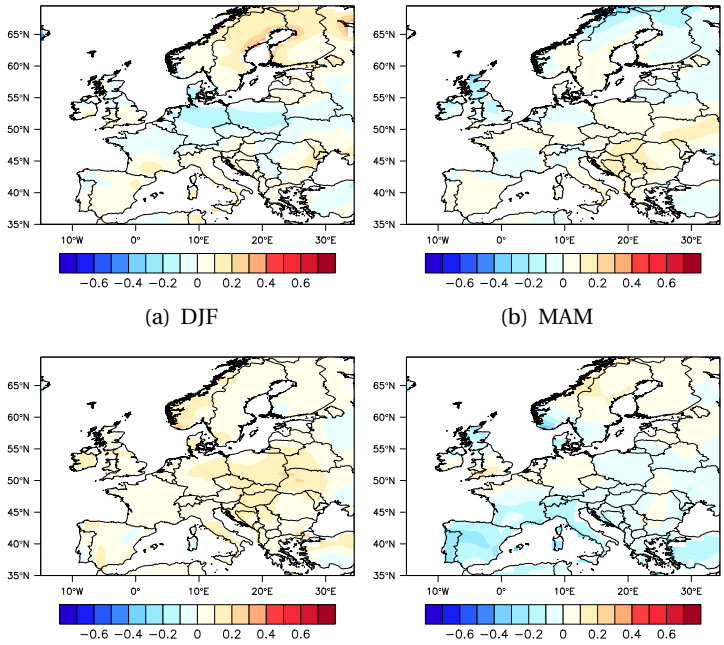
Figure B11: Difference between the average temperature in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (K).



(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

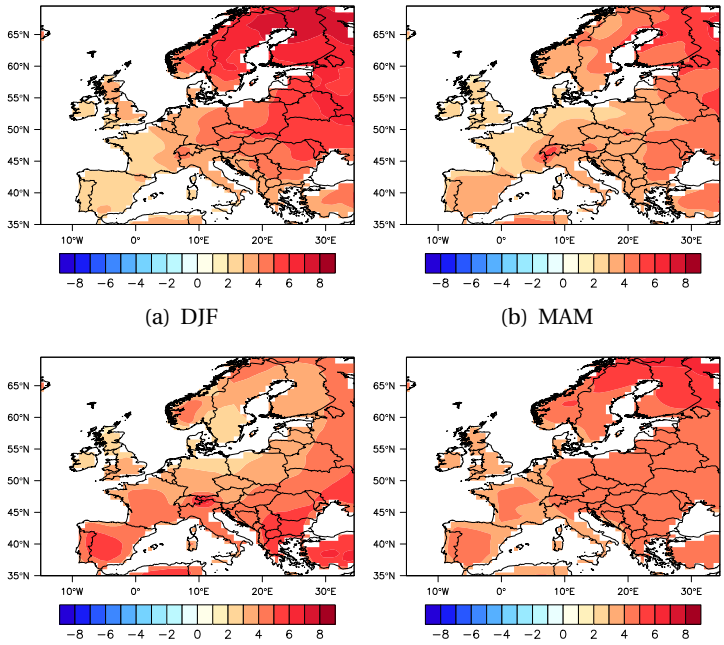
Figure B12: Evolution of the average precipitation in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (%).



(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

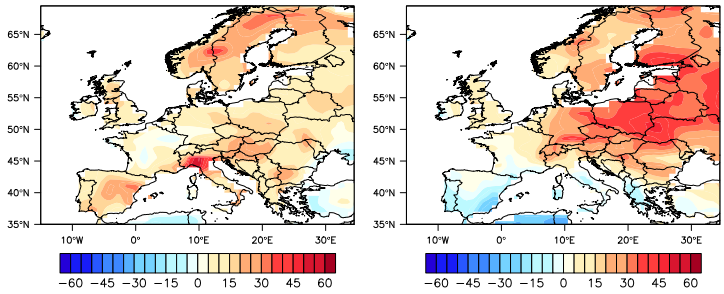
Figure B13: Difference between the average surface wind speed in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (m s^{-1}).



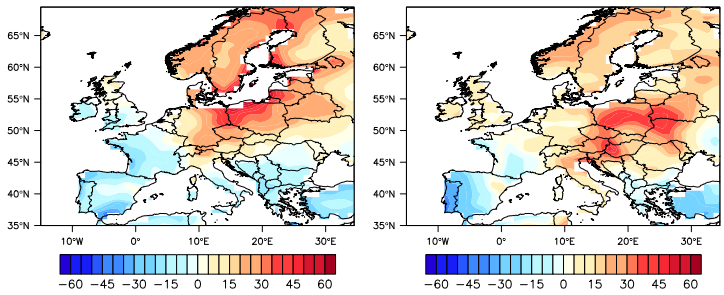
(a) DJF (b) MAM

(c) JJA (d) SON

Figure B14: Difference between the average temperature in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (K).

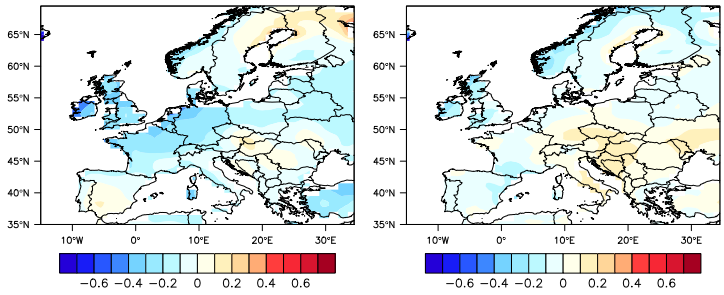


(a) DJF (b) MAM

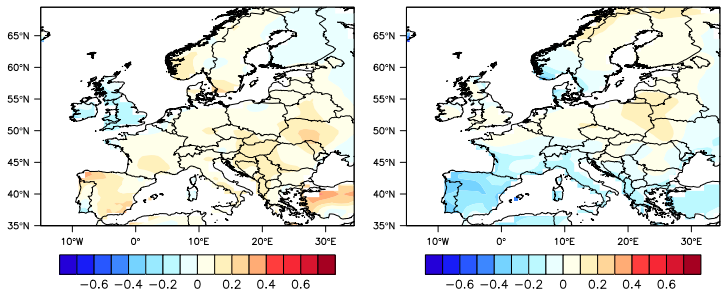


(c) JJA (d) SON

Figure B15: Evolution of the average precipitation in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (%).



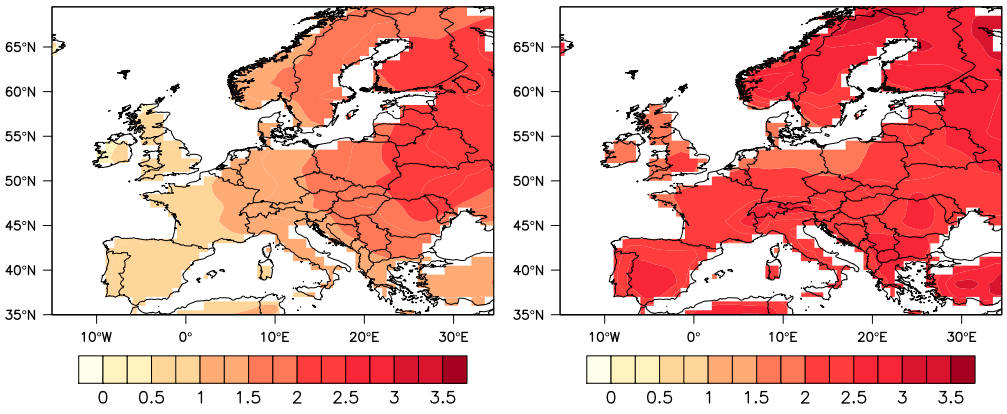
(a) DJF (b) MAM



(c) JJA (d) SON

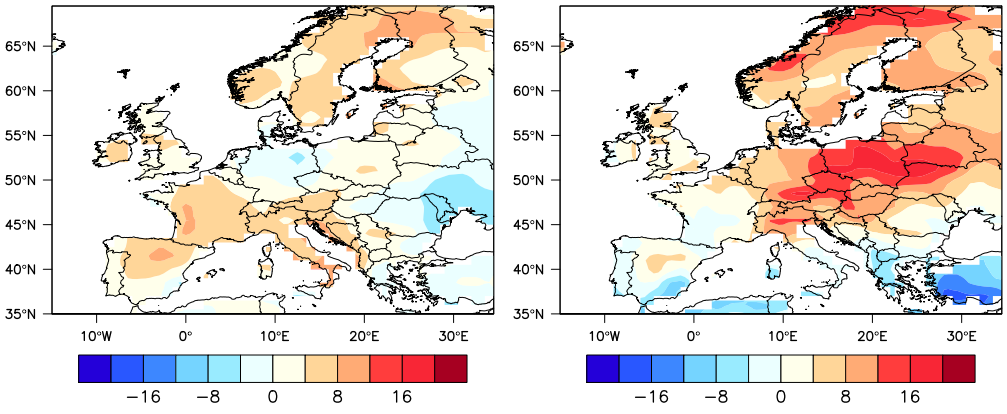
Figure B16: Difference between the average surface wind speed in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (m s^{-1}).

B.5 Comparison in annual meteorological variables between the distant and near futures



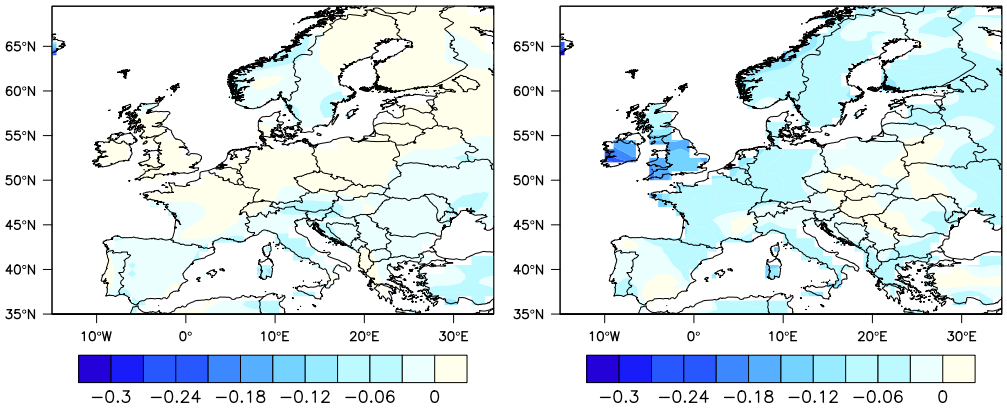
(a) (b)

Figure B17: Difference between the annual temperature (°C) in the distant and near future for the RCP4.5 (a) and RCP8.5 (b) scenarios.



(a) (b)

Figure B18: Difference between the annual precipitation (%) in the distant and near future for the RCP4.5 (a) and RCP8.5 (b) scenarios.



(a) (b)

Figure B19: Difference between the annual wind speed (m s^{-1}) in the distant and near future for the RCP4.5 (a) and RCP8.5 (b) scenarios.

B.6 Range of variation of $PM_{2.5}$ and its components among future periods and scenarios

Table B1: Range of variation of $PM_{2.5}$ and its components* for the RCP4.5 scenario (2020-2049), compared to the historical period ($\mu g\, m^{-3}$).

	DJF	**MAM**	**JJA**	**SON**	**Annual**
	$PM_{2.5}$ [-0.83; 1.05]	$PM_{2.5}$ [-0.4; 0.22]	$PM_{2.5}$ [-0.47; 0.34]	$PM_{2.5}$ [-0.45; 0.35]	$PM_{2.5}$ [-0.36; 0.17]
	$SO_4^=$ [-0.07; 0.09]	$SO_4^=$ [-0.08; 0.04]	$SO_4^=$ [-0.05; 0.08]	$SO_4^=$ [-0.12; 0.03]	$SO_4^=$ [-0.04; 0.02]
	NO_3^- [-0.06; 0.16]	NO_3^- [-0.16; 0.08]	NO_3^- [-0.23; 0.12]	NO_3^- [-0.19; 0]	NO_3^- [-0.08; 0.03]
Northern	NH_4^+ [-0.03; 0.09]	NH_4^+ [-0.07; 0.03]	NH_4^+ [-0.07; 0.06]	NH_4^+ [-0.09; 0.01]	NH_4^+ [-0.03; 0.02]
Europe	Dust [-0.02; 0.14]	Dust [-0.03; 0.09]	Dust [-0.05; 0.06]	Dust [-0.03; 0.02]	Dust [-0.01; 0.05]
	BC [-0.01; 0.08]	BC [-0.02; 0.01]	BC [-0.01; 0]	BC [-0.01; 0.01]	BC [-0; 0.02]
	SS [-0.89; 0.09]	SS [-0.27; 0.09]	SS [-0.05; 0.15]	SS [-0.05; 0.36]	SS [-0.27; 0.11]
	OM [-0.01; 0.88]	OM [-0.11; 0.21]	OM [-0.29; 0.05]	OM [-0.09; 0.07]	OM [-0.03; 0.19]
	$PM_{2.5}$ [-1.5; 0.09]	$PM_{2.5}$ [-0.63; 0.3]	$PM_{2.5}$ [-0.5; 0.36]	$PM_{2.5}$ [-0.5; 1.03]	$PM_{2.5}$ [-0.5; 0.24]
	$SO_4^=$ [-0.27; 0.14]	$SO_4^=$ [-0.19; 0.16]	$SO_4^=$ [-0.16; 0.15]	$SO_4^=$ [-0.15; 0.3]	$SO_4^=$ [-0.12; 0.16]
	NO_3^- [-0.58; 0.08]	NO_3^- [-0.25; 0.06]	NO_3^- [-0.17; 0.07]	NO_3^- [-0.16; 0.32]	NO_3^- [-0.21; 0.03]
Southern	NH_4^+ [-0.18; 0.04]	NH_4^+ [-0.08; 0.05]	NH_4^+ [-0.06; 0.05]	NH_4^+ [-0.08; 0.16]	NH_4^+ [-0.06; 0.04]
Europe	Dust [-0.24; 0.04]	Dust [-0.19; 0.16]	Dust [-0.11; 0.22]	Dust [-0.08; 0.2]	Dust [-0.06; 0.06]
	BC [-0.1; 0.01]	BC [-0.04; 0.01]	BC [-0.03; 0.02]	BC [-0.02; 0.05]	BC [-0.02; 0]
	SS [-0.06; 0.25]	SS [-0.14; 0.18]	SS [-0.05; 0.09]	SS [-0.3; 0.09]	SS [-0.06; 0.1]
	OM [-0.57; 0.04]	OM [-0.27; 0.09]	OM [-0.21; 0.12]	OM [-0.18; 0.33]	OM [-0.19; 0.04]
	$PM_{2.5}$ [-1.61; 0.82]	$PM_{2.5}$ [-0.62; 0.67]	$PM_{2.5}$ [-0.61; 0.58]	$PM_{2.5}$ [-0.7; 0.77]	$PM_{2.5}$ [-0.63; 0.26]
	$SO_4^=$ [-0.23; 0.36]	$SO_4^=$ [-0.12; 0.19]	$SO_4^=$ [-0.05; 0.16]	$SO_4^=$ [-0.21; 0.3]	$SO_4^=$ [-0.1; 0.16]
	NO_3^- [-0.66; 0.13]	NO_3^- [-0.32; 0.27]	NO_3^- [-0.33; 0.19]	NO_3^- [-0.36; 0.39]	NO_3^- [-0.35; 0.11]
Central	NH_4^+ [-0.22; 0.15]	NH_4^+ [-0.11; 0.1]	NH_4^+ [-0.09; 0.08]	NH_4^+ [-0.12; 0.14]	NH_4^+ [-0.1; 0.05]
Europe	Dust [-0.12; 0.06]	Dust [-0.02; 0.16]	Dust [-0.07; 0.09]	Dust [-0.06; 0.08]	Dust [-0.01; 0.07]
	BC [-0.09; 0.05]	BC [-0.04; 0.03]	BC [-0.04; 0.03]	BC [-0.02; 0.08]	BC [-0.04; 0.04]
	SS [-0.45; 0.05]	SS [-0.25; 0.02]	SS [-0.05; 0.05]	SS [-0.06; 0.07]	SS [-0.14; 0.03]
	OM [-0.47; 0.23]	OM [-0.17; 0.14]	OM [-0.19; 0.19]	OM [-0.16; 0.28]	OM [-0.18; 0.09]
	$PM_{2.5}$ [-0.7; 0.6]	$PM_{2.5}$ [-0.14; 0.85]	$PM_{2.5}$ [-0.56; 0.44]	$PM_{2.5}$ [-0.28; 0.77]	$PM_{2.5}$ [-0.13; 0.48]
	$SO_4^=$ [-0.05; 0.17]	$SO_4^=$ [-0.07; 0.11]	$SO_4^=$ [-0.08; 0.05]	$SO_4^=$ [-0.03; 0.15]	$SO_4^=$ [-0.01; 0.07]
	NO_3^- [-0.28; 0.24]	NO_3^- [-0.15; 0.4]	NO_3^- [-0.29; 0.28]	NO_3^- [-0.11; 0.39]	NO_3^- [-0.06; 0.22]
Western	NH_4^+ [-0.08; 0.11]	NH_4^+ [-0.04; 0.14]	NH_4^+ [-0.1; 0.1]	NH_4^+ [-0.04; 0.14]	NH_4^+ [-0.01; 0.08]
Europe	Dust [-0.02; 0.1]	Dust [0; 0.15]	Dust [-0.03; 0.06]	Dust [-0.01; 0.08]	Dust [0; 0.07]
	BC [-0.03; 0.06]	BC [-0.01; 0.03]	BC [-0.02; 0.03]	BC [-0; 0.08]	BC [-0.01; 0.04]
	SS [-0.61; 0.14]	SS [-0.24; 0.19]	SS [-0.31; 0.09]	SS [-0.39; 0.26]	SS [-0.27; 0.04]
	OM [-0.33; 0.18]	OM [-0.07; 0.26]	OM [-0.14; 0.09]	OM [-0.01; 0.28]	OM [-0.06; 0.12]
	$PM_{2.5}$ [-1.01; 1.05]	$PM_{2.5}$ [-0.95; 0.04]	$PM_{2.5}$ [-0.1; 0.51]	$PM_{2.5}$ [-0.76; -0]	$PM_{2.5}$ [-0.44; 0.17]
	$SO_4^=$ [-0.23; 0.16]	$SO_4^=$ [-0.2; 0.06]	$SO_4^=$ [-0.04; 0.16]	$SO_4^=$ [-0.22; 0.01]	$SO_4^=$ [-0.11; 0.01]
	NO_3^- [-0.23; 0.09]	NO_3^- [-0.21; 0]	NO_3^- [-0.03; 0.06]	NO_3^- [-0.23; -0.01]	NO_3^- [-0.12; -0.02]
Eastern	NH_4^+ [-0.12; 0.05]	NH_4^+ [-0.11; 0.01]	NH_4^+ [-0.02; 0.07]	NH_4^+ [-0.12; 0]	NH_4^+ [-0.07; -0]
Europe	Dust [-0.22; 0.14]	Dust [-0.22; 0.09]	Dust [-0.04; 0.1]	Dust [-0.08; 0.05]	Dust [-0.1; 0.05]
	BC [-0.08; 0.08]	BC [-0.07; 0]	BC [-0.01; 0.01]	BC [-0.03; 0.02]	BC [-0.03; 0.02]
	SS [-0.26; 0.2]	SS [-0.11; 0.14]	SS [-0.02; 0.02]	SS [-0.06; 0.07]	SS [-0.07; 0.06]
	OM [-0.42; 0.88]	OM [-0.23; 0.03]	OM [-0.06; 0.24]	OM [-0.17; 0.03]	OM [-0.14; 0.19]

* $SO_4^=$: inorganic sulfate; NO_3^-: inorganic nitrate; NH_4^+: inorganic ammonium; Dust: inorganic soil dust; BC: black carbon; SS: sea salt; OM:organic matter.

Table B2: Range of variation of $PM_{2.5}$ and its components for the RCP4.5 scenario (2070-2099), compared to the historical period ($\mu g\, m^{-3}$).

	DJF	**MAM**	**JJA**	**SON**	**Annual**
	$PM_{2.5}$ [-0.6; 0.55]	$PM_{2.5}$ [-0.53; 0.19]	$PM_{2.5}$ [-0.46; 0.78]	$PM_{2.5}$ [-0.58; 0.58]	$PM_{2.5}$ [-0.29; 0.25]
	$SO_4^=$ [-0.08; 0.2]	$SO_4^=$ [-0.08; 0.04]	$SO_4^=$ [-0.04; 0.17]	$SO_4^=$ [-0.12; 0.06]	$SO_4^=$ [-0.03; 0.05]
	NO_3^- [-0.13; 0.13]	NO_3^- [-0.18; 0.09]	NO_3^- [-0.21; 0.2]	NO_3^- [-0.26; 0.03]	NO_3^- [-0.1; 0.01]
Northern	NH_4^+ [-0.04; 0.11]	NH_4^+ [-0.07; 0.01]	NH_4^+ [-0.05; 0.1]	NH_4^+ [-0.1; 0.03]	NH_4^+ [-0.03; 0.02]
Europe	Dust [-0.13; 0.02]	Dust [-0.09; 0.07]	Dust [-0.08; 0.11]	Dust [-0.04; 0.04]	Dust [-0.05; 0.02]
	BC [-0.04; 0.01]	BC [-0.01; 0.02]	BC [-0.01; 0.02]	BC [-0.02; 0.01]	BC [-0.01; 0]
	SS [-0.18; 0.44]	SS [-0.17; 0.12]	SS [-0.13; 0.21]	SS [-0.06; 0.62]	SS [-0.12; 0.25]
	OM [-0.37; 0.05]	OM [-0.1; 0.19]	OM [-0.32; 0.42]	OM [-0.18; 0.08]	OM [-0.12; 0.04]
	$PM_{2.5}$ [-0.84; 0.52]	$PM_{2.5}$ [-0.51; 0.84]	$PM_{2.5}$ [-0.8; 0.54]	$PM_{2.5}$ [-0.57; 1.13]	$PM_{2.5}$ [-0.2; 0.24]
	$SO_4^=$ [-0.1; 0.32]	$SO_4^=$ [-0.09; 0.22]	$SO_4^=$ [-0.13; 0.29]	$SO_4^=$ [-0.17; 0.35]	$SO_4^=$ [-0.07; 0.13]
	NO_3^- [-0.3; 0.14]	NO_3^- [-0.16; 0.16]	NO_3^- [-0.21; 0.21]	NO_3^- [-0.16; 0.43]	NO_3^- [-0.06; 0.08]
Southern	NH_4^+ [-0.11; 0.14]	NH_4^+ [-0.05; 0.11]	NH_4^+ [-0.07; 0.13]	NH_4^+ [-0.1; 0.2]	NH_4^+ [-0.04; 0.05]
Europe	Dust [-0.13; 0.02]	Dust [-0.3; 0.12]	Dust [-0.16; 0.2]	Dust [-0.09; 0.17]	Dust [-0.06; 0.02]
	BC [-0.04; 0.01]	BC [-0.06; 0.04]	BC [-0.04; 0.02]	BC [-0.03; 0.07]	BC [-0.01; 0.01]
	SS [-0.13; 0.23]	SS [-0.16; 0.21]	SS [-0.1; 0.13]	SS [-0.28; 0.15]	SS [-0.09; 0.08]
	OM [-0.32; 0.18]	OM [-0.12; 0.22]	OM [-0.4; 0.3]	OM [-0.22; 0.37]	OM [-0.07; 0.09]
	$PM_{2.5}$ [-0.53; 1.22]	$PM_{2.5}$ [-0.54; 0.64]	$PM_{2.5}$ [-0.49; 1.16]	$PM_{2.5}$ [-0.79; 0.97]	$PM_{2.5}$ [-0.25; 0.4]
	$SO_4^=$ [-0.1; 0.63]	$SO_4^=$ [-0.15; 0.11]	$SO_4^=$ [-0.07; 0.28]	$SO_4^=$ [-0.17; 0.21]	$SO_4^=$ [-0.03; 0.18]
	NO_3^- [-0.22; 0.16]	NO_3^- [-0.18; 0.36]	NO_3^- [-0.22; 0.64]	NO_3^- [-0.52; 0.35]	NO_3^- [-0.15; 0.28]
Central	NH_4^+ [-0.08; 0.25]	NH_4^+ [-0.08; 0.11]	NH_4^+ [-0.06; 0.19]	NH_4^+ [-0.15; 0.12]	NH_4^+ [-0.04; 0.08]
Europe	Dust [-0.06; 0.06]	Dust [-0.11; 0.08]	Dust [-0.11; 0.08]	Dust [-0.08; 0.07]	Dust [-0.04; 0.03]
	BC [-0.03; 0.04]	BC [-0.02; 0.03]	BC [-0.02; 0.04]	BC [-0.02; 0.09]	BC [-0.01; 0.03]
	SS [-0.15; 0.04]	SS [-0.08; 0.11]	SS [-0.1; 0.03]	SS [-0.11; 0.06]	SS [-0.07; 0.01]
	OM [-0.21; 0.31]	OM [-0.16; 0.14]	OM [-0.22; 0.34]	OM [-0.22; 0.39]	OM [-0.07; 0.1]
	$PM_{2.5}$ [-0.83; 0.41]	$PM_{2.5}$ [-0.21; 0.97]	$PM_{2.5}$ [-0.92; 0.12]	$PM_{2.5}$ [-0.2; 1.18]	$PM_{2.5}$ [-0.12; 0.35]
	$SO_4^=$ [-0.15; 0.1]	$SO_4^=$ [-0.05; 0.09]	$SO_4^=$ [-0.16; 0.04]	$SO_4^=$ [-0.01; 0.23]	$SO_4^=$ [-0.02; 0.04]
	NO_3^- [-0.27; 0.03]	NO_3^- [-0.04; 0.5]	NO_3^- [-0.44; 0.24]	NO_3^- [-0.06; 0.52]	NO_3^- [-0.03; 0.19]
Western	NH_4^+ [-0.1; 0.04]	NH_4^+ [-0.03; 0.17]	NH_4^+ [-0.16; 0.05]	NH_4^+ [-0.02; 0.21]	NH_4^+ [-0.02; 0.05]
Europe	Dust [-0.06; 0.04]	Dust [-0.07; 0.08]	Dust [-0.13; 0.03]	Dust [0; 0.11]	Dust [-0.03; 0.03]
	BC [-0.03; 0.02]	BC [-0; 0.02]	BC [-0.02; 0.02]	BC [-0; 0.09]	BC [-0; 0.03]
	SS [-0.23; 0.31]	SS [-0.19; 0.22]	SS [-0.4; 0.14]	SS [-0.47; 0.32]	SS [-0.22; 0.11]
	OM [-0.24; 0.09]	OM [-0.06; 0.21]	OM [-0.3; 0.03]	OM [-0.01; 0.39]	OM [-0.05; 0.09]
	$PM_{2.5}$ [-0.54; 0.5]	$PM_{2.5}$ [-0.96; -0.03]	$PM_{2.5}$ [-0.05; 0.88]	$PM_{2.5}$ [-0.77; 0]	$PM_{2.5}$ [-0.4; 0.16]
	$SO_4^=$ [-0.17; 0.17]	$SO_4^=$ [-0.17; 0.03]	$SO_4^=$ [-0.06; 0.27]	$SO_4^=$ [-0.15; 0.01]	$SO_4^=$ [-0.09; 0.08]
	NO_3^- [-0.21; 0.09]	NO_3^- [-0.18; 0.09]	NO_3^- [-0; 0.11]	NO_3^- [-0.23; 0.02]	NO_3^- [-0.1; 0.02]
Eastern	NH_4^+ [-0.1; 0.08]	NH_4^+ [-0.09; 0.02]	NH_4^+ [-0.02; 0.12]	NH_4^+ [-0.11; -0]	NH_4^+ [-0.05; 0.03]
Europe	Dust [-0.25; 0.07]	Dust [-0.28; 0.04]	Dust [-0.13; 0.11]	Dust [-0.11; 0.05]	Dust [-0.12; 0.02]
	BC [-0.06; 0.03]	BC [-0.08; 0]	BC [-0.03; 0.03]	BC [-0.03; 0.01]	BC [-0.03; 0.01]
	SS [-0.1; 0.06]	SS [-0.06; 0.2]	SS [-0.04; 0]	SS [-0.03; 0.05]	SS [-0.05; 0.06]
	OM [-0.15; 0.34]	OM [-0.27; -0]	OM [0.02; 0.38]	OM [-0.24; 0.04]	OM [-0.06; 0.11]

* $SO_4^=$: inorganic sulfate; NO_3^-: inorganic nitrate; NH_4^+: inorganic ammonium; Dust: inorganic soil dust; BC: black carbon; SS: sea salt; OM:organic matter.

Table B3: Range of variation of $PM_{2.5}$ and its components for the RCP8.5 scenario (2020-2049), compared to the historical period ($\mu g\, m^{-3}$).

	DJF	**MAM**	**JJA**	**SON**	**Annual**
	$PM_{2.5}$ [-0.7; 0.55]	$PM_{2.5}$ [-0.32; 0.1]	$PM_{2.5}$ [-0.5; 0.32]	$PM_{2.5}$ [-0.61; 0.36]	$PM_{2.5}$ [-0.36; 0.17]
	$SO_4^=$ [-0.07; 0.08]	$SO_4^=$ [-0.06; 0.01]	$SO_4^=$ [-0.05; 0.09]	$SO_4^=$ [-0.15; 0.05]	$SO_4^=$ [-0.04; 0.03]
	NO_3^- [-0.09; 0.05]	NO_3^- [-0.15; -0.01]	NO_3^- [-0.19; 0.11]	NO_3^- [-0.32; 0]	NO_3^- [-0.14; 0]
Northern	NH_4^+ [-0.04; 0.04]	NH_4^+ [-0.05; -0]	NH_4^+ [-0.06; 0.05]	NH_4^+ [-0.12; 0.01]	NH_4^+ [-0.05; 0.01]
Europe	Dust [-0.07; 0.03]	Dust [-0.06; 0.06]	Dust [-0.06; 0.08]	Dust [-0.04; 0.03]	Dust [-0.03; 0.03]
	BC [-0.04; 0.01]	BC [-0.01; 0.01]	BC [-0.01; 0.01]	BC [-0.01; 0.01]	BC [-0.01; 0]
	SS [-0.12; 0.55]	SS [-0.17; 0.12]	SS [-0.06; 0.2]	SS [-0.1; 0.41]	SS [-0.06; 0.2]
	OM [-0.41; 0.1]	OM [-0.06; 0.12]	OM [-0.34; 0.14]	OM [-0.14; 0.07]	OM [-0.17; 0.01]
	$PM_{2.5}$ [-0.71; 0.72]	$PM_{2.5}$ [-0.51; 1.17]	$PM_{2.5}$ [-0.38; 0.46]	$PM_{2.5}$ [-0.63; 1.16]	$PM_{2.5}$ [-0.18; 0.45]
	$SO_4^=$ [-0.09; 0.31]	$SO_4^=$ [-0.19; 0.35]	$SO_4^=$ [-0.09; 0.17]	$SO_4^=$ [-0.11; 0.35]	$SO_4^=$ [-0.06; 0.17]
	NO_3^- [-0.22; 0.19]	NO_3^- [-0.17; 0.25]	NO_3^- [-0.08; 0.16]	NO_3^- [-0.21; 0.46]	NO_3^- [-0.07; 0.14]
Southern	NH_4^+ [-0.08; 0.16]	NH_4^+ [-0.06; 0.16]	NH_4^+ [-0.03; 0.08]	NH_4^+ [-0.09; 0.2]	NH_4^+ [-0.03; 0.09]
Europe	Dust [-0.13; 0.01]	Dust [-0.29; 0.17]	Dust [-0.15; 0.26]	Dust [-0.08; 0.21]	Dust [-0.05; 0.06]
	BC [-0.05; 0.01]	BC [-0.02; 0.04]	BC [-0.04; 0.03]	BC [-0.02; 0.1]	BC [-0.01; 0.03]
	SS [-0.1; 0.13]	SS [-0.15; 0.2]	SS [-0.09; 0.11]	SS [-0.39; 0.08]	SS [-0.11; 0.09]
	OM [-0.29; 0.15]	OM [-0.15; 0.38]	OM [-0.28; 0.19]	OM [-0.18; 0.51]	OM [-0.08; 0.16]
	$PM_{2.5}$ [-0.95; 0.85]	$PM_{2.5}$ [-0.81; 0.75]	$PM_{2.5}$ [-0.49; 0.62]	$PM_{2.5}$ [-0.87; 0.92]	$PM_{2.5}$ [-0.36; 0.48]
	$SO_4^=$ [-0.13; 0.41]	$SO_4^=$ [-0.16; 0.07]	$SO_4^=$ [-0.06; 0.18]	$SO_4^=$ [-0.23; 0.31]	$SO_4^=$ [-0.09; 0.16]
	NO_3^- [-0.44; 0.2]	NO_3^- [-0.26; 0.29]	NO_3^- [-0.27; 0.34]	NO_3^- [-0.27; 0.42]	NO_3^- [-0.22; 0.16]
Central	NH_4^+ [-0.13; 0.2]	NH_4^+ [-0.12; 0.1]	NH_4^+ [-0.07; 0.1]	NH_4^+ [-0.13; 0.14]	NH_4^+ [-0.06; 0.07]
Europe	Dust [-0.06; 0.06]	Dust [-0.07; 0.16]	Dust [-0.03; 0.09]	Dust [-0.11; 0.08]	Dust [-0.03; 0.06]
	BC [-0.03; 0.03]	BC [-0.03; 0.07]	BC [-0.03; 0.05]	BC [-0.03; 0.06]	BC [-0.01; 0.05]
	SS [-0.12; 0.05]	SS [-0.06; 0.05]	SS [-0.09; 0.06]	SS [-0.14; 0.08]	SS [-0.08; 0.01]
	OM [-0.28; 0.19]	OM [-0.25; 0.31]	OM [-0.2; 0.19]	OM [-0.2; 0.29]	OM [-0.11; 0.16]
	$PM_{2.5}$ [-0.45; 0.36]	$PM_{2.5}$ [-0.17; 0.82]	$PM_{2.5}$ [-0.71; 0.52]	$PM_{2.5}$ [-0.3; 0.95]	$PM_{2.5}$ [-0.09; 0.48]
	$SO_4^=$ [-0.1; 0.05]	$SO_4^=$ [-0.05; 0.09]	$SO_4^=$ [-0.12; 0.06]	$SO_4^=$ [-0.04; 0.14]	$SO_4^=$ [-0.02; 0.05]
	NO_3^- [-0.17; 0.07]	NO_3^- [-0.08; 0.35]	NO_3^- [-0.38; 0.38]	NO_3^- [-0.15; 0.45]	NO_3^- [-0.04; 0.21]
Western	NH_4^+ [-0.07; 0.03]	NH_4^+ [-0.03; 0.12]	NH_4^+ [-0.13; 0.13]	NH_4^+ [-0.06; 0.15]	NH_4^+ [-0.02; 0.08]
Europe	Dust [-0.02; 0.03]	Dust [-0.01; 0.14]	Dust [-0.04; 0.06]	Dust [-0.01; 0.09]	Dust [-0.01; 0.06]
	BC [-0.02; 0.03]	BC [-0; 0.06]	BC [-0.02; 0.04]	BC [-0.01; 0.06]	BC [-0; 0.05]
	SS [-0.13; 0.28]	SS [-0.22; 0.08]	SS [-0.23; 0.16]	SS [-0.46; 0.08]	SS [-0.22; 0.12]
	OM [-0.16; 0.04]	OM [-0.05; 0.31]	OM [-0.16; 0.1]	OM [-0.02; 0.36]	OM [-0.03; 0.16]
	$PM_{2.5}$ [-0.42; 0.27]	$PM_{2.5}$ [-0.77; -0.01]	$PM_{2.5}$ [-0.11; 0.64]	$PM_{2.5}$ [-0.85; 0.07]	$PM_{2.5}$ [-0.33; -0.01]
	$SO_4^=$ [-0.15; 0.1]	$SO_4^=$ [-0.19; -0.01]	$SO_4^=$ [-0.07; 0.15]	$SO_4^=$ [-0.19; 0.02]	$SO_4^=$ [-0.09; 0.01]
	NO_3^- [-0.12; 0.07]	NO_3^- [-0.13; -0.01]	NO_3^- [-0.04; 0.09]	NO_3^- [-0.26; 0.07]	NO_3^- [-0.1; -0]
Eastern	NH_4^+ [-0.08; 0.03]	NH_4^+ [-0.09; -0.01]	NH_4^+ [-0.02; 0.07]	NH_4^+ [-0.12; 0.02]	NH_4^+ [-0.05; -0]
Europe	Dust [-0.11; 0.04]	Dust [-0.18; 0.05]	Dust [-0.09; 0.14]	Dust [-0.15; 0.05]	Dust [-0.07; 0.03]
	BC [-0.04; 0.01]	BC [-0.05; 0]	BC [-0.02; 0.02]	BC [-0.04; 0.01]	BC [-0.02; 0]
	SS [-0.13; 0.03]	SS [-0.04; 0.08]	SS [-0.02; 0.01]	SS [-0.08; 0.02]	SS [-0.05; 0.01]
	OM [-0.15; 0.23]	OM [-0.23; 0.03]	OM [-0.11; 0.28]	OM [-0.21; 0.06]	OM [-0.09; 0.03]

* $SO_4^=$: inorganic sulfate; NO_3^-: inorganic nitrate; NH_4^+: inorganic ammonium; Dust: inorganic soil dust; BC: black carbon; SS: sea salt; OM:organic matter.

Table B4: Range of variation of $PM_{2.5}$ and its components for the RCP8.5 scenario (2070-2099), compared to the historical period ($\mu g\ m^{-3}$).

	DJF	**MAM**	**JJA**	**SON**	**Annual**
	$PM_{2.5}$ [-0.79; 0.83]	$PM_{2.5}$ [-0.64; 0.26]	$PM_{2.5}$ [-0.76; 0.47]	$PM_{2.5}$ [-1.22; 0.71]	$PM_{2.5}$ [-0.55; 0.37]
	$SO_4^=$ [-0.09; 0.13]	$SO_4^=$ [-0.14; 0.03]	$SO_4^=$ [-0.09; 0.11]	$SO_4^=$ [-0.31; 0.05]	$SO_4^=$ [-0.1; 0.04]
	NO_3^- [-0.06; 0.12]	NO_3^- [-0.28; 0]	NO_3^- [-0.37; 0.18]	NO_3^- [-0.51; -0.04]	NO_3^- [-0.19; 0]
Northern	NH_4^+ [-0.02; 0.07]	NH_4^+ [-0.11; 0.01]	NH_4^+ [-0.12; 0.08]	NH_4^+ [-0.24; -0.01]	NH_4^+ [-0.08; 0.01]
Europe	Dust [-0.08; 0.06]	Dust [-0.08; 0.06]	Dust [-0.09; 0.05]	Dust [-0.1; 0.04]	Dust [-0.06; 0.02]
	BC [-0.02; 0.03]	BC [-0.03; 0.01]	BC [-0.01; 0.01]	BC [-0.04; 0.01]	BC [-0.02; 0]
	SS [-0.82; 0.66]	SS [-0.08; 0.35]	SS [-0.06; 0.2]	SS [-0.06; 0.81]	SS [-0.18; 0.37]
	OM [-0.11; 0.42]	OM [-0.2; 0.09]	OM [-0.5; 0.21]	OM [-0.25; -0.02]	OM [-0.19; 0.02]
	$PM_{2.5}$ [-1.78; 0.67]	$PM_{2.5}$ [-0.5; 1.39]	$PM_{2.5}$ [-0.44; 0.59]	$PM_{2.5}$ [-1.66; 1.53]	$PM_{2.5}$ [-0.53; 0.43]
	$SO_4^=$ [-0.25; 0.41]	$SO_4^=$ [-0.12; 0.37]	$SO_4^=$ [-0.13; 0.3]	$SO_4^=$ [-0.5; 0.37]	$SO_4^=$ [-0.17; 0.21]
	NO_3^- [-0.53; 0.18]	NO_3^- [-0.19; 0.38]	NO_3^- [-0.09; 0.21]	NO_3^- [-0.43; 0.62]	NO_3^- [-0.16; 0.17]
Southern	NH_4^+ [-0.18; 0.16]	NH_4^+ [-0.06; 0.21]	NH_4^+ [-0.04; 0.12]	NH_4^+ [-0.28; 0.24]	NH_4^+ [-0.09; 0.09]
Europe	Dust [-0.23; 0.02]	Dust [-0.34; 0.26]	Dust [-0.13; 0.25]	Dust [-0.18; 0.27]	Dust [-0.09; 0.06]
	BC [-0.09; 0.02]	BC [-0.02; 0.07]	BC [-0.02; 0.02]	BC [-0.05; 0.14]	BC [-0.02; 0.04]
	SS [-0.26; 0.2]	SS [-0.21; 0.18]	SS [-0.12; 0.19]	SS [-0.48; 0.2]	SS [-0.15; 0.1]
	OM [-0.75; 0.3]	OM [-0.14; 0.44]	OM [-0.3; 0.27]	OM [-0.47; 0.7]	OM [-0.16; 0.2]
	$PM_{2.5}$ [-1.49; 1.54]	$PM_{2.5}$ [-1.15; 0.76]	$PM_{2.5}$ [-0.58; 0.97]	$PM_{2.5}$ [-1.56; 1.31]	$PM_{2.5}$ [-0.59; 0.76]
	$SO_4^=$ [-0.26; 0.62]	$SO_4^=$ [-0.24; 0.11]	$SO_4^=$ [-0.09; 0.23]	$SO_4^=$ [-0.4; 0.37]	$SO_4^=$ [-0.14; 0.24]
	NO_3^- [-0.7; 0.16]	NO_3^- [-0.31; 0.35]	NO_3^- [-0.24; 0.51]	NO_3^- [-0.65; 0.52]	NO_3^- [-0.32; 0.25]
Central	NH_4^+ [-0.2; 0.25]	NH_4^+ [-0.16; 0.13]	NH_4^+ [-0.09; 0.15]	NH_4^+ [-0.28; 0.16]	NH_4^+ [-0.09; 0.1]
Europe	Dust [-0.11; 0.14]	Dust [-0.09; 0.13]	Dust [-0.05; 0.09]	Dust [-0.19; 0.14]	Dust [-0.05; 0.07]
	BC [-0.06; 0.09]	BC [-0.05; 0.05]	BC [-0.03; 0.09]	BC [-0.05; 0.1]	BC [-0.02; 0.07]
	SS [-0.57; 0.05]	SS [-0.07; 0.08]	SS [-0.12; 0.09]	SS [-0.18; 0.22]	SS [-0.15; 0.03]
	OM [-0.43; 0.65]	OM [-0.39; 0.19]	OM [-0.22; 0.36]	OM [-0.42; 0.42]	OM [-0.15; 0.24]
	$PM_{2.5}$ [-1.05; 0.47]	$PM_{2.5}$ [-0.22; 1.08]	$PM_{2.5}$ [-0.68; 0.94]	$PM_{2.5}$ [-0.34; 1.31]	$PM_{2.5}$ [-0.16; 0.76]
	$SO_4^=$ [-0.09; 0.28]	$SO_4^=$ [-0.04; 0.13]	$SO_4^=$ [-0.13; 0.09]	$SO_4^=$ [-0.07; 0.14]	$SO_4^=$ [-0.04; 0.09]
	NO_3^- [-0.34; 0.19]	NO_3^- [-0.1; 0.6]	NO_3^- [-0.35; 0.47]	NO_3^- [-0.23; 0.52]	NO_3^- [-0.08; 0.26]
Western	NH_4^+ [-0.12; 0.14]	NH_4^+ [-0.05; 0.19]	NH_4^+ [-0.13; 0.15]	NH_4^+ [-0.09; 0.15]	NH_4^+ [-0.04; 0.1]
Europe	Dust [-0.06; 0.11]	Dust [-0.07; 0.1]	Dust [-0.07; 0.05]	Dust [-0; 0.14]	Dust [-0.02; 0.07]
	BC [-0.04; 0.08]	BC [-0.01; 0.05]	BC [-0.01; 0.07]	BC [-0.01; 0.1]	BC [-0; 0.07]
	SS [-0.73; 0.08]	SS [-0.31; 0.2]	SS [-0.43; 0.11]	SS [-0.6; 0.64]	SS [-0.44; 0.17]
	OM [-0.39; 0.25]	OM [-0.04; 0.3]	OM [-0.16; 0.25]	OM [-0.08; 0.45]	OM [-0.05; 0.24]
	$PM_{2.5}$ [-1.3; 0.62]	$PM_{2.5}$ [-1.04; -0]	$PM_{2.5}$ [-0.16; 0.89]	$PM_{2.5}$ [-2.41; -0.18]	$PM_{2.5}$ [-0.83; -0.02]
	$SO_4^=$ [-0.26; 0.21]	$SO_4^=$ [-0.2; -0.03]	$SO_4^=$ [-0.05; 0.22]	$SO_4^=$ [-0.48; -0.04]	$SO_4^=$ [-0.16; -0]
	NO_3^- [-0.25; 0.12]	NO_3^- [-0.28; 0.07]	NO_3^- [-0.02; 0.13]	NO_3^- [-0.64; -0.04]	NO_3^- [-0.22; 0.01]
Eastern	NH_4^+ [-0.14; 0.08]	NH_4^+ [-0.13; 0.01]	NH_4^+ [-0.02; 0.1]	NH_4^+ [-0.32; -0.03]	NH_4^+ [-0.1; 0]
Europe	Dust [-0.36; 0.09]	Dust [-0.3; 0.03]	Dust [-0.12; 0.17]	Dust [-0.38; 0.04]	Dust [-0.17; 0.01]
	BC [-0.11; 0.04]	BC [-0.09; 0]	BC [-0.03; 0.03]	BC [-0.12; 0.01]	BC [-0.05; 0]
	SS [-0.34; 0.08]	SS [-0.03; 0.14]	SS [-0.02; 0.03]	SS [-0.04; 0.09]	SS [-0.07; 0.05]
	OM [-0.34; 0.53]	OM [-0.28; -0.02]	OM [-0.12; 0.38]	OM [-0.61; -0.06]	OM [-0.23; 0.06]

* $SO_4^=$: inorganic sulfate; NO_3^-: inorganic nitrate; NH_4^+: inorganic ammonium; Dust: inorganic soil dust; BC: black carbon; SS: sea salt; OM:organic matter.

B.7 Weather type description

B.7.1 DJF weather types

WT0 is characterized by a positive anomaly of PSL over Greenland, and a negative one that extends from northern America to eastern Europe. Such a positive anomaly favors northern flows, which lead to below average temperatures over the northern half of Europe. The negative anomaly of PSL favors southern flows, which lead to above average precipitations over all Europe, except over the Norvegian coast, which is protected by the anticyclone. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over the southern half of Europe (0 to -6 $\mu g\, m^{-3}$), and above average over the northern half of Europe (0 to +6 $\mu g\, m^{-3}$).

WT1 is characterized by a positive anomaly of PSL over Greenland, and a negative one over the British Isles. Such a negative anomaly favors unstable meteorological conditions and above average precipitations over Europe, except for the southeasternmost part. It also favors above average temperatures. $PM_{2.5}$ concentrations are below average (0 to -10 $\mu g\, m^{-3}$) over all Europe, except in the east (0 to +6 $\mu g\, m^{-3}$).

WT2 is characterized by a negative anomaly of PSL over Denmark, and a positive one over the Azores. Such a WT is associated with above average precipitation over the largest part of Europe, with below average temperatures over the northern half of Europe, and with above average temperaures over southeastern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average (0 to -10 $\mu g\, m^{-3}$) over western, central, and southern Europe, and above average (0 to +4 $\mu g\, m^{-3}$) over northern and eastern Europe.

WT3 is characterized by a positive anomaly of PSL over northern Scandinavia, and a negative one over the North Atlantic Ocean. Such a positive anomaly favors northern flows, which leads to below average temperatures and precipitations over northern, central, and eastern Europe. The negative anomaly of PSL favors ocean flows, which lead to above average temperatures and precipitations. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over France, the Iberian peninsula, and eastern Europe (0 to -6 $\mu g\, m^{-3}$), and are above average over the U.K., central Europe, and Scandinavia (0 to +10 $\mu g\, m^{-3}$).

WT4 is characterized by a strong positive anomaly of PSL over Iceland, and a negative one that extends from the Quebec coasts to Greece. Such a positive anomaly leads to below average temperatures over Europe. Precipitations are also below average, except in southern Europe, where precipitations are above average because this region is under the influence of the negative anomaly of PSL. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over Europe (0 to -6 $\mu g\, m^{-3}$), except in France and in the U.K. where they are above average (0 to +8 $\mu g\, m^{-3}$).

WT5 is characterized by a negative anomaly of PSL over the Greenland sea, and a positive one that extends from the Quebec coasts to southeastern Europe. Such a positive anomaly leads to below average precipitation over Europe, except over the U.K. and the Norvegian coasts. Temperatures are above average, except in the southeast. $PM_{2.5}$ concentrations are above average (0 to +10 $\mu g\, m^{-3}$) over central, eastern, and southern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over norhtern Europe and the U.K. (0 to -4 $\mu g\, m^{-3}$).

WT6 is characterized by a positive anomaly of PSL over northern U.K. Such a positive anomaly favors northern flows, which lead to below average temperatures and precipitations over the main part of Europe, except for northern Scandinavia, where there are above average temperatures and precipitations. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over western and central Europe (0 to +6 $\mu g\, m^{-3}$), and below average elsewhere (0 to -6 $\mu g\, m^{-3}$).

WT7 is characterized by a strong negative anomaly of PSL over the northern part of the Bristish

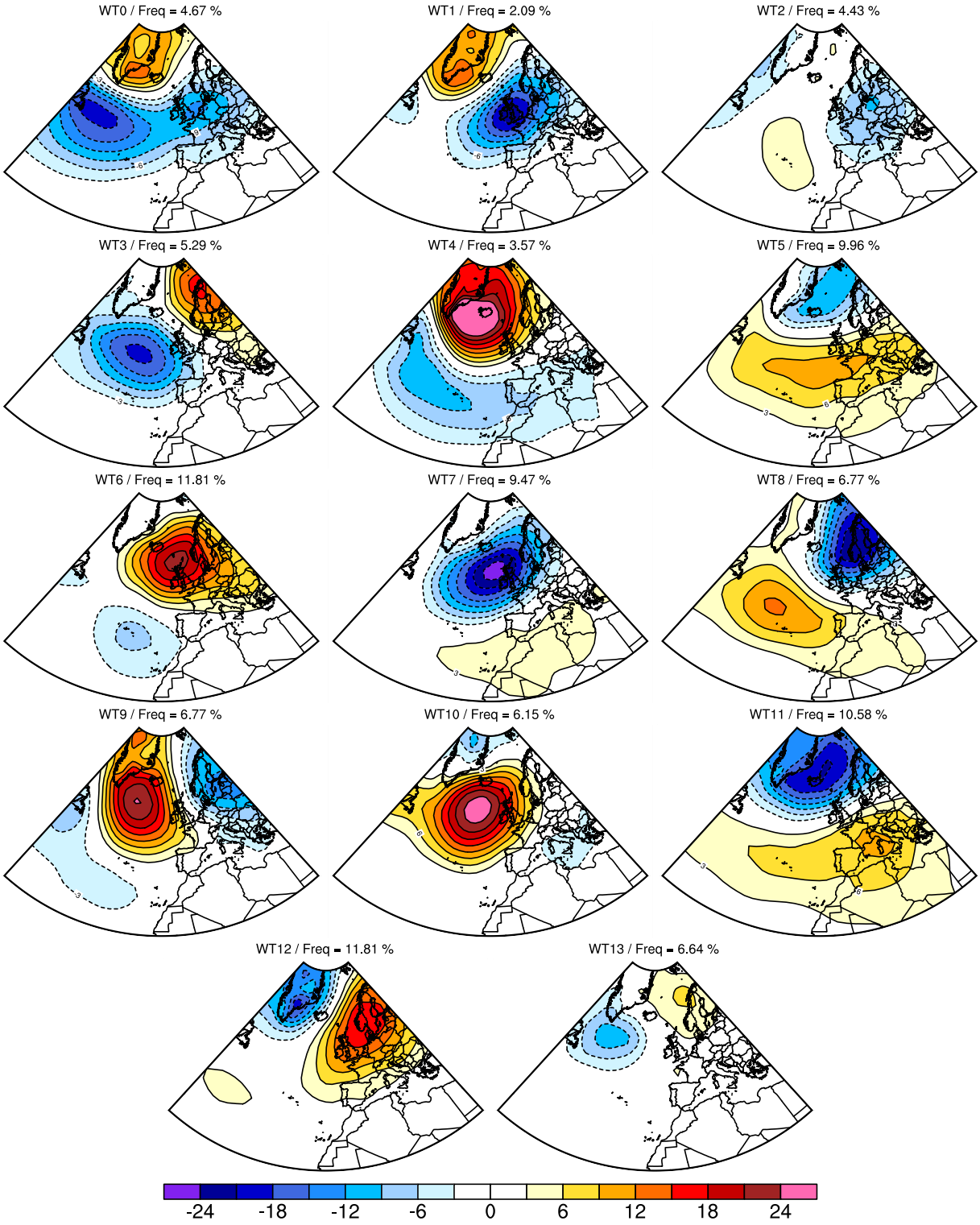


Figure B20: PSL anomalies (expressed in hPa) of the 14 WTs in DJF, built on the learning period (2000-2008). The frequency of each WT is stated above the corresponding WT.

Isles. Such a negative anomaly leads to above average temperatures and precipitations over most of Europe. Precipitations are below average over southeastern Europe and the Norvegian coasts. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over western and central Europe (0 to -10 $\mu g\ m^{-3}$), and above average elsewhere (0 to +8 $\mu g\ m^{-3}$).

WT8 is characterized by a strong negative anomaly of PSL over Scandinavie, and a positive one over the Atlantic Ocean. Such a negative anomaly leads to above average precipitation over most of Europe (except for the Iberian peninsula, which is protected by the positive anomaly of PSL). This WT is associated with above average temperatures. $PM_{2.5}$ concentrations are below average (0 to -12 $\mu g\ m^{-3}$) over most of Europe, except over some localized areas (northern Italy, southeastern Romania).

WT9 is characterized by a positive anomaly of PSL over the North Atlantic Ocean, and two negative anomalies: one over the Baltics and one over the Quebec coasts. This WT is associated with below average temperatures and with above average precipitations over most of Europe. Precipitations are below average only in western Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over most of Europe (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$). They are above average over northern Europe, and in some localized areas of the Iberian peninsula (0 to +4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT10 is characterized by a positive anomaly of PSL over the North Atlantic region. Such a positive anomaly favors northern flows, which leads to below average temperatures over Europe, and to below average precipitations over the western half of Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over France (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$) and below average elsewhere (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT11 is characterized by a strong negative anomaly of PSL over Iceland, and a positive anomaly over the Mediterranean Sea. This WT is associated with above average temperatures over most of Europe and with below average precipitations, except in Scandinavia, the northern U.K., and Ireland. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in France and in southern Europe (0 to +8 $\mu g\ m^{-3}$) and are below average elsewhere (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT12 is characterized by a positive anomaly of PSL over southern Scandinavia and negative anomaly over Greenland. This WT is associated with below average temperatures and precipitations over most of Europe, except over northern Norway, where precipitations are above average. $PM_{2.5}$ concentrations are above average (0 to +8 $\mu g\ m^{-3}$), and are below average over the eastern half (0 to -8 $\mu g\ m^{-3}$).

WT13 is characterized by a positive anomaly of PSL over Norway and a negative one over the Greenland and Quebec coasts. This WT is associated with below average precipitations over western and northern Europe, and the Iberian peninsula, and with above average precipitations over eastern and southern Europe. Temperatures are below average over most of Europe, except over the Iberian peninsula and southeastern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average in southern Europe (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$), and are above average (0 to +2 $\mu g\ m^{-3}$).

B.7.2 MAM weather types

WT0 is characterized by a positive anomaly of PSL over the North Atlantic Ocean and a negative one over Scandinavia. This WT is associated with above average temperatures over eastern and southern Europe, and with below average temperatures over northern and western Europe. Such a negative anomaly favors unstable meteorological conditions, leading to above average precipitations over most of Europe, except over some localized regions over southern Europe and Norway. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over eastern Europe (0 to +2 $\mu g\ m^{-3}$) and are below average elsewhere (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT1 is characterized by a positive anomaly of PSL over the Greenland Sea and a negative one over western Ireland. This WT is associated with above average precipitations over France, the Iberian peninsula, and Italy, and with below average precipitations elsewhere. Temperatures are below average over Portugal and the eastern half of Europe, and are above average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over the U.K. and central Europe (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$) and below average elsewhere (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT2 is characterized by a negative anomaly of PSL over the Greenland Sea and a positive one over western Europe. This WT is associated with above average precipitation over the northern half of Europe, and with below average precipitations over the southern half. Temperatures are above average. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over France and southern Europe (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewhere (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT3 is characterized by a positive anomaly of PSL over the Norvegian Sea and a negative one over the northern part of the Atlantic Ocean. This WT is associated with below average temperatures over most of Europe, except in some localized regions in Scandinavia, and in western and southeastern Europe. This WT favors below average precipitations over most of Europe, except in the southeast. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over western Europe (0 to +10 $\mu g\ m^{-3}$) and are below average elsewhere (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT4 is characterized by a strong negative anomaly of PSL over Greenland and by a positive one over the Atlantic Ocean. This WT is associated with above average temperatures over most of Europe, except in France. Precipitations are above average over most of Europe, except over France, the Iberian peninsula and Turkey. $PM_{2.5}$ concentrations are below average in western and central Europe, in Norway, and in Italy (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$). They are above average elsewhre (0 to +4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT5 is characterized by a negative anomaly of PSL over the north of the Bristish Isled. Such a negative anomaly leads to above average precipitations over the western half of Europe. Precipitations are below average over southern and eastern Europe. Temperatures are above average, except in some localized areas (over the British Isles, the Iberian peninsula, and northern Europe). $PM_{2.5}$ concentrations are above average in central Europe and Italy (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$), and below average elsewhere (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT6 is characterized by a positive anomaly of PSL over Iceland, and by two negative anomalies: one over the Quebec coasts and one over Finland. This WT is associated with below average temperatures. Precipitations are below average over the western part of Europe, and above average over the eastern part. $PM_{2.5}$ concentrations are below average (0 to -8 $\mu g\ m^{-3}$).

WT7 is characterized by a negative anomaly of PSL over Greenland and by a positive one over Scandinavia. Such a positive anomaly leads to below average precipitations. Temperatures are below average over southeastern Europe and is above average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over western Europe (0 to +4 $\mu g\ m^{-3}$), and are below average over southern, central, and eastern Europe (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT8 is characterized by a strong positive anomaly of PSL over Greenland and by a negative anomaly over the Azores. This WT is associated with below average temperatures over most of Europe, except over southwestern France and Spain. Precipitations are above average in Portugal and eastern Europe, while they are below average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in southeastern Europe, Scandinavia and over the British Isles (0 to +4 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewere (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT9 is characterized by a positive anomaly of PSL over the northern part of the Atlantic Ocean and

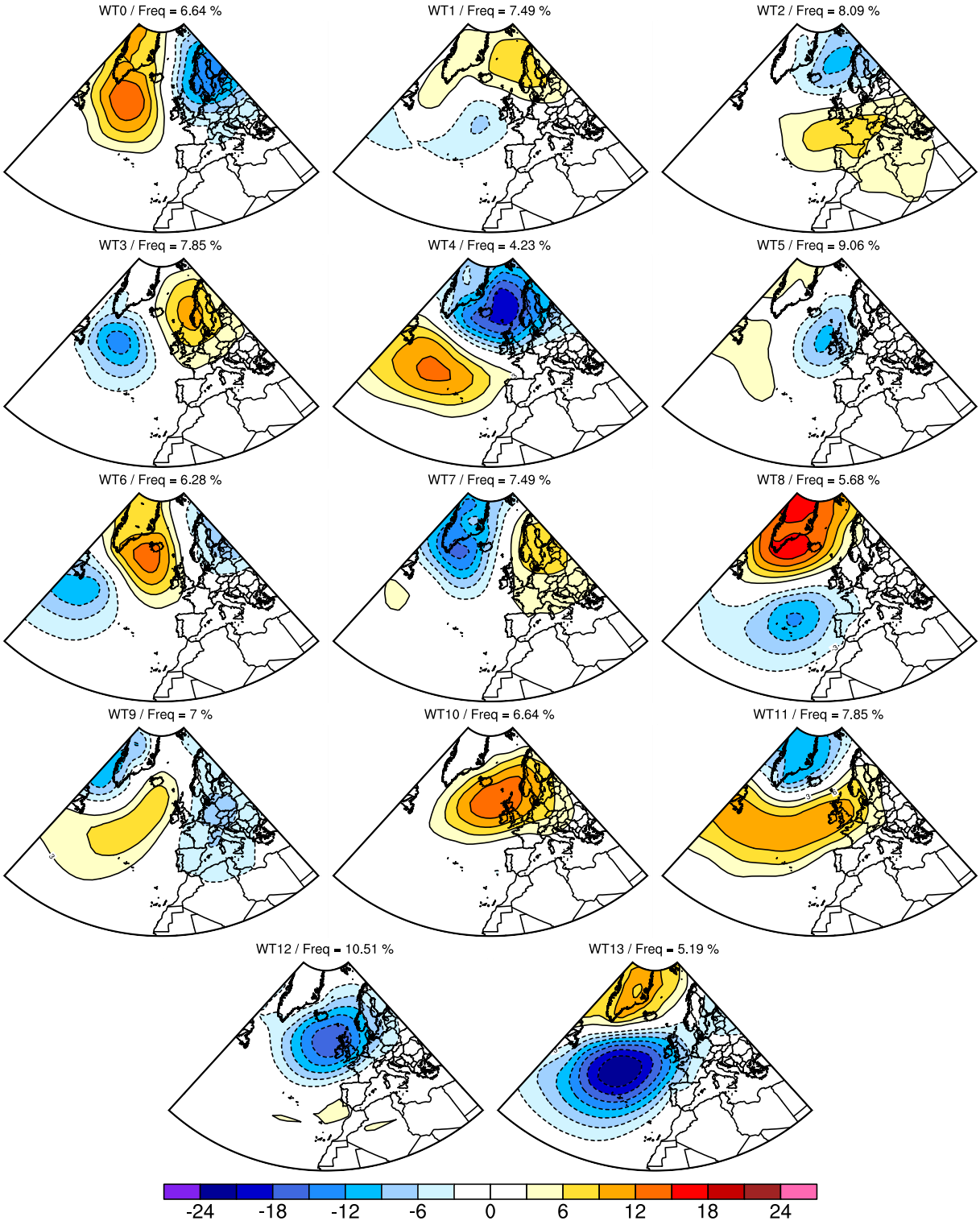


Figure B21: PSL anomalies (expressed in hPa) of the 14 WTs in MAM, built on the learning period (2000-2008). The frequency of each WT is stated above the corresponding WT.

by two negative anomalies: one over the Quebec coasts, and one over northern Europe. This weather type is associated with below average temperatures over the western half of Europe, and with above average temperatures over the eastern half. Precipitations are below average over the U.K. and over the Norvegian coasts. They are above average elswhere. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over the western half of Europe and in the south (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$). They are above average in central Europe (0 to +2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT10 is characterized by a positive anomaly of PSL over the northern part of the British Isles. This WT is associated with above average temperatures in northern Europe, and with below average temperatures elsewhere. Precipitations are below average over most of Europe, except in the south. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in western Europe (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$), and below average elsewhere (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT11 is characterized by a negative anomaly of PSL over Greenland and a positive one that extends from the Quebec coasts to Scandinavia. This WT is associated with above average temperatures over Scandinavia and eastern Europe, and with below average temperatures elsewhere. Precpitations are below average in western Europe and in southern Scandinavia. They are above average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in France and Spain (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewhere (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT12 is characterized by a strong negative anomaly over the northen part of the British Isles. This WT is associated with below average temperatures, except over the westernmost part of Europe (Portugal, Ireland, ...). Precipitations are above average over western, central, and northern Europe. They are below average in the south and the east. $PM_{2.5}$ concentrations are below average in western, southern, and central Europe (0 to -8 $\mu g\ m^{-3}$), and above average in the north and in the east (0 to +2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT13 is characterized by a strong negative anomaly of PSL over the Atlantic Ocean and by a positive one over Greenland. This WT is associated with above average temperatures over the southern half of Europe, and with below average temperatures over the northern half. Precipitations are above average over most of Europe. They are below average over the Norvegian coasts and in southeastern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over most of Europe (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

B.7.3 JJA weather types

WT0 is characterized by a negative anomaly of PSL over Ireland. This WT is associated with above average precipitations over western and central Europe, over the Iberian peninsula, and the Scandinavia. Precipitations are below average over the Norvegian coasts and in southeastern Europe. Temperatures are below average in westernmost and easternmost parts of Europe. They are above average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are above average (0 to +2 $\mu g\ m^{-3}$) in northern Europe and below average elsewhere (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT1 is characterized by a positive anomaly of PSL over the north of the Atlantic Ocean. This WT is associated with above average temperatures in southern and southeastern Europe, and with below average temperatures elsewhere. Precipitations are above average in central Europe, in Italy, Spain, and in central Scandinavia. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in central Europe and northern France (0 to +8 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewhere (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT2 is characterized by a negative anomaly of PSL over Scandinavia. Such a positive anomaly leads to above average precipitations over northern and eastern Europe. Temperatures are below average over most of Europe, except over the easternmost part. $PM_{2.5}$ concentrations are below average (0 to -10

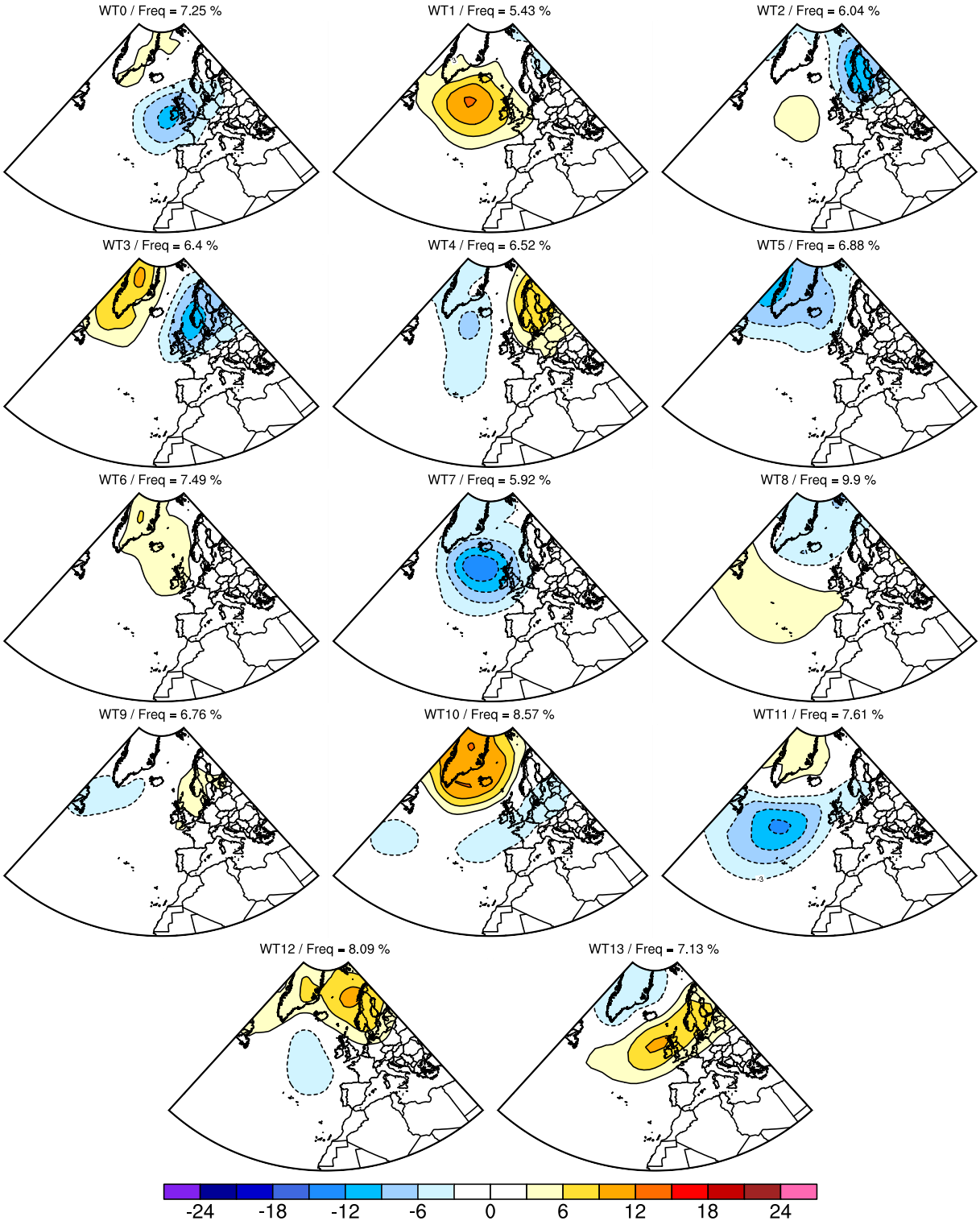


Figure B22: PSL anomalies (expressed in hPa) of the 14 WTs in JJA, built on the learning period (2000-2008). The frequency of each WT is stated above the corresponding WT.

$\mu g\ m^{-3}$) over most of Europe, except in the east (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT3 is characterized by a positive anomaly of PSL over Greenland, and by a negative anomaly over the North Sea. This WT is associated with below average temperatures and above average precipitations over most of Europe, except in southern and eastern Europe, where temperatures are above average and precpitations are below average. $PM_{2.5}$ concentrations are below average (0 to -10 $\mu g\ m^{-3}$).

WT4 is characterized by a negative anomaly of PSL which extends from Greenland to the Azores, and by a positive anomaly over Scandinavia. Such a positive anomaly leads to below average precipitations, except in southeastern Europe. Temperatures are above average over most of Europe, except in southeastern and eastern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over most of Europe (0 to +10 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$) over some localized areas in central, eastern, and southern Europe.

WT5 is characterized by a negative anomaly of PSL over Greenland. Temperatures are below average in southeastern and central Europe, and in the westernmost parts of Europe. Precipitations are above average over France and southern Scandinavia, and from Slovakia to Ukrainia. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over most of Europe (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$). They are above average (0 to +2 $\mu g\ m^{-3}$) over some localized areas in central, southern, and northern Europe.

WT6 is characterized by a positive anomaly fo PSL which extends from Greenland to the U.K. This WT is associated with above average temperatures in northern, central, and western Europe, and with below average temperatures in southern and eastern Europe. Precipitations are below average in Scandinavia, Italy, and over the southeast. $PM_{2.5}$ concentrations vary of $\pm$ 2 $\mu g\ m^{-3}$ around the average.

WT7 is characterized by a negative anomaly of PSL over the northern part of the Atlantic Ocean. Such a negative anomaly leads to above average precipitations over the western half of Europe and to below average precipitations in the east and southeast. Temperatures are below average in western, eastern, and southern Europe. They are above average in northern and central Europe. $PM_{2.5}$ concentrations have a similar response: they are above average in central and northern Europe (0 to +4 $\mu g\ m^{-3}$) and below average in western and eastern Europe (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT8 is characterized by a negative anomaly of PSL over the Greenland Sea, and by a positive anomaly which extends from the Quebec coasts to France. This WT is associated with above average precipitations in northern Europe, in Italy, Austria, and Czech Republic. Precpitations are below average elsewhere. Temperatures are below average over the Atlantic coasts, and above average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in central Europe (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$) and below average elsewhere (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT9 is characterized by a positive anomaly over the North Sea and by a negative one over the Labrador Sea. This WT is associated with above average temperatures over the westernmost and northernmost parts of Europe. Precipitations are above average over southwestern Norway, western and eastern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over northwestern France, Benelux, Germany, Portugal, and in northern Italy (0 to +8 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewhere (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT10 is characterized by a positive anomaly of PSL over Greenland and by a negative one over Europe. Such a negative anomaly leads to above average precipitations over most of Europe, except over the Norvegian coasts, southaeastern Europe, and the Iberian peninsula. Temperatures are below average over most of Europe, except over southern Norway and southeastern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in the U.K., in southeastern Europe, and over some localized areas in northern and central Europe (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewhere (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT11 is characterized by a positive anomaly of PSL over Greenland, and by a negative one over the Atlantic Ocean. This WT is associated with below average precipitations over southeastern and southwestern Europe, northern Scandinavia, and from France to Poland. Temperatures are above average in southern, southeastern, central, and western Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are above average from Italy to Greece (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$), and are below average in central Europe (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT12 is characterized by a positive anomaly of PSL which extends from Greenland to Scandinavia. Such a positive anomaly leads to below average precipitations in western, central, and northern Europe. Temperatures are above average over most of Europe, except in Portugal and in the southeast. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in western, northern, and southwestern Europe (0 to +8 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewhere (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT13 is characterized by a negative anomaly of PSL over Greenland, and by a positive one over the north of the British Isles. This WT is associated with below average precipitations over the northern half of Europe, and with above average precipitations over the southernhalf. Temperatures are below average over the southernhalf of Europe, and above average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in northwestern Europe (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$) and below average elsewhere (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$).

B.7.4 SON weather types

WT0 is characterized by a strong negative anomaly of PSL over the Atlantic Ocean. This WT is associated with above average precipitations over western Europe and southern Scandinavia. Precipitations are below average in central, eastern, and southern Europe. Temperatures are above average over most of Europe, except in the northeast. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in western and southeastern Europe (0 to +8 $\mu g\ m^{-3}$) and are below average elsewhere (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT1 is characterized by a negative anomaly of PSL over the Atlantic Ocean and by a positive one over the Norvegian Sea. Precipitations are below average over northern, central, and northeastern Europe, and over France, Benelux, the U.K., and Ireland. They are above average over southern and southeastern Europe. Temperatures are above average over western and southeastern Europe. They are below average in central, northern, and northeastern Europe, and over the Iberian peninsula. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over western Europe (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$) and are below average elsewhere (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$), especially in the east.

WT2 is characterized by a positive anomaly of PSL over the northern part of the British Isles. This WT is associated with below average temperatyres over Europe, except over Ireland, Portugal, and the northern U.K. Precipitations are below average in western Europe, over the Iberian peninsula, northern Italy, and over southern and eastern Scandinavia. They are above average in eastern and southeastern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over most of Europe (0 to -8 $\mu g\ m^{-3}$). They are above average (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$) in western Europe.

WT3 is characterized by a strong negative anomaly of PSL over the North Sea. Precipitations are above average over northern, central, and western Europe. They are below average over southern and eastern Europe. Temperatures are above average over most of Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average (0 to -8 $\mu g\ m^{-3}$) over most of Europe. They are above average over northern Italy and Ukrainia (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT4 is characerized by a strong negative anomaly of PSL over the North Sea and a positive one over southern Greenland. This WT is associated with above average precipitations over Europe, except over the Norvegian coasts and in the southeast. Temperatures are above average over southeastern, central,

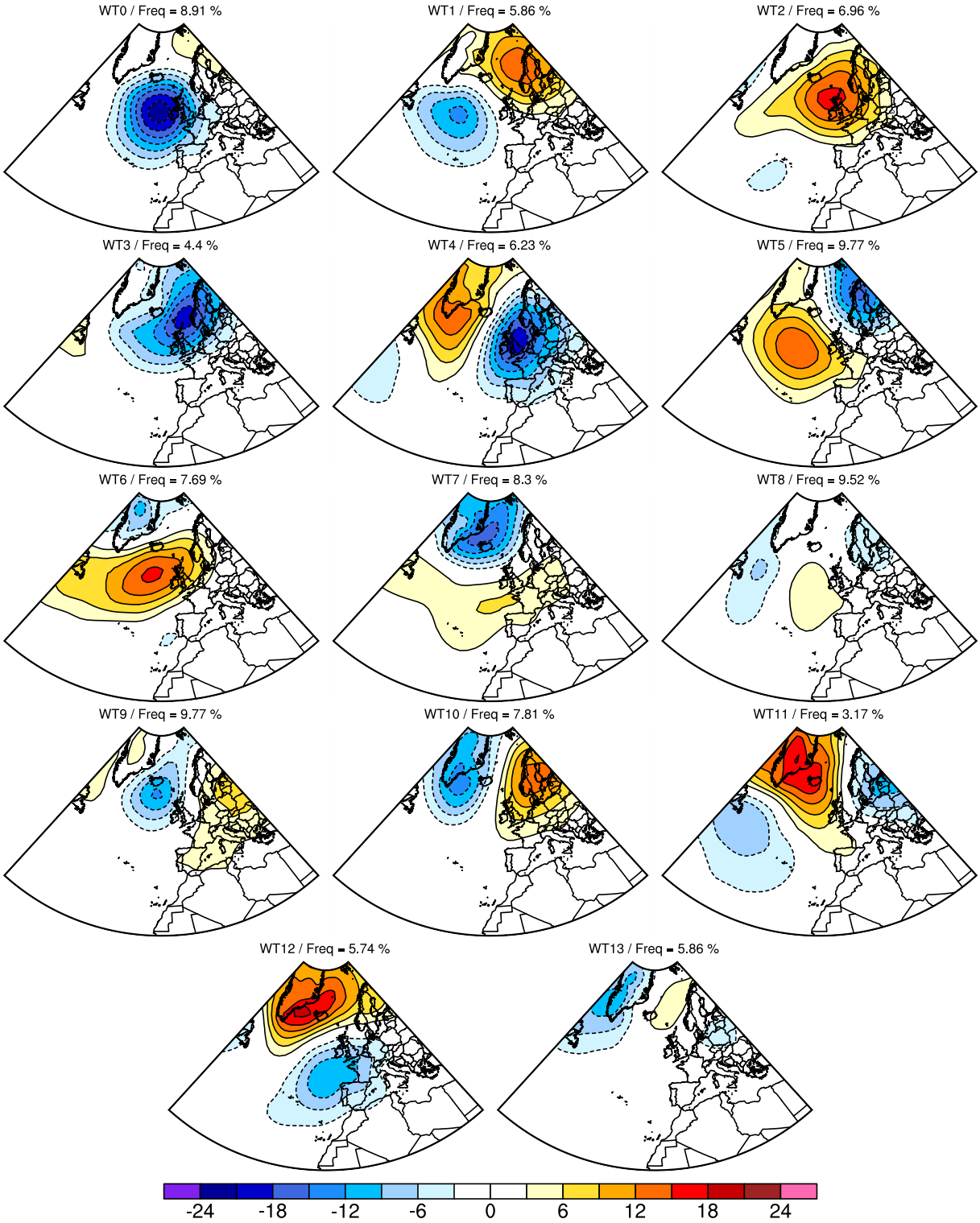


Figure B23: PSL anomalies (expressed in hPa) of the 14 WTs in SON, built on the learning period (2000-2008). The frequency of each WT is stated above the corresponding WT.

and eastern Europe. They are below average in western Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average (0 to -10 $\mu g\ m^{-3}$) over northern, central, and southwestern Europe. They are above average over eastern and southeastern Europe (0 to +10 $\mu g\ m^{-3}$).

WT5 is characterized by a negative anomaly of PSL over Scandinavia and a positive one over the Atlantic Ocean. Precipitations are below average over western, southern, and eastern Europe. They are above average over central, northern, and northeastern Europe. Temperatures are below average over most of Europe, except over some localized areas in northern, central, and western Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over most of Europe (0 to -6 $\mu g\ m^{-3}$).

WT6 is characterized by a positive anomaly of PSL over the Atlantic Ocean and by a positive one over Greenland. Temperatures are below average over Europe. Precipitations are above average over southern and eastern Europe, and over the Norvegian coasts. They are below average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over most of Europe (0 to -8 $\mu g\ m^{-3}$), except over France and the U.K. (0 to +2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT7 is characterized by a strong anomaly of PSL over the Denmark Strait, and by a negative one which extends from the Quebec coasts to eastern Europe. Precipitations are below average over western, central, and southwestern Europe. They are above average in northern and southeastern Europe. Temperatures are above average over northern Europe, the British Isles, and the western part of the Iberian peninsula. They are below average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations vary of $\pm$ 2 $\mu g\ m^{-3}$ around the average.

WT8 is characterized by a positive anomaly of PSL over the Atlantic Ocean, and by two negative anomalies: one over the Labrador Sea and one over Scandinavia. Precipitations are below average over the Iberian peninsula, southeastern Europe, Italy, and the British Isles. They are above average elsewhere. Temperatures are below average over France and over southern, eastern, and northern Europe. They are above average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are around the average values over Europe.

WT9 is characterized by a negative anomaly of PSL over Iceland and by two positive anomalies: one over eastern Europe and one over North America. This WT is associated with below average precipitations over Europe, except over the Norvegian coasts, Italy, and the British Isles. Temperatures are above average over Europe, except over southeastern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are above average in central Europe, the southern U.K. and Scandinavia (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewhere (0 to -2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT10 is characterized by a positive anomaly of PSL over Scandinavia and by negative one over Greenland. This WT is associated with below average precipitations in western, central, and northern Europe, and with above average precipitations in southern and eastern Europe. Temperatures are below average. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over western Europe, the Iberian peninsula, and southern Scandinavia (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average in central, eastern, and southeastern Europe (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT11 is characterized by a positive anomaly of PSL over Scandinavia and by two negative anomalies: one over the Quebec coasts and one over the Baltics. This WT is associated with above average precipitations over most of Europe. Such precipitations are below average over the Iberian peninsula, Scandinavia, and over the Mediterranean Sea. Temperatures are below average over Europe, except over southeastern and southwestern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are below average over Europe (0 to -10 $\mu g\ m^{-3}$), except over northern Scandinavia and the westernmost part of Europe (0 to +2 $\mu g\ m^{-3}$).

WT12 is characterized by a positive anomaly over the Denmark Strait and by a negative one over western Europe. This WT is associated with above average precipitations over eastern and western Europe, southern Scandinavia, Italy, and the Iberian peninsula. They are below average over northern, central, and southwestern Europe. Temperatures are below average over Europe, except over France, Spain, and southeastern Europe. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over northern Scandinava and Germany (0 to +2 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewhere (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

WT13 is characterized by a negative anomaly over the Davis Strait and by a positive one over the Norvegian Sea. This WT is associated with below average temperatures over northern and western Europe, and with above average temperatures over eastern, central, and southern Europe. Precipitations are above average in western and southeastern Europe and over the Norvegian coasts. They are below average elsewhere. $PM_{2.5}$ concentrations are above average over southwestern, southeastern, and eastern Europe, and in eastern Scandinavia (0 to +6 $\mu g\ m^{-3}$). They are below average elsewhere (0 to -4 $\mu g\ m^{-3}$).

B.8 Weather type frequencies

Table B5: Frequency of the weather types over the historical period (1975-2004) for the CNRM-CM5 model (%).

	DJF	MAM	JJA	SON
WT0	3.7	3.3	14.3	7.3
WT1	5.2	10.8	6	7.2
WT2	11.7	17.4	14.4	3.4
WT3	6.7	10.5	0.8	4.7
WT4	9.7	5.8	5.5	7
WT5	16.2	2.1	1.4	8
WT6	5.4	6.8	2.4	4.3
WT7	6.9	6.3	7.2	7.6
WT8	5.4	4.4	7.9	3.5
WT9	5.1	15.4	9.6	12.6
WT10	3.7	6.4	3.7	4.2
WT11	8.2	1.5	6.1	7.6
WT12	3.8	7.1	15.9	14.4
WT13	8.3	2.2	4.8	8.2

Table B6: Frequency of the weather types for the RCP4.5 scenario from the CNRM-CM5 model (%) over two future periods (2020-2049 and 2070-2099).

	2020-2049				2020-2049			
	DJF	MAM	JJA	SON	DJF	MAM	JJA	SON
WT0	4.7	4.4	12.9	6.6	5	5.6	12	6.4
WT1	5.4	12.4	8.4	8	6.5	9.8	8.6	7.1
WT2	11.6	17.2	15.9	4.4	10.2	18	17.7	4
WT3	9.1	9.1	1.3	3.6	7.6	9.6	0.9	4.8
WT4	11.9	3.3	4.5	4.9	8.7	3.3	5.8	5.5
WT5	12.7	2.3	1.5	6.6	19.1	3	2.1	7.3
WT6	6.2	4.9	2.1	4.4	5.5	6.1	1.9	5.5
WT7	6	6.9	6.3	11	5.9	3.8	6	10.9
WT8	3.4	3.3	10.7	2.8	4.4	4.2	11.7	2.5
WT9	5	13.5	9.8	14.9	4.6	15.1	11.2	16
WT10	5.9	10.2	4.7	5	5.4	10.7	2.5	5.2
WT11	5.3	1.5	3.3	7.2	6.6	1.4	3.3	5
WT12	4.5	7.1	13.4	11.1	2.8	5.5	10.1	10.1
WT13	8.3	3.9	5.2	9.5	7.7	3.9	6.2	9.7

Table B7: Frequency of the weather types for the RCP8.5 scenario from the CNRM-CM5 model (%) over two future periods (2020-2049 and 2070-2099).

	2020-2049				2020-2049			
	DJF	MAM	JJA	SON	DJF	MAM	JJA	SON
WT0	3.9	4	11.4	4.9	4.1	4.4	9.6	5.2
WT1	4.6	11.9	8	7.3	5.8	10.7	7.9	6.3
WT2	12	18.7	15.7	4.7	9.7	20.9	17.8	5.3
WT3	7.8	10.4	1	4.4	8.6	9.6	1.2	5.2
WT4	9.3	3.9	5.1	6.5	10.6	3.3	4.7	3.9
WT5	18.8	3.2	2	7.8	18.3	2.6	1.9	9.2
WT6	5.4	6.7	1.7	6.3	7.2	5.9	1.7	6.5
WT7	6.1	3.8	6.5	8.8	5.1	3.2	5.8	11.6
WT8	4.5	5.3	11.2	3.3	3	4.7	11.3	1.9
WT9	5.1	13.3	13.4	14.4	4.7	13.8	13.4	15.7
WT10	4.5	9.2	2.6	4.7	5.2	10.8	3.3	4.9
WT11	8	1.1	4.1	7	6	2.1	4.5	5.3
WT12	2.7	5.5	11.3	10.3	3.8	5.1	9.5	8.9
WT13	7.3	3	6	9.6	7.9	2.9	7.4	10.1

B.9 Computational cost

Table B8: Differences between the computational costs for a simulation with Polyphemus/Polair3D CTM and this statistical model over Europe.

	Polyphemus/Polair3D	Statistical approach
Length of simulated period	1 year	30 years
Preprocessing	5 days	1 day
Processing	19 days	3 hours
Postprocessing	1 day	1 day
Total	**25 days**	**2 to 3 days**

Bibliographie

Airparif (2011). *Source apportionment of airbone particles in Ile-de-France - final report*. Technical Report Airparif, Paris, France.

Alexander, L., Allen, S., Bindoff, N. L., Bréon, F.-M., Church, J., Cubasch, U., Emori, S., Forster, P., Friedlingstein, P., Gillet, N., Gregory, J., Hartmann, D., Jansen, E., Kirtman, B., Knutti, R., Kanikicharla, K. K., Lemke, P., Marotzke, J., Masson-Delmotte, V., Meehl, G., Mokhov, I., Piao, S., Plattner, G.-K., Dahe, Q., Rawaswamy, V., Randall, D., Rhein, M., Rojas, M., Sabine, C., Shindell, D., Stocker, T. F., Talley, L., Vaughan, D., Xie, S.-P. et al. (2013). Contribution of Working Group I to the IPCC Fifth Assessment Report - Climate Change 2013 : The Physical Science Basis - Summary for Policemakers. *Intergovernmental Panel on Climate Change*, .

Appel, K. W., Chemel, C., Roselle, S. J., Francis, X. V., Hu, R.-M., Sokhi, R. S., Rao, S., & Galmarini, S. (2012). Examination of the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model performance over the North American and European domains. *Atmospheric Environment*, *53*, 142–155.

Augustin, L., Barbante, C., Barnes, P. R., Barnola, J. M., Bigler, M., Castellano, E., Cattani, O., Chappellaz, J., Dahl-Jensen, D., Delmonte, B. et al. (2004). Eight glacial cycles from an Antarctic ice core. *Nature*, *429*, 623–628.

Avise, J., Chen, J., Lamb, B., Wiedinmyer, C., Guenther, A., Salathé, E., & Mass, C. (2009). Attribution of projected changes in summertime US ozone and $PM_{2.5}$ concentrations to global changes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*, 1111–1124.

Barnola, J., Raynaud, D., Korotkevich, Y., & Lorius, C. (1987). *Vostok ice core provides 160,000-year record of atmospheric CO_2*.

Bender, M. A., Knutson, T. R., Tuleya, R. E., Sirutis, J. J., Vecchi, G. A., Garner, S. T., & Held, I. M. (2010). Modeled impact of anthropogenic warming on the frequency of intense Atlantic hurricanes. *Science*, *327*, 454–458.

Bluth, G. J., Doiron, S. D., Schnetzler, C. C., Krueger, A. J., & Walter, L. S. (1992). Global tracking of the SO_2 clouds from the June, 1991 Mount Pinatubo eruptions. *Geophysical Research Letters*, *19*, 151–154.

Boé, J. (2007). *Changement global et cycle hydrologique : une étude de régionalisation sur la France.*. Ph.D. thesis Université Toulouse III - Paul Sabatier.

Boé, J., Terray, L., Cassou, C., & Najac, J. (2009). Uncertainties in European summer precipitation changes: role of large scale circulation. *Climate Dynamics*, *33*, 265–276.

Boé, J., Terray, L., Habets, F., & Martin, E. (2006). A simple statistical-dynamical downscaling scheme based on weather types and conditional resampling. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *111*.

Boylan, J. W., & Russell, A. G. (2006). PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models. *Atmospheric Environment*, *40*, 4946–4959.

Cassou, C., Terray, L., & Phillips, A. S. (2005). Tropical Atlantic influence on European heat waves. *Journal of Climate*, *18*, 2805–2811.

Cattiaux, J. (2010). *Extrêmes de température en Europe: mécanismes et réponses au changement climatique.*. Ph.D. thesis Université Pierre et Marie Curie-Paris VI.

Cattiaux, J., Douville, H., & Peings, Y. (2013). European temperatures in CMIP5: origins of present-day biases and future uncertainties. *Climate Dynamics*, (pp. 1–19).

Cattiaux, J., Vautard, R., Cassou, C., Yiou, P., Masson-Delmotte, V., & Codron, F. (2010). Winter 2010 in Europe: a cold extreme in a warming climate. *Geophysical Research Letters*, *37*.

Cattiaux, J., Vautard, R., & Yiou, P. (2009). Origins of the extremely warm European fall of 2006. *Geophysical Research Letters*, *36*.

Cattiaux, J., Vautard, R., & Yiou, P. (2011). North-Atlantic SST amplified recent wintertime European land temperature extremes and trends. *Climate Dynamics*, *36*, 2113–2128.

Cattiaux, J., Yiou, P., & Vautard, R. (2012). Dynamics of future seasonal temperature trends and extremes in Europe: a multi-model analysis from CMIP3. *Climate Dynamics*, *38*, 1949–1964.

Chen, J., Avise, J., Lamb, B., Salathé, E., Mass, C., Guenther, A., Wiedinmyer, C., Lamarque, J.-F., O'Neill, S., McKenzie, D. et al. (2009). The effects of global changes upon regional ozone pollution in the United States. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*, 1125–1141.

Colette, A., Bessagnet, B., Vautard, R., Szopa, S., Rao, S., Schucht, S., Klimont, Z., Menut, L., Clain, G., Meleux, F. et al. (2013). European atmosphere in 2050, a regional air quality and climate perspective under CMIP5 scenarios. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*, 7451–7471.

Colette, A., Granier, C., Hodnebrog, Ø., Jakobs, H., Maurizi, A., Nyiri, A., Bessagnet, B., D'Angiola, A., D'Isidoro, M., Gauss, M. et al. (2011). Air quality trends in Europe over the past decade: a first multi-model assessment. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*, 11657–11678.

Corti, S., Molteni, F., & Palmer, T. (1999). Signature of recent climate change in frequencies of natural atmospheric circulation regimes. *Nature*, *398*, 799–802.

Couvidat, F., Debry, É., Sartelet, K., & Seigneur, C. (2012). A hydrophilic/hydrophobic organic (H^20) aerosol model: Development, evaluation and sensitivity analysis. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *117*.

Couvidat, F., Kim, Y., Sartelet, K., Seigneur, C., Marchand, N., & Sciare, J. (2013). Modeling secondary organic aerosol in an urban area: application to Paris, France. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*, 983–996.

Dawson, J., Adams, P., & Pandis, S. (2007). Sensitivity of $PM_{2.5}$ to climate in the eastern US: A modeling case study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*, 4295–4309.

Dawson, J. P., Racherla, P. N., Lynn, B. H., Adams, P. J., & Pandis, S. N. (2009). Impacts of climate change on regional and urban air quality in the eastern United States: Role of meteorology. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *114*.

Debry, E., Fahey, K., Sartelet, K., Sportisse, B., & Tombette, M. (2007). Technical Note: A new SIze REsolved Aerosol Model (SIREAM). *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*, 1537–1547.

Delmas, R., Chauzy, S., Verstraete, J.-M., & Ferré, H. (2007). *Atmosphère, océan et climat*. BELIN pour la science.

Dennis, R., Fox, T., Fuentes, M., Gilliland, A., Hanna, S., Hogrefe, C., Irwin, J., Rao, S. T., Scheffe, R., Schere, K. et al. (2010). A framework for evaluating regional-scale numerical photochemical modeling systems. *Environmental Fluid Mechanics*, *10*, 471–489.

Emmons, L., Walters, S., Hess, P., Lamarque, J.-F., Pfister, G., Fillmore, D., Granier, C., Guenther, A., Kinnison, D., Laepple, T. et al. (2010). Description and evaluation of the Model for Ozone And Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4). *Geoscientific Model Development*, *3*, 43–67.

Enfield, D. B., Mestas-Nuñez, A. M., & Trimble, P. J. (2001). The Atlantic multidecadal oscillation and its relation to rainfall and river flows in the continental US. *Geophysical Research Letters*, *28*, 2077–2080.

EPA (1991). *Guideline for regulatory application of the urban airshed model*. Technical Report EPA.

Fischer, E. M., & Schär, C. (2009). Future changes in daily summer temperature variability: driving processes and role for temperature extremes. *Climate Dynamics*, *33*, 917–935.

Galindo, N., Varea, M., Gil-Moltó, J., Yubero, E., & Nicolás, J. (2011). The influence of meteorology on particulate matter concentrations at an urban Mediterranean location. *Water, Air, & Soil Pollution*, *215*, 365–372.

Gilliland, A. B., Hogrefe, C., Pinder, R. W., Godowitch, J. M., Foley, K. L., & Rao, S. (2008). Dynamic evaluation of regional air quality models: Assessing changes in O_3 stemming from changes in emissions and meteorology. *Atmospheric Environment*, *42*, 5110–5123.

Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P., Geron, C. et al. (2006). Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). *Atmospheric Chemistry and Physics*, *6*, 3181–3210.

Heald, C., Henze, D., Horowitz, L., Feddema, J., Lamarque, J.-F., Guenther, A., Hess, P., Vitt, F., Seinfeld, J., Goldstein, A. et al. (2008). Predicted change in global secondary organic aerosol concentrations in response to future climate, emissions, and land use change. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *113*.

Hedegaard, G. B., Christensen, J. H., & Brandt, J. (2013). The relative importance of impacts from climate change vs. emissions change on air pollution levels in the 21st century. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*, 3569–3585.

Henderson-Sellers, A., Zhang, H., Berz, G., Emanuel, K., Gray, W., Landsea, C., Holland, G., Lighthill, J., Shieh, S.-L., Webster, P. et al. (1998). Tropical cyclones and global climate change: A post-IPCC assessment. *Bulletin of the American Meteorological Society*, *79*, 19–38.

Hering, S., & Cass, G. (1999). The Magnitude of Bias in the Measurement of PM25 Arising from Volatilization of Particulate Nitrate from Teflon Filters. *Journal of the Air & Waste Management Association*, *49*, 725–733.

Jacob, D. J., & Winner, D. A. (2009). Effect of climate change on air quality. *Atmospheric Environment*, *43*, 51–63.

Jiang, X., Yang, Z.-L., Liao, H., & Wiedinmyer, C. (2010). Sensitivity of biogenic secondary organic aerosols to future climate change at regional scales: an online coupled simulation. *Atmospheric Environment*, *44*, 4891–4907.

Jiménez-Guerrero, P., Jose Gomez-Navarro, J., Jerez, S., Lorente-Plazas, R., Garcia-Valero, J. A., & Montavez, J. P. (2011). Isolating the effects of climate change in the variation of secondary inorganic aerosols (SIA) in Europe for the 21st century (1991–2100). *Atmospheric Environment*, *45*, 1059–1063.

Jiménez-Guerrero, P., Montávez, J. P., Gómez-Navarro, J. J., Jerez, S., & Lorente-Plazas, R. (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*, 483–495.

Katragkou, E., Zanis, P., Kioutsioukis, I., Tegoulias, I., Melas, D., Krüger, B., & Coppola, E. (2011). Future climate change impacts on summer surface ozone from regional climate-air quality simulations over Europe. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *116*.

Kelly, J., Makar, P., & Plummer, D. (2012). Projections of mid-century summer air-quality for North America: effects of changes in climate and precursor emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*, 5367–5390.

Kim, Y., Sartelet, K., & Seigneur, C. (2009). Comparison of two gas-phase chemical kinetic mechanisms of ozone formation over Europe. *Journal of Atmospheric Chemistry*, *62*, 89–119.

Knight, J. R., Folland, C. K., & Scaife, A. A. (2006). Climate impacts of the Atlantic multidecadal oscillation. *Geophysical Research Letters*, *33*.

Knutson, T. R., McBride, J. L., Chan, J., Emanuel, K., Holland, G., Landsea, C., Held, I., Kossin, J. P., Srivastava, A., & Sugi, M. (2010). Tropical cyclones and climate change. *Nature Geoscience*, *3*, 157–163.

Lam, Y., Fu, J., Wu, S., & Mickley, L. (2011). Impacts of future climate change and effects of biogenic emissions on surface ozone and particulate matter concentrations in the United States. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*, 4789–4806.

Latif, M., & Barnett, T. P. (1996). Decadal climate variability over the North Pacific and North America: Dynamics and predictability. *Journal of Climate*, *9*, 2407–2423.

Lecœur, È., & Seigneur, C. (2013). Dynamic evaluation of a multi-year model simulation of particulate matter concentrations over Europe. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*, 4319–4337.

Liao, H., Chen, W.-T., & Seinfeld, J. H. (2006). Role of climate change in global predictions of future tropospheric ozone and aerosols. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *111*.

Mahmud, A., Hixson, M., Hu, J., Zhao, Z., Chen, S.-H., & Kleeman, M. (2010). Climate impact on airborne particulate matter concentrations in California using seven year analysis periods. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*, 11097–11114.

Mahmud, A., Tyree, M., Cayan, D., Motallebi, N., & Kleeman, M. J. (2008). Statistical downscaling of climate change impacts on ozone concentrations in California. *Journal of Geophysical Research*, *113*, D21103.

Mahowald, N. M., Lamarque, J.-F., Tie, X. X., & Wolff, E. (2006). Sea-salt aerosol response to climate change: Last Glacial Maximum, preindustrial, and doubled carbon dioxide climates. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *111*.

Mallet, V., Quélo, D., Sportisse, B., Ahmed de Biasi, M., Debry, É., Korsakissok, I., Wu, L., Roustan, Y., Sartelet, K., Tombette, M. et al. (2007). Technical Note: The air quality modeling system Polyphemus. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*, 5479–5487.

Manders, A., Meijgaard, E. v., Mues, A., Kranenburg, R., Ulft, L. v., & Schaap, M. (2012). The impact of differences in large-scale circulation output from climate models on the regional modeling of ozone and pm. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*, 9441–9458.

Mantua, N. J., & Hare, S. R. (2002). The Pacific Decadal Oscillation. *Journal of Oceanography*, *58*, 35–44.

Mantua, N. J., Hare, S. R., Wallace, J. M., & Francis, R. C. (1997). A Pacific interdecadal oscillation with impacts on salmon production. *Bulletin of the American Meteorological Society*, *78*, 169–1079.

Masui, T., Matsumoto, K., Hijioka, Y., Kinoshita, T., Nozawa, T., Ishiwatari, S., Kato, E., Shukla, P., Yamagata, Y., & Kainuma, M. (2011). An emission pathway for stabilization at 6 W/m^2 radiative forcing. *Climatic Change*, *109*, 59–76.

McCabe, G. J., Clark, M. P., & Serreze, M. C. (2001). Trends in Northern Hemisphere surface cyclone frequency and intensity. *Journal of Climate*, *14*, 2763–2768.

Meleux, F., Solmon, F., & Giorgi, F. (2007). Increase in summer European ozone amounts due to climate change. *Atmospheric Environment*, *41*, 7577–7587.

Ménégoz, M., Guemas, V., Salas y Melia, D., & Voldoire, A. (2010). Winter interactions between aerosols and weather regimes in the North Atlantic European region. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *115*.

Michelangeli, P.-A., Vautard, R., & Legras, B. (1995). Weather regimes: Recurrence and quasi stationarity. *Journal of the Atmospheric Sciences*, *52*, 1237–1256.

Minobe, S. (1997). A 50-70 year climatic oscillation over the North Pacific and North America. *Geophysical Research Letters*, *24*, 683–686.

Monahan, E. C., Spiel, D. E., & Davidson, K. L. (1986). A model of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption. In *Oceanic Whitecaps* (pp. 167–174). Springer.

Najac, J. (2008). *Impacts du changement climatique sur le potentiel éolien en France : une étude de régionalisation.*. Ph.D. thesis Université Toulouse III - Paul Sabatier.

Najac, J., Boé, J., & Terray, L. (2009). A multi-model ensemble approach for assessment of climate change impact on surface winds in France. *Climate Dynamics*, *32*, 615–634.

Nenes, A., Pandis, S. N., & Pilinis, C. (1998). ISORROPIA: A new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols. *Aquatic Geochemistry*, *4*, 123–152.

Pachauri, R. K., & Reisinger, A. (2007). Climate Change 2007: Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. *Intergovernmental Panel on Climate Change*, *1*.

Pagé, C., Terray, L., & Boé, J. (2009). *dsclim: a software package to downscale climate scenarios at regional scale using a weather-typing based statistical methodology*. Technical Report CERFACS.

Pascal, M., Corso, M., Chanel, O., Declercq, C., Badaloni, C., Cesaroni, G., Henschel, S., Meister, K., Haluza, D., Martin-Olmedo, P. et al. (2013). Assessing the public health impacts of urban air pollution in 25 European cities: Results of the Aphekom project. *Science of the Total Environment*, *449*, 390–400.

Pay, M., Piot, M., Jorba, O., Gassó, S., Gonçalves, M., Basart, S., Dabdub, D., Jiménez-Guerrero, P., & Baldasano, J. (2010). A full year evaluation of the CALIOPE-EU air quality modeling system over Europe for 2004. *Atmospheric Environment*, *44*, 3322–3342.

Peel, M. C., Finlayson, B. L., & McMahon, T. A. (2007). Updated world map of the Köppen-Geiger climate classification. *Hydrology and Earth System Sciences Discussions*, *4*, 439–473.

Péré, J., Mallet, M., Pont, V., & Bessagnet, B. (2010). Evaluation of an aerosol optical scheme in the chemistry-transport model CHIMERE. *Atmospheric Environment*, *44*, 3688–3699.

Philipp, A. (2009). Comparison of principal component and cluster analysis for classifying circulation pattern sequences for the European domain. *Theoretical and Applied Climatology*, *96*, 31–41.

Philipp, A., Bartholy, J., Beck, C., Erpicum, M., Esteban, P., Fettweis, X., Huth, R., James, P., Jourdain, S., Kreienkamp, F. et al. (2010). Cost733cat - A database of weather and circulation type classifications. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, *35*, 360–373.

Pye, H., Liao, H., Wu, S., Mickley, L. J., Jacob, D. J., Henze, D. K., & Seinfeld, J. (2009). Effect of changes in climate and emissions on future sulfate-nitrate-ammonium aerosol levels in the United States. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *114*.

Querol, X., Alastuey, A., Ruiz, C., Artinano, B., Hansson, H., Harrison, R., Buringh, E. t., Ten Brink, H., Lutz, M., Bruckmann, P. et al. (2004). Speciation and origin of PM_{10} and $PM_{2.5}$ in selected European cities. *Atmospheric Environment*, *38*, 6547–6555.

Racherla, P. N., & Adams, P. J. (2006). Sensitivity of global tropospheric ozone and fine particulate matter concentrations to climate change. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *111*.

Rex, D. F. (1950). Blocking action in the middle troposphere and its effect upon regional climate. *Tellus*, *2*, 275–301.

Riahi, K., Rao, S., Krey, V., Cho, C., Chirkov, V., Fischer, G., Kindermann, G., Nakicenovic, N., & Rafaj, P. (2011). RCP8.5- A scenario of comparatively high greenhouse gas emissions. *Climatic Change*, *109*, 33–57.

Russell, A., & Dennis, R. (2000). NARSTO critical review of photochemical models and modeling. *Atmospheric Environment*, *34*, 2283–2324.

Sartelet, K., Debry, E., Fahey, K., Roustan, Y., Tombette, M., & Sportisse, B. (2007). Simulation of aerosols and gas-phase species over Europe with the POLYPHEMUS system: Part I - Model-to-data comparison for 2001. *Atmospheric Environment*, *41*, 6116–6131.

Sartelet, K. N., Couvidat, F., Seigneur, C., & Roustan, Y. (2012). Impact of biogenic emissions on air quality over Europe and North America. *Atmospheric Environment*, *53*, 131–141.

Scaife, A. A., Folland, C. K., Alexander, L. V., Moberg, A., & Knight, J. R. (2008). European climate extremes and the North Atlantic Oscillation. *Journal of Climate*, *21*, 72–83.

Schaap, M., Spindler, G., Schulz, M., Acker, K., Maenhaut, W., Berner, A., Wieprecht, W., Streit, N., Müller, K., Brüggemann, E. et al. (2004). Artefacts in the sampling of nitrate studied in the INTERCOMP campaigns of EUROTRAC-AEROSOL. *Atmospheric Environment*, *38*, 6487–6496.

Seigneur, C., Pun, B., Pai, P., Louis, J.-F., Solomon, P., Emery, C., Morris, R., Zahniser, M., Worsnop, D., Koutrakis, P. et al. (2000). Guidance for the performance evaluation of three-dimensional air quality modeling systems for particulate matter and visibility. *Journal of the Air & Waste Management Association*, *50*, 588–599.

Self, S., Zhao, J.-X., Holasek, R. E., Torres, R. C., & King, A. J. (1996). The atmospheric impact of the 1991 Mount Pinatubo eruption. *Fire and Mud: Eruptions and Lahars of Mount Pinatubo, Philippines. Quezon City: Philippine Institute of Volcanology and Seismology*, (pp. 1098–1115).

Singh, A., & Palazoglu, A. (2012). Climatic variability and its influence on ozone and PM pollution in 6 non-attainment regions in the United States. *Atmospheric Environment*, *51*, 212–224.

Solazzo, E., Bianconi, R., Pirovano, G., Matthias, V., Vautard, R., Moran, M. D., Wyat Appel, K., Bessagnet, B., Brandt, J., Christensen, J. H. et al. (2012). Operational model evaluation for particulate matter in Europe and North America in the context of AQMEII. *Atmospheric Environment*, *53*, 75–92.

Spracklen, D., Mickley, L., Logan, J., Hudman, R., Yevich, R., Flannigan, M., & Westerling, A. (2009). Impacts of climate change from 2000 to 2050 on wildfire activity and carbonaceous aerosol concentrations in the western United States. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *114*.

Steiner, A. L., Tonse, S., Cohen, R. C., Goldstein, A. H., & Harley, R. A. (2006). Influence of future climate and emissions on regional air quality in California. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *111*.

Tagaris, E., Liao, K.-J., DeLucia, A. J., Deck, L., Amar, P., & Russell, A. G. (2009). Potential impact of climate change on air pollution-related human health effects. *Environmental science & technology*, *43*, 4979–4988.

Tagaris, E., Manomaiphiboon, K., Liao, K.-J., Leung, L. R., Woo, J.-H., He, S., Amar, P., & Russell, A. G. (2007). Impacts of global climate change and emissions on regional ozone and fine particulate matter concentrations over the United States. *Journal of Geophysical Research*, *112*, D14312.

Tai, A., Mickley, L., Jacob, D., Leibensperger, E., Zhang, L., Fisher, J., & Pye, H. (2012a). Meteorological modes of variability for fine particulate matter ($PM_{2.5}$) air quality in the United States: implications for $PM_{2.5}$ sensitivity to climate change. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*, 3131–3145.

Tai, A. P., Mickley, L. J., & Jacob, D. J. (2010). Correlations between fine particulate matter ($PM_{2.5}$) and meteorological variables in the United States: Implications for the sensitivity of $PM_{2.5}$ to climate change. *Atmospheric Environment*, *44*, 3976–3984.

Tai, A. P., Mickley, L. J., & Jacob, D. J. (2012b). Impact of 2000–2050 climate change on fine particulate matter ($PM_{2.5}$) air quality inferred from a multi-model analysis of meteorological modes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*, 11329–11337.

Terray, L., & Boé, J. (2013). Quantifying 21st-century France climate change and related uncertainties. *Comptes Rendus Geoscience*, .

Thishan Dharshana, K., Kravtsov, S., & Kahl, J. D. (2010). Relationship between synoptic weather disturbances and particulate matter air pollution over the United States. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *115*.

Thomson, A. M., Calvin, K. V., Smith, S. J., Kyle, G. P., Volke, A., Patel, P., Delgado-Arias, S., Bond-Lamberty, B., Wise, M. A., Clarke, L. E. et al. (2011). RCP4.5: A pathway for stabilization of radiative forcing by 2100. *Climatic Change*, *109*, 77–94.

Troen, I., & Mahrt, L. (1986). A simple model of the atmospheric boundary layer; sensitivity to surface evaporation. *Boundary-Layer Meteorology*, *37*, 129–148.

Tuccella, P., Curci, G., Visconti, G., Bessagnet, B., Menut, L., & Park, R. J. (2012). Modeling of gas and aerosol with WRF/Chem over Europe: Evaluation and sensitivity study. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *117*.

Ulbrich, U., Leckebusch, G., & Pinto, J. (2009). Extra-tropical cyclones in the present and future climate: a review. *Theoretical and Applied Climatology*, *96*, 117–131.

Unger, N., Shindell, D. T., Koch, D. M., Amann, M., Cofala, J., & Streets, D. G. (2006). Influences of man-made emissions and climate changes on tropospheric ozone, methane, and sulfate at 2030 from a broad range of possible futures. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *111*.

Van Loon, M., Vautard, R., Schaap, M., Bergström, R., Bessagnet, B., Brandt, J., Builtjes, P., Christensen, J., Cuvelier, C., Graff, A. et al. (2007). Evaluation of long-term ozone simulations from seven regional air quality models and their ensemble. *Atmospheric Environment*, *41*, 2083–2097.

Vautard, R. (1990). Multiple weather regimes over the North Atlantic: Analysis of precursors and successors. *Monthly Weather Review*, *118*, 2056–2081.

Vautard, R., & Yiou, P. (2009). Control of recent European surface climate change by atmospheric flow. *Geophysical Research Letters*, *36*.

Voldoire, A., Sanchez-Gomez, E., Salas y Mélia, D., Decharme, B., Cassou, C., Sénési, S., Valcke, S., Beau, I., Alias, A., Chevallier, M., Déqué, M., Deshayes, J., Douville, H., Fernandez, E., Madec, G., Maisonnave, E., Moine, M.-P., Planton, S., Saint-Martin, D., Szopa, S., Tyteca, S., Alkama, R., Belamari, S., Braun, A., Coquart, L., & Chauvin, F. (2013). The CNRM-CM5.1 global climate model: description and basic evaluation. *Climate Dynamics*, *40*, 2091–2121.

van Vuuren, D. P., Stehfest, E., den Elzen, M. G., Kram, T., van Vliet, J., Deetman, S., Isaac, M., Goldewijk, K. K., Hof, A., Beltran, A. M. et al. (2011). RCP2.6: exploring the possibility to keep global mean temperature increase below 2°C. *Climatic Change*, *109*, 95–116.

Webster, P. J., Holland, G. J., Curry, J. A., & Chang, H.-R. (2005). Changes in tropical cyclone number, duration, and intensity in a warming environment. *Science*, *309*, 1844–1846.

Wild, O., Zhu, X., & Prather, M. J. (2000). Fast-J: Accurate simulation of in-and below-cloud photolysis in tropospheric chemical models. *Journal of Atmospheric Chemistry*, *37*, 245–282.

Wu, S., Mickley, L. J., Leibensperger, E. M., Jacob, D. J., Rind, D., & Streets, D. G. (2008). Effects of 2000–2050 global change on ozone air quality in the United States. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012)*, *113*.

Yarwood, G., Morris, R. E., Yocke, M. A., & Whitten, G. Z. (2005). *Updates to the Carbon Bond chemical mechanism: CB05. Final Report prepared for US EPA.* Technical Report US EPA.

Yarwood, G., Stoeckenius, T. E., Heiken, J. G., & Dunker, A. M. (2003). Modeling weekday/weekend ozone differences in the Los Angeles region for 1997. *Journal of the Air & Waste Management Association*, *53*, 864–875.

Yiou, P., & Nogaj, M. (2004). Extreme climatic events and weather regimes over the North Atlantic: When and where? *Geophysical Research Letters, 31*.

Yiou, P., Vautard, R., Naveau, P., & Cassou, C. (2007). Inconsistency between atmospheric dynamics and temperatures during the exceptional 2006/2007 fall/winter and recent warming in Europe. *Geophysical Research Letters, 34*.

Yttri, K., Aas, W., Bjerke, A., Cape, J., Cavalli, F., Ceburnis, D., Dye, C., Emblico, L., Facchini, M., Forster, C. et al. (2007). Elemental and organic carbon in PM_{10}: a one year measurement campaign within the European Monitoring and Evaluation Programme EMEP. *Atmospheric Chemistry and Physics, 7*, 5711–5725.

Zhang, L., Brook, J., & Vet, R. (2003). A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models. *Atmospheric Chemistry and Physics, 3*, 2067–2082.

Zhang, Y., Hu, X.-M., Leung, L. R., & Gustafson, W. I. (2008). Impacts of regional climate change on biogenic emissions and air quality. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012), 113*.

Liste des tableaux

1.1 Anomalies globales de température et d'élévation du niveau de la mer (valeur moyenne et intervalle d'incertitude [5-95%]), exprimées en °C et en m, pour la période 2081-2100 par rapport à 1986-2005. *Source : Alexander et al. (2013).* 29

1.2 Concentrations annuelles de $PM_{2.5}$ (en $\mu g\, m^{-3}$) et gain d'espérance de vie (en mois) pour une personne de 30 ans et plus si la recommandation de l'OMS (concentration annuelle de $PM_{2.5}$ inférieure à 10 $\mu g\, m^{-3}$) était respectée sur 25 des plus grandes villes européennes. *Source : Pascal et al. (2013).* 33

2.1 Dates, durée, anomalie moyenne de température (jeu de données E-OBS pour la période 1950-2008) et nombre de jours classés dans chaque régime de temps durant les quatre vagues de froid les plus importantes en France entre 1950 et 2008. 53

2.2 Dates, durée, anomalie moyenne de température (jeu de données E-OBS pour la période 1950-2008) et nombre de jours classés dans chaque régime de temps durant les cinq vagues de chaleur les plus importantes en France entre 1950 et 2008. 53

3.1 Temporal correlations between the simulated and observed data (ρ, expressed in %), RMSE, mean of the observations (μ_{obs}) and of the simulation (μ_{sim})(expressed in $\mu\, g\, m^{-3}$) for O_3 (hourly basis), PM_{10}, $PM_{2.5}$, $SO_4^=$, NO_3^-, and NH_4^+ (daily basis). 74

3.2 Operational evaluation of the model using the criteria* of Russell & Dennis (2000) for O_3 and of Boylan & Russell (2006) for PM and its components (expressed in %). 75

3.3 Dynamic evaluation for $PM_{2.5}$ (without speciation): linear regression analysis of the correlation coefficients between the $PM_{2.5}$ and temperature (T°C), precipitation (PR), and wind speed (WS) as a function of the day lag (ranging from 0 to 2) for the observed (obs) and simulated (sim) concentrations. reg is the regression coefficient obtained from the regression analysis and r is the best correlation coefficient. 80

3.4 Mean simulated (sim) and observed (obs) concentrations of sulfate, nitrate, and ammonium in winter (December-January-February, DJF) and in summer (June-July-August, JJA) at the five stations, expressed in$\mu\, g\, m^{-3}$ 84

4.1 Review of the studies that have investigated the impact of climate change (alone) on $PM_{2.5}$ concentrations. 98

4.2 Operational evaluation of the model using the correlation coefficient ρ and the relative error e_r between simulated and observed data (%), and the criteria* of Boylan & Russell (2006) for PM and its components (expressed in %). 101

4.3 Evaluation of the algorithm on the learning period using different thresholds for ρ. Best results are emphasized in bold. 107

4.4 Regions, scenarios and projections for which an increased precipitation (compared to 1975-2004) leads to increased $SO_4^=$, along with the associated changes in precipitation (%) and $SO_4^=$ ($\mu g\, m^{-3}$) compared to 1975-2004. 116

4.5 Regions, scenarios and projections for which an increased wind speed (compared to 1975-2004) leads to increased $SO_4^=$, along with the associated changes in wind speed ($m\, s^{-1}$) and $SO_4^=$ ($\mu g\, m^{-3}$) compared to 1975-2004. 116

A1 Comparisons to observations for surface PM_{10} and $PM_{2.5}$ over Europe (concentrations and RMSE are in $\mu g\, m^{-3}$) from 7 July to 31 August for this simulation (2000–2008) and the AQMEII models (2006) (Sartelet et al., 2012). 133

A2 Comparison for $PM_{2.5}$ with Péré et al. (2010), Pay et al. (2010), Tuccella et al. (2012), and Appel et al. (2012). The data from this work are averaged over 2000–2008. 133

A3 Comparison for sulfate with Péré et al. (2010) and Tuccella et al. (2012). The data from this work are averaged over 2000–2008. 134

A4 Comparison for nitrate with Péré et al. (2010) and Tuccella et al. (2012). The data from this work are averaged over 2000–2008. 134

A5 Comparison for ammonium with Péré et al. (2010) and Tuccella et al. (2012). The data from this work are averaged over 2000–2008. 134

B1 Range of variation of $PM_{2.5}$ and its components* for the RCP4.5 scenario (2020-2049), compared to the historical period ($\mu g\, m^{-3}$). 144

B2 Range of variation of $PM_{2.5}$ and its components for the RCP4.5 scenario (2070-2099), compared to the historical period ($\mu g\, m^{-3}$). 145

B3 Range of variation of $PM_{2.5}$ and its components for the RCP8.5 scenario (2020-2049), compared to the historical period ($\mu g\, m^{-3}$). 146

B4 Range of variation of $PM_{2.5}$ and its components for the RCP8.5 scenario (2070-2099), compared to the historical period ($\mu g\, m^{-3}$). 147

B5 Frequency of the weather types over the historical period (1975-2004) for the CNRM-CM5 model (%). 159

B6 Frequency of the weather types for the RCP4.5 scenario from the CNRM-CM5 model (%) over two future periods (2020-2049 and 2070-2099). 160

B7 Frequency of the weather types for the RCP8.5 scenario from the CNRM-CM5 model (%) over two future periods (2020-2049 and 2070-2099). 160

B8 Differences between the computational costs for a simulation with Polyphemus/Polair3D CTM and this statistical model over Europe. 161

Table des figures

1.1 Bilan radiatif global de la Terre. *Source : Delmas et al. (2007).* 18

1.2 Schéma simplifié de la circulation atmosphérique méridienne. *Source : Delmas et al. (2007).* 20

1.3 Schéma simplifié de la circulation océanique globale. *Source : Delmas et al. (2007).* 21

1.4 Obliquité de la Terre par rapport au plan de l'écliptique. *Source : www.cnrs.fr.* 21

1.5 Quantité d'énergie solaire reçue au niveau de la latitude de Paris (à gauche) et dans la zone intertropicale (à droite) en été et en hiver. *Source : www.cnrs.fr.* 22

1.6 Carte des climats de Köppen-Geiger (Peel et al., 2007). La première lettre du nom du climat traduit le groupe grand climatique auquel il appartient, la seconde le régime pluviométrique et la troisième les variations de température. 23

1.7 Évolution de la température sur la période 1901-2012, exprimée en °C. *Source : Alexander et al. (2013).* 27

1.8 Concentrations de CO_2 dans l'atmosphère depuis 1958 au pôle Sud (89.98°N, 24.8°W, en noir) et à Mauna Loa (19.53°N, 155.57°W, en rouge), exprimées en ppm. *Source : Alexander et al. (2013).* 28

2.1 Les étapes de l'algorithme du k-means avec $k = 3$. 49

2.2 Anomalies composites de PSL (première ligne, exprimées en hPa), de température (deuxième ligne, exprimées en °C) et de précipitations (troisième ligne, exprimées en %) des quatre régimes d'hiver sur la période 1950-2008. La fréquence d'occurrence de chaque régime est indiquée à côté du régime correspondant. 50

2.3 Anomalies composites de PSL (hPa), de température (°C) et de précipitations (%) des quatre régimes d'été sur la période 1950-2008. La fréquence d'occurrence de chaque régime est indiquée à côté du régime correspondant. 51

2.4 Anomalies composites de PSL (hPa) et de $PM_{2.5}$ ($\mu g\ m^{-3}$) sur la période 2000-2008 des types de temps WT5 (première colonne), WT6 (deuxième colonne) et WT7 (troisième colonne). Les champs de PSL sont issues des réanalyses NCEP, ceux de $PM_{2.5}$ des résultats de la simulation de Lecœur & Seigneur (2013). 56

2.5 Anomalies composites de PSL (hPa) et de $PM_{2.5}$ ($\mu g\ m^{-3}$) sur la période 2000-2008 des types de temps d'été WT4 (première colonne) et WT8 (deuxième colonne). Les champs de PSL sont issues des réanalyses NCEP, ceux de $PM_{2.5}$ des résultats de la simulation de Lecœur & Seigneur (2013). 57

2.6 Évolution de la température de surface (en K) pour les périodes 2020-2049 (première ligne) et 2070-2099 (deuxième ligne) par rapport à la période 1900-1929, en hiver (première colonne) et en été (deuxième colonne) pour le scénario RCP8.5. *Source : Terray & Boé (2013)*. 58

2.7 Évolution des précipitations (en mm/jour) pour les périodes 2020-2049 (première ligne) et 2070-2099 (deuxième ligne) par rapport à la période 1900-1929, en hiver (première colonne) et en été (deuxième colonne) pour le scénario RCP8.5. *Source : Terray & Boé (2013)*. Les points indiquent les régions où le changement relatif par rapport à la période 1900-1929 est supérieur à 20% en valeur absolue. 60

3.1 Geographical domain of the simulation and EMEP stations used for the dynamic evaluation (Section 3.4). The stations with a colored dot provide data for $PM_{2.5}$, sulfate, nitrate, and ammonium, while those with a black dot only provide $PM_{2.5}$ data. 69

3.2 Nine-year (2000-2008) averaged surface concentrations of $PM_{2.5}$ and its components, expressed in $\mu g\ m^{-3}$. 71

3.3 Nine-year (2000-2008) averaged surface fractions of sulfate, nitrate, ammonium, sea salt, organic matter, black carbon and mineral dust in $PM_{2.5}$. 72

3.4 Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at AT02 (2003-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot. 82

3.5 Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at DE02 (2006-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot. 83

3.6 Average sulfur dioxide emissions over Europe in winter, and difference (Δ) between winter and summer, expressed in $\mu g\ m^{-2}\ h^{-1}$. 84

3.7 Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at DE03 (2006-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot. 85

3.8 Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at IT01 (2007-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot. 86

3.9 Correlations between meteorology (temperature in red, precipitation in blue, wind speed in green) on a given day and pollutant concentrations ($PM_{2.5}$, sulfate, nitrate and ammonium), ranging up to 10 days after at NO01 (2002-2008). Simulated data are represented with a star, while observational data are represented with a dot. 87

4.1 Study domain, with highlights of five sub-regions: western Europe in red, central Europe in dark blue, northern Europe in light blue, southern Europe in green, and eastern Europe in orange. 100

4.2 Building weather types over the learning period. Pressure (PSL) and temperature (TAS, only for summer) anomalies from NCEP reanalyses are projected on the space composed by the EOF of PSL and of precipitation (PR). Dsclim classifies these anomalies and attributes each day of the 1950-2008 period to one of the 14 WTs. 103

4.3 Re-sampling $PM_{2.5}$ pseudo-observations over the learning period: finding the analog day of 5 December 2005. All days of the learning period for which WT2 is observed (minus the days belonging to year 2005) are displayed on the right-hand side of the Figure. The spatial correlation between these maps are computed. 5 December 2008 (in red) provides the best correlation. 104

4.4 Re-sampling $PM_{2.5}$ pseudo-observations over the learning period. The analog day of 31 December 2005 is 5 December 2008 (green arrow), the analog day of both 18 January 2004 and 8 January 2000 is 22 January 2003 (red arrow). 105

4.5 Building weather types over the historical period. PSL and TAS (only for summer) anomalies from Centre National des Recherches Météorologiques - Climate Model 5 (CNRM-CM5) (1975-2004) are projected on the space composed by the EOF of PSL and of PR (from the learning period). Dsclim classifies these anomalies and attributes each day of the 1975-2004 period to one of the 14 WTs of the learning period. 105

4.6 Re-sampling $PM_{2.5}$ pseudo-observations over the historical period. 106

4.7 Mean relative error (4.7a) and monthly correlation coefficient (4.7b) between the reconstructed and the pseudo-observed $PM_{2.5}$ concentrations over the learning period, expressed in %. PDF of the reconstructed (Rec) and pseudo-observed (Sim) $PM_{2.5}$ concentrations ($\mu g\ m^{-3}$), over the learning period, in blue and red respectively (4.7c). 108

4.8 Difference (K) (4.8a) between the average temperature in the near future and in the historical period, and (4.8b) between the average temperature in the distant future and in the historical period under the RCP4.5 scenario. 110

4.9 Difference (K) (4.9a) between the average temperature in the near future and in the historical period, and (4.9b) between the average temperature in the distant future and in the historical period under the RCP8.5 scenario. 110

4.10 (4.10a) Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration ($\mu g\ m^{-3}$) in the near future and in the historical period; (4.10b) ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and $PM_{2.5}$ interannual variability under the RCP4.5 scenario. 111

4.11 (4.11a) Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration ($\mu g\ m^{-3}$) in the far future and in the historical period; (4.11b) ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and $PM_{2.5}$ interannual variability under the RCP4.5 scenario. 112

4.12 (4.12a) Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration ($\mu g\ m^{-3}$) in the near future and in the historical period; (4.12b) ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and $PM_{2.5}$ interannual variability under the RCP4.5 scenario. 113

4.13 (4.13a) Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration ($\mu g\ m^{-3}$) in the distant future and in the historical period; (4.13b) ratio of $PM_{2.5}$ changes due to climate change and $PM_{2.5}$ interannual variability under the RCP4.5 scenario. 114

4.14 Difference between the annual $PM_{2.5}$ concentration (µg m^{-3}) in the distant and near futures for the RCP4.5 (4.14a) and RCP8.5 (4.14b) scenarios. 115

4.15 Correlation (%) (4.15a) between temperature and precipitation and (4.15b) between temperature and wind speed in JJA for the 2070-2099 period under the RCP8.5 scenario. Similar maps are obtained for all scenarios and future periods. 117

4.16 Total (first column), inter-type (second column), intra-type (third column), and residual (last column) $PM_{2.5}$ changes between the historical (1975-2004) and near future (2020-2049) periods (scenario RCP4.5) in DJF (first row), MAM (second row), JJA (third row), and SON (last row). All changes are expressed in µg m^{-3}. 119

4.17 Total (first column), inter-type (second column), intra-type (third column), and residual (last column) $PM_{2.5}$ changes between the historical (1975-2004) and distant future (2070-2099) periods (scenario RCP4.5) in DJF (first row), MAM (second row), JJA (third row), and SON (last row). All changes are expressed in µg m^{-3}. 120

4.18 Total (first column), inter-type (second column), intra-type (third column), and residual (last column) $PM_{2.5}$ changes between the historical (1975-2004) and near future (2020-2049) periods (scenario RCP8.5) in DJF (first row), MAM (second row), JJA (third row), and SON (last row). All changes are expressed in µg m^{-3}. 121

4.19 Total (first column), inter-type (second column), intra-type (third column), and residual (last column) $PM_{2.5}$ changes between the historical (1975-2004) and distant future (2070-2099) periods (scenario RCP8.5) in DJF (first row), MAM (second row), JJA (third row), and SON (last row). All changes are expressed in µg m^{-3}. 122

B1 Difference between the average $PM_{2.5}$ in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (μg m^{-3}). 135

B2 Difference between the average $PM_{2.5}$ in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (μg m^{-3}). 135

B3 Difference between the average $PM_{2.5}$ in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (μg m^{-3}). 136

B4 Difference between the average $PM_{2.5}$ in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (μg m^{-3}). 136

B5 Difference between the average temperature in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (K). 137

B6 Evolution of the average precipitation in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (%). 137

B7 Difference between the average surface wind speed in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (m s^{-1}). 138

B8 Difference between the average temperature in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (K). 138

B9 Evolution of the average precipitation in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (%). 139

B10 Difference between the average surface wind speed in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP4.5 scenario (m s^{-1}). 139

B11 Difference between the average temperature in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (K). 140

B12 Evolution of the average precipitation in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (%). 140

B13 Difference between the average surface wind speed in 2020-2049 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (m s^{-1}). 141

B14 Difference between the average temperature in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (K). 141

B15 Evolution of the average precipitation in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (%). 142

B16 Difference between the average surface wind speed in 2070-2099 and in 1975-2004 under the RCP8.5 scenario (m s^{-1}). 142

B17 Difference between the annual temperature (°C) in the distant and near future for the RCP4.5 (a) and RCP8.5 (b) scenarios. 143

B18 Difference between the annual precipitation (%) in the distant and near future for the RCP4.5 (a) and RCP8.5 (b) scenarios. 143

B19 Difference between the annual wind speed (m s^{-1}) in the distant and near future for the RCP4.5 (a) and RCP8.5 (b) scenarios. 143

B20 PSL anomalies (expressed in hPa) of the 14 WTs in DJF, built on the learning period (2000-2008). The frequency of each WT is stated above the corresponding WT. 149

B21 PSL anomalies (expressed in hPa) of the 14 WTs in MAM, built on the learning period (2000-2008). The frequency of each WT is stated above the corresponding WT. 152

B22 PSL anomalies (expressed in hPa) of the 14 WTs in JJA, built on the learning period (2000-2008). The frequency of each WT is stated above the corresponding WT. 154

B23 PSL anomalies (expressed in hPa) of the 14 WTs in SON, built on the learning period (2000-2008). The frequency of each WT is stated above the corresponding WT. 157

RÉSUMÉ : La pollution atmosphérique est le produit de fortes émissions de polluants (et de leurs précurseurs) et de conditions météorologiques défavorables. Les particules fines ($PM_{2.5}$) sont l'un des polluants les plus dangereux pour la santé publique. L'exposition répétée ou prolongée à ces particules entraîne chaque année des maladies respiratoires et cardio-vasculaires chez les personnes exposées ainsi que des morts prématurées. L'évolution du climat dans les années à venir aura un impact sur des variables météorologiques (température, vents, précipitations, ...). Ces variables influencent à leur tour divers facteurs, qui affectent la qualité de l'air (émissions, lessivage par les précipitations, équilibre gaz/particule, ...). Si de nombreuses études ont déjà projeté l'effet du changement climatique sur les concentrations d'ozone, peu se sont intéressées à son effet sur les concentrations de particules fines, en particulier à l'échelle du continent européen. C'est ce que cette thèse se propose d'étudier.

La circulation atmosphérique de grande échelle est étroitement liée aux variables météorologiques de surface. Par conséquent, il est attendu qu'elle ait également un impact sur les concentrations de $PM_{2.5}$. Nous utilisons dans cette thèse une approche statistique pour estimer les concentrations futures de $PM_{2.5}$ à partir d'observations présentes de $PM_{2.5}$, de quelques variables météorologiques pertinentes et d'outils permettant de représenter cette circulation atmosphérique (régimes et types de temps). Le faible nombre d'observations journalières de $PM_{2.5}$ et de ses composants en Europe nous a conduit à créer un jeu de données pseudo-observées à l'aide du modèle de qualité de l'air Polyphemus/Polair3D, puis à l'évaluer de façons opérationnelle et dynamique, afin de s'assurer que l'influence des variables météorologiques sur les concentrations de $PM_{2.5}$ est reproduite de manière satisfaisante par le modèle. Cette évaluation dynamique d'un modèle de qualité de l'air est, à notre connaissance, la première menée à ce jour.

Les projections de $PM_{2.5}$ sur les périodes futures montrent une augmentation systématique des concentrations de $PM_{2.5}$ au Royaume-Uni, dans le nord de la France, au Benelux et dans les Balkans, et une diminution dans le nord, l'est et le sud-est de l'Europe, en Italie et en Pologne. L'évolution de la fréquence des types de temps ne suffit pas toujours à expliquer l'évolution de ces concentrations entre les périodes historique et futures, car les relations entre circulation atmosphérique de grande échelle et types de temps, entre types de temps et variables météorologiques, et entre variables météorologiques et concentrations de $PM_{2.5}$ sont amenées à évoluer dans le futur et contribuent à l'évolution des concentrations de $PM_{2.5}$.

L'approche statistique développée dans cette thèse est nouvelle pour l'estimation de l'impact du climat et du changement climatique sur les concentrations de $PM_{2.5}$ en Europe. Malgré les incertitudes qui y sont associées, cette approche est facilement adaptable à différents modèles et scénarios, ainsi qu'à d'autres régions du monde et d'autres polluants. En utilisant des observations pour définir la relation polluant-météorologie, cette approche serait d'autant plus robuste.

Mots-clés : particules fines, changement climatique, régimes de temps, types de temps, $PM_{2.5}$.

ABSTRACT: Air pollution is the result of high emissions of pollutants (and pollutant precursors) and unfavorable meteorological conditions. Fine particulate matter ($PM_{2.5}$) is one of the pollutants of great concern for human health. Every year, a repeated or continuous exposure to such particles is responsible for respiratory and cardiovascular diseases among the concerned populations and leads to premature deaths. Climate change is expected to impact meteorological variables (temperature, wind, precipitation, ...). Those variables will influence numerous factors, which will affect air quality (emissions, precipitation scavenging, gas/particle equilibrium, ...). A large body of studies have already investigated the effects of climate change on ozone, whereas only a few have addressed its effects on $PM_{2.5}$ concentrations, especially over Europe. This is the subject we investigate in this thesis.

Large-scale circulation is closely linked to surface meteorological variables. Therefore, it is expected that it will impact $PM_{2.5}$ concentrations too. In this thesis, we develop a statistical algorithm to estimate future $PM_{2.5}$ concentrations from present $PM_{2.5}$ observations, selected meteorological variables and tools to represent this circulation (weather regimes and weather types). The lack of daily observations of $PM_{2.5}$ and its components over Europe prevents us to used observations. Consequently, we have created a pseudo-observed $PM_{2.5}$ data set, by using the Polyphemus/Polair3D air quality Chemical-Transport Model. Both operational and dynamic evaluations were conducted against EMEP measurements, to ensure that the influence of meteorological variables on $PM_{2.5}$ concentrations is correctly reproduced by the model. As far as we know, this dynamic evaluation of an air quality model with respect to meteorology is the first conducted to date.

Future $PM_{2.5}$ concentrations display an increase over the U.K., northern France, Benelux, and in the Balkans, and a decrease over northern, eastern, and southeastern Europe, Italy, and Poland compared to the historical period. The evolution of weather type frequencies is not sufficient to explain the $PM_{2.5}$ changes. The relationships between the large-scale circulation and the weather types, between the weather types and meteorological variables, and between meteorological variables and $PM_{2.5}$ concentrations evolve with future meteorological conditions and also contribute to $PM_{2.5}$ changes.

The statistical method developed in this thesis is a new approach to estimate the impact of climate and climate change on $PM_{2.5}$ concentrations over Europe. Despite some uncertainties, this approach is easily applicable to different models and scenarios, as well as other geographical regions and other pollutants. Using observations to establish the pollutant-meteorology relationship would make this approach more robust.

Keywords : fine particulate matter, climate change, weather regimes, weather types, $PM_{2.5}$.