

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par : *l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)*

Présentée et soutenue le *01/12/2017* **par :**

Kouadio Guy Yannick KANGAH

Mesure du protoxyde d'azote (N_2O) depuis l'espace

	JURY	
Frédéric CHEVALLIER	LSCE	Président du Jury
Benjamin LOUBET	INRA	Rapporteur
Martine DE MAZIÈRE	IASB	Rapporteur
Philippe RICAUD	CNRM	Examinateur
Jean-Luc ATTIE	UPS, LA	Examinateur
Juying Xie WARNER	AOSC	Examinateur
Naoko SAITOH	CEReS	Examinateur
Laaziz EL AMRAOUI	CNRM	Examinateur

École doctorale et spécialité :
SDU2E : Océan, Atmosphère, Climat
Unité de Recherche :
Centre Nationale de Recherches Météorologiques - CNRM (UMR 3589)
Directeur(s) de Thèse :
Philippe RICAUD et *Jean-Luc ATTIÉ*
Rapporteurs :
Martine DE MAZIÈRE et *Benjamin LOUBET*

Résumé

Cette thèse porte sur la mesure du protoxyde d'azote (N_2O) à partir de capteurs spatiaux. Dans un premier temps, nous avons étudié les processus d'émissions et de transport de N_2O depuis l'Asie jusqu'au bassin méditerranéen. Pour cette étude, nous avons utilisé des sorties du modèle de chimie-transport LMDz-Or-INCA ansi que des profils de N_2O estimés à partir d'observations du capteur spatial TANSO-FTS (Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation Fourier Transform Spectrometer) de la plateforme GOSAT (Greenhouses gases Observing SATellite) et qui présentent un niveau maximum de sensibilité en haute troposphère ($\sim$300 hPa). Cette étude a permis de mettre en évidence un maximum estival (avec un pic en juillet) du gradient Est-Ouest de N_2O au-dessus du bassin méditerranéen. Ce maximum est dû au transport par la circulation de mousson des fortes émissions estivales de N_2O des surfaces asiatiques et plus particulièrement du sous-continent indien jusqu'au bassin méditerranéen oriental.

Ensuite, nous avons mis en place un système de restitution des profils de N_2O à partir des mesures du capteur spatial IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) des plateformes MetOp. Ce système a été validé en comparant les profils estimés aux mesures in-situ des campagnes aéroportées HIPPO (High performance Instrumented airborne platform for environmental research Pole-to-Pole Observations). Il ressort de la validation, d'une part, une bonne cohérence des estimations (moyennées dans des grilles horizontales de résolution 400 km) avec les mesures in-situ et, d'autre part, la possibilité inédite offerte par ces estimations d'étudier les variations de N_2O en haute troposphère à l'échelle globale, avec un pas de temps journalier et une résolution horizontale de quelques centaines de kilomètres.

Enfin, nous avons étudié l'apport théorique du capteur IASI-NG (IASI-New Generation) par rapport à IASI pour la mesure du N_2O troposphérique. L'un des apports majeurs de IASI-NG par rapport à IASI est qu'il permet d'avoir un deuxième niveau maximum de sensibilité au N_2O en moyenne troposphère ($\sim$558 hPa en moyenne sur le globe et jusqu'à $\sim$635 hPa dans les régions tropicales). De plus, nous montrons que IASI-NG présente une meilleure sensibilité que IASI dans la haute troposphère et permettrait ainsi d'avoir des champs de N_2O à la résolution de base des mesures du capteur, soit $\sim$12 km de diamètre au nadir.

Abstract

This thesis focuses on the measurement of nitrous oxide (N_2O) from space sensors. Firstly, we studied the transport and emission processes of N_2O from Asia to the Mediterranean Basin (MB). For this study, we used N_2O profiles over the period 2010-2013 retrieved from TANSO-FTS (Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation Fourier Transform Spectrometer) observations onboard the platform GOSAT (Greenhouses gases Observing SATellite) . We also used outputs of the chemistry-transport model LMDz-Or-INCA over the same period. This study, mostly based on the N_2O variations at the maximum sensitivity level of TANSO-FTS retrievals ($\sim$314 hPa), revealed a summer maximum (with a peak in July) of the east-west gradient of N_2O over the MB. This maximum is due to the transport by the monsoon circulation of the high summertime N_2O emissions from Asian surfaces and more particularly from the Indian subcontinent to the eastern MB. Secondly, we built an algorithm to retrieve N_2O profiles using observations from IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) onboard the MetOp platforms. This algorithm was validated by comparing the retrieved profiles with in-situ measurements of HIPPO (High performance Instrumented airborne platform for environmental research Pole-to-Pole Observations) airborne campaigns. We showed that these retrievals (averaged over horizontal grids with a 400 km resolution), on the one hand, are consistent with in-situ measurements, and, on the other hand, offer an unprecedented opportunity to study upper tropospheric N_2O variations at a global scale and on a daily basis. Finally, we performed a theoretical intercomparison between IASI-NG (IASI-New Generation) and IASI concerning the tropospheric N_2O measurements. One of the major advantages of IASI-NG compared to IASI is that it offers a second maximum level of sensitivity to N_2O in the mid-troposphere ($\sim$558 hPa on average). In the tropical regions, this second maximum level of sensitivity can go down to $\sim$635 hPa. In addition, we showed that IASI-NG is more sensitive than IASI in the upper troposphere and would thus make it possible to have N_2O fields at the basic horizontal resolution of the sensor measurements ($\sim$12 km diameter at nadir).

Remerciements

Un cycle se termine et un nouveau commence. Par ces quelques lignes, j'aimerais apporter ma gratitude à tous ceux qui ont volontairement ou involontairement contribué à rendre agréable mon séjour à Météo-France. J'aimerais tout d'abord remercier mon Jury de thèse pour leur participation et leur investissement : Martine De Mazière, Benjamin Loubet, Frédéric Chevallier, Laaziz El amraoui, Naoko Saitoh, Juying Warner et Laure Brooker. Un grand merci également aux membres de mon comité de thèse (Laaziz et Frédéric) dont la rigueur scientifique et les conseils avisés m'ont été d'une très grande utilité tout au long de cette thèse. J'aimerais remercier mes directeurs de thèse (Philippe Ricaud et Jean-Luc Attié) pour leur disponibilité, leur investissement et leurs encouragements. De plus, L'optimisme à toute épreuve de Philippe ainsi que la jovialité de Jean-Luc ont fait de cette thèse une agréable expérience humaine. Que ça va me manquer de refaire le monde avec vous et tous les autres fidèles "compagnons du déjeuner" (Nizar, Yasmine, Régina, Edouard, Frédéric, Samuel, Bojan, Laaziz, Laura, Thierno) ! ! ! ! Joie de vivre, camaraderie et solidarité étaient les maîtres-mots du bureau des *Immor∧l kidZ* (Iris, Maxence et Nizar) + Yann "Le squateur" sous le regard bienveillant de Jonathan "L'Ancien". Tout ce travail n'aurait pas été possible sans l'aide des collègues des équipes COMETS et PLASMA notamment à travers les "experts" informatiques Eric et Françoise. Mention Spéciale à Béatrice (pour tes inoubliables chouquettes du vendredi) ainsi qu'à tous les compagnons de la pause café : Virginie, Sophie, Jonathan, Joaquim, les deux Matthieu, Fred, Guillaume, Maxence, Martine ...
Un grand Merci également à mes trois "Vieux-Pères" Thierno, Abdel et Mamadou pour leurs conseils avisés qui continueront sans doute à guider en partie mes choix de vie et de carrière.

J'aimerais terminer en remerciant ma famille qui m'a aidé et soutenu tout au long de mon parcours scolaire et universitaire.

Table des matières

Remerciements vii

Introduction générale **1**

1 Le protoxyde d'azote dans l'atmosphère **7**

1.1 Le cycle de l'azote 7

1.1.1 La fixation de l'azote 8

1.1.2 La nitrification 9

1.1.3 La dénitrification 9

1.1.4 Impact de l'activité humaine 10

1.2 Sources et puits du protoxyde d'azote 12

1.2.1 Les émissions naturelles 12

1.2.2 Les émissions anthropiques 12

1.2.2.1 L'agriculture 12

1.2.2.2 L'industrie et la combustion fossile 13

1.2.2.3 Combustion de la biomasse 14

1.2.2.4 Dépôts atmosphériques, eaux usées et autres sources d'émissions anthropiques 14

1.2.3 Puits de protoxyde d'azote 15

1.2.4 Tendances d'émissions 15

1.3 Modélisation 18

1.3.1 Généralités 18

1.3.2 Le modèle LMDz-OR-INCA 21

1.3.3 Le modèle ACTM 24
1.4 conclusion 26

2 La télédétection spatiale de l'atmosphère 27
2.1 Physique de la mesure 27
2.1.1 Rayonnement électromagnétique 27
2.1.2 Interaction rayonnement-matière 28
2.1.3 Transfert radiatif 30
2.2 Les capteurs spatiaux 33
2.2.1 Généralités 33
2.2.2 Les interféromètres de Michelson 34
2.2.3 Le sondeur IASI 36
2.2.4 Le sondeur TANSO-FTS 40
2.3 Les modèles de transfert radiatif : le modèle RTTOV 42
2.4 L'inversion de mesures spatiales 43
2.4.1 Généralités 43
2.4.2 La méthode de l'estimation optimale 44
2.4.2.1 Sensibilité verticale 46
2.4.2.2 Bilan d'erreurs 46
2.4.2.3 Restitution simultanée de paramètres indépendants 48
2.5 Conclusion 49

3 Etude des processus d'émissions et de transport de N_2O entre l'Asie et la Méditerranée à partir des mesures du capteur spatial TANSO-FTS et des sorties du modèle LMDz-Or-INCA. 51
3.1 Résumé étendu de l'article 51
3.2 Article 1 54

4 Restitution des profils de N_2O à partir des observations du capteur spatial IASI 69
4.1 Résumé étendu de l'article 69

4.2 Article 2 71

5 Intercomparaison entre les capteurs IASI et IASI-NG pour la mesure du N_2O 106

5.1 Méthodologie 106

5.2 Sensibilité verticale 110

5.3 Facteurs de contamination sur l'estimation de N_2O 116

5.4 Caractérisation des erreurs 119

5.5 Comparaison des estimations à 303 hPa 122

5.6 Conclusions 125

Conclusion générale et perspectives 128

Appendices 143

A Les différents types de spectromètres 144

B Simulations théoriques 146

Introduction générale

Le protoxyde d'azote encore appelé oxyde nitreux est une molécule gazeuse composée d'un atome d'oxygène et de deux atomes d'azote : N_2O. Il s'agit d'un gaz incolore et ininflammable dont la planète Terre est la seule planète connue du système solaire à en contenir dans son atmosphère. Encore appelé « gaz hilarant », le protoxyde d'azote est utilisé comme anesthésiant en médecine dentaire et en chirurgie. Sa présence dans l'atmosphère terrestre est en partie liée à la présence de la vie sur terre. En effet, il est produit dans les surfaces terrestres et océaniques par des processus faisant intervenir des micro-organismes (procaryotes et eucaryotes). Comme nous le verrons au chapitre 1, il s'agit en fait d'un sous-produit du cycle biogéochimique naturel de l'azote. Cependant nous verrons également comment certaines activités humaines (l'agriculture, l'industrie, le transport, ...) peuvent contribuer à accentuer de façon directe et indirecte les émissions de N_2O.

Le protoxyde d'azote est essentiellement présent dans la troposphère où il agit comme un gaz à effet de serre. Il est même le troisième gaz à effet de serre d'origine anthropique en termes de forçage radiatif après le dioxyde de carbone (CO_2) et le méthane (CH_4) (Ciais et al., 2014). Notons cependant que le N_2O a un pouvoir de réchauffement global qui est égal à 265 fois celui du CO_2 sur une période d'un siècle. Par ailleurs, le N_2O est la principale source d'oxydes d'azote dans la stratosphère contribuant ainsi indirectement à la destruction de l'ozone (O_3) stratosphérique. Le suivi des concentrations globales de N_2O présente donc un intérêt majeur à la fois pour le climat et la surveillance de la couche d'ozone stratosphérique.

Après une prise de conscience globale de la nécessité de la protection de la couche d'ozone

stratosphérique, un protocole portant sur la suppression des substances destructrices de l'ozone (CFC, HCFC, Halons, Tétrachlorure de carbone ...) troposphérique est adopté le 16 septembre 1987 à Montréal : c'est le Protocole de Montréal. A ce jour, 191 pays l'ont ratifié lui conférant ainsi un caractère universel. Ce protocole a permis, entre autre, la suppression totale des CFCs et devrait permettre à la couche d'ozone stratosphérique de retrouver son état de 1980 au début de la seconde moitié du $21^{ème}$ siècle. Cependant, le N_2O n'étant pas pris en compte dans ce protocole, son augmentation couplée à la diminution des autres substances nocives pour l'ozone stratosphérique en a fait la première substance destructrice de la couche d'ozone stratosphérique émise au $21^{ème}$ siècle (Ravishankara et al., 2009).

Le N_2O est l'un des gaz à effet de serre réglementé par le protocole de Kyoto visant à réduire les émissions de ces gaz. Ce protocole, signé le 11 décembre 1997, visait à réduire sur la période 2008-2012 d'au moins 5% par rapport au niveau de 1990 les émissions globales de six gaz à effet de serre dont le N_2O. Malgré un relatif succès (les objectifs de réduction ont globalement été atteints par les pays signataires), cela ne s'est pas traduit par un infléchissement des tendances à l'augmentation des concentrations des gaz à effet de serre. En effet, les résultats obtenus sont en trompe-l'œil puisque seuls les pays européens ont réellement consenti des efforts visant à réduire leurs émissions. Dès lors, l'accord de Paris, entré en vigueur le 4 novembre 2016 et ratifié à ce jour par 147 pays représentant plus de 83% des émissions globales de gaz à effet de serre, se fixe un objectif plus ambitieux de limitation de l'augmentation de la moyenne globale de la température à 2°C par rapport au niveau préindustriel. A travers cet accord, les Etats signataires s'engagent également à mettre en œuvre des dispositifs de suivi des politiques et des efforts de réduction. D'où la nécessité de l'utilisation de cadastres d'émissions des gaz à effet de serre suffisamment précis à l'échelle régionale pour la réalisation de tels suivis. Comme nous le verrons au chapitre 1 de cette thèse, cela est loin d'être actuellement le cas en ce qui concerne les cadastres d'émission de N_2O avec des incertitudes sur les émissions anthropiques pouvant dépasser les 50% dans certains domaines d'activité.

A ce jour, pour l'estimation des émissions de N_2O aux échelles régionale et globale on utilise des mesures provenant de différents réseaux de stations de mesures au sol. En effet, des

mesures sont effectuées par des organismes telles que la NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) ou dans le cadre de projets internationaux comme c'est le cas pour les mesures NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) et AGAGE (Advanced Global Atmospheric Gases Experiment) (Ganesan et al., 2015). Ces stations de mesures bien que fournissant sur le long terme des données d'une grande fiabilité sont fortement limitées quant à leur couverture spatiale. Par ailleurs, il existe quelques campagnes de mesures ayant effectué des mesures de profils de N_2O sur une période bien définie et un espace géographique donné. On distingue notamment les campagnes HIPPO (High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations) (Wofsy, 2011; Wofsy et al., 2012) qui se sont déroulées sur l'océan Pacifique, l'Amérique du Nord et l'Australie et sur quatre périodes : HIPPO 1 (janvier 2009), HIPPO 2 (octobre–novembre 2009), HIPPO 3 (mars–avril 2010) et HIPPO 4 (juin-juillet 2011). On dispose également de mesures provenant de réseaux d'avions de ligne commerciaux tels que CONTRAIL (Comprehensive Observation Network for TRace gases by AirlLner) (Sawa et al., 2015) et CARIBIC (Civil Aircraft for the Regular Investigation of the atmosphere Based on an Instrument Container) (Assonov et al., 2013). Toutes ces sources de données supplémentaires sont limitées soit en couverture spatiale soit en résolution spatio-temporelle. La seule source de données qui permettrait de résoudre à la fois le problème de la couverture spatiale et de la résolution spatio-temporelle est la mesure depuis un satellite.

Contrairement à la mesure spatiale du N_2O dans la stratosphère, ou à la mesure spatiale des autres gaz à effet de serre comme le CH_4 et le CO_2, il existe très peu de mesures du N_2O troposphérique à partir de capteurs spatiaux. On dispose sur toute la période de mesure du capteur spatial européen IASI (à partir de 2006) et à l'échelle globale, de données de colonnes totales de N_2O restituées en utilisant un algorithme basé sur la technique des réseaux de neurones artificiels (Turquety et al., 2004). Bien qu'ayant fait leurs preuves quant à l'étude des variations spatio-temporelles du N_2O troposphérique (Ricaud et al., 2009), ce type de méthode ne permet pas une étude analytique des différentes composantes du bilan d'erreur sur l'estimation. On utilise donc souvent des algorithmes inspirés de la théorie de l'estimation optimale pour la restitution de concentrations d'espèces chimiques dans l'atmosphère à partir des mesures de

capteurs spatiaux. Ces algorithmes permettent en effet une bonne caractérisation des erreurs et fournissent également des outils d'analyse analytiques de la sensibilité verticale des estimations. Il existe quelques données de concentrations de N_2O restituées en utilisant de tels algorithmes. On dispose notamment pour le mois de juillet 2010 sur le bassin méditerranéen de colonnes totales de N_2O restituées avec une précision de 4% à partir de mesures interférométriques du capteur IASI (Infrared Atmospheric Sounder Interferometer) (Grieco et al., 2013). Des profils troposphériques de N_2O sont également restitués à l'échelle globale à partir des mesures du capteur spatial américain AIRS (Atmospheric InfraRed Sounder) opérationnel depuis 2002 (Xiong et al., 2014). L'estimation optimale est également utilisée pour restituer simultanément à l'échelle globale des profils de N_2O et de CH_4 à partir des mesures du capteur spatial japonais TANSO-FTS (Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation Fourier Transform Spectrometer) (Kangah et al., 2017) opérationnel depuis 2009.

Cette thèse s'inscrit dans le contexte du projet européen ChArMEx (Chemistry and Aerosol Mediterranean Experiment) qui a, entre autres, pour objectif d'étudier l'évolution temporelle des aérosols et des composés chimiques au-dessus du bassin méditerranéen. Dans le cadre de ce pojet, la campagne aéroportée GLAM (Gradient in Longitude of Atmospheric constituents above the Mediterranean basin), en août 2014, a permis d'effectuer des mesures de différents composés chimiques (O_3 , CO, CH_4 , CO_2) qui permirent d'étudier l'influence de l'environnement atmosphérique global et régional sur la composition chimique du bassin méditerranéen (Ricaud et al., 2017).
Cette thèse s'inscrit également dans le cadre d'une étude de phase 0 de l'entreprise Airbus Defence and Space dont le but est de définir une configuration instrumentale optimale pour la mesure du N_2O à partir d'une plateforme spatiale.

Nous présenterons dans le premier chapitre de cette thèse, les processus biogéochimiques à l'origine des émissions de N_2O dans l'atmosphère. Nous étudierons également les différentes sources d'émissions naturelles et anthropiques du N_2O. Nous présenterons ensuite les différents modèles de chimie atmosphérique utilisés au cours de cette thèse non sans avoir au préalable rappelé les principes généraux de la modélisation du N_2O atmosphérique.

Le second chapitre sera lui consacré à la présentation des principes théoriques qui sous-

tendent le sondage de l'atmosphère par des capteurs spatiaux. Nous présenterons également dans ce chapitre les différents capteurs dont les mesures furent utilisées au cours de cette thèse.

Dans le troisième chapitre, nous présenterons les résultats d'une étude sur l'impact des émissions estivales asiatiques de N_2O sur la variabilité spatio-temporelle du N_2O au-dessus du bassin méditerranéen. Cette étude ayant fait l'objet d'un article publié dans la revue JGR (Journal of Geophysical Research) (Kangah et al., 2017) s'appuie sur des estimations de N_2O à partir des mesures du capteur TANSO-FTS de la plateforme japonaise GOSAT et sur des champs de N_2O du modèle de chimie atmosphérique LMDz-Or-INCA.

Dans le quatrième chapitre, nous présenterons le système de restitution mis en place à partir des mesures du capteur spatial IASI. Il s'agira notamment d'en étudier la fiabilité à travers, d'une part, une validation en utilisant les mesures des campagnes HIPPO et, d'autre part, en analysant la cohérence scientifique des champs spatio-temporels de N_2O estimés. Cette étude fait l'objet d'un article en cours de soumission au journal AMT (Atmospheric Measurement Techniques).

Enfin, dans le cinquième chapitre, nous présenterons les résultats d'une intercomparaison théorique entre les performances du capteur IASI et du futur capteur IASI-NG pour la mesure du N_2O troposphérique. Il s'agira en fait d'étudier l'apport relatif de IASI-NG par rapport à IASI dans le cadre simplifié de l'approximation linéaire gaussienne de la théorie de l'estimation optimale.

Chapitre 1

Le protoxyde d'azote dans l'atmosphère

Dans ce chapitre, nous allons d'abord présenter les processus liés au cycle biogéochimique de l'azote et en particulier ceux qui sont directement à l'origine de l'apparition des molécules de protoxyde d'azote tout en discutant de l'impact de l'activité humaine sur ce cycle naturel. Nous allons ensuite présenter l'état actuel des connaissances concernant les émissions naturelles et anthropiques de protoxyde d'azote ainsi que les tendances passées et futures de ces émissions. Nous aborderons enfin les principes généraux de la modélisation en chimie de l'atmosphère et terminerons ce chapitre par une présentation des différents modèles utilisés au cours de cette thèse.

1.1 Le cycle de l'azote

Le cycle de l'azote est constitué de l'ensemble des processus naturels et anthropiques de transformation de l'azote atmosphérique (cf. Figure 1.1).

Dans cette section, nous nous attarderons sur le processus de fixation de l'azote atmosphérique ainsi que sur les processus de nitrification et de dénitrification. Nous verrons ensuite comment l'activité humaine impacte ce cycle biogéochimique naturel.

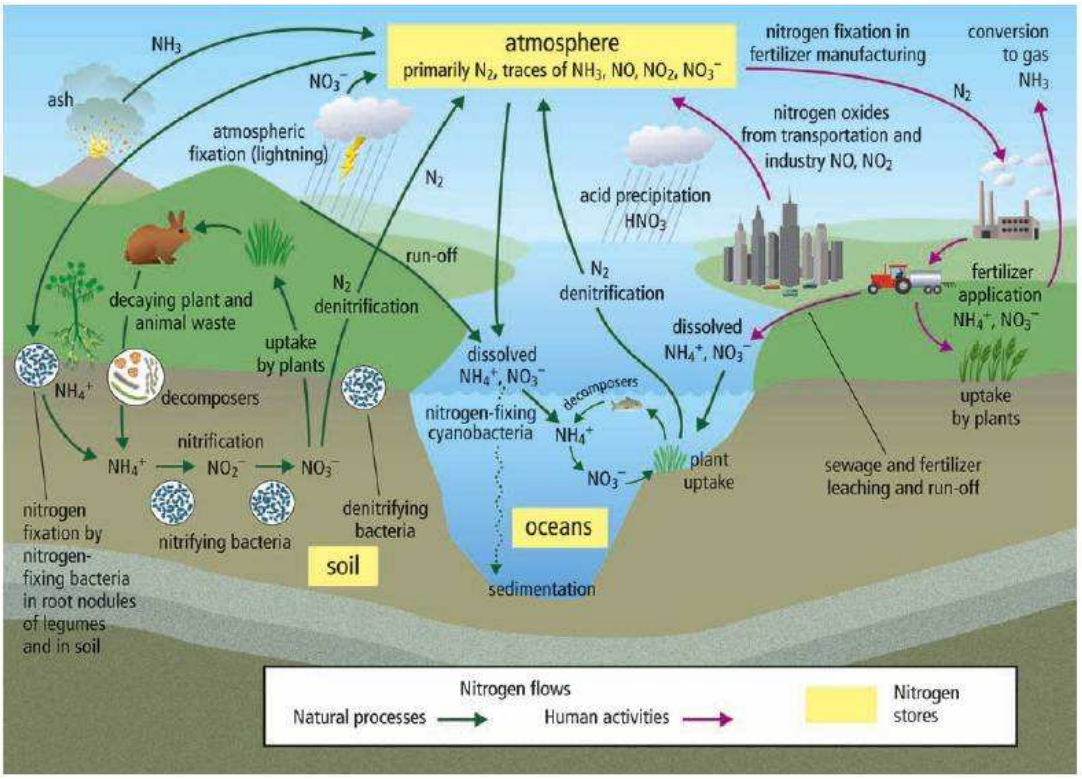


FIGURE 1.1 – Représentation schématique des différents processus du cycle de l'azote (D'après le site moodle.sd74.bc.ca)

1.1.1 La fixation de l'azote

L'atmosphère terrestre est composée à près de 80% de diazote (N_2). Cependant, l'azote est un facteur limitant de la production primaire dans plusieurs écosystèmes. Cela est dû au fait que les organismes vivants (plantes et animaux) ne peuvent directement utiliser l'azote sous sa forme moléculaire. La fixation de l'azote consiste donc en la transformation de l'azote moléculaire en azote assimilable par la biomasse. L'équation 1.1 présente le processus de transformation de l'azote moléculaire en ammoniac (NH_3). Étant donnée l'énergie requise pour rompre les liaisons atomiques de la molécule de N_2 (au moins 8 électrons impliqués), seuls certains groupes de micro-organismes appelés procaryotes sont impliqués dans le processus de fixation de l'azote moléculaire. Ces micro-organismes ont tous une enzyme appelée nitrogénase qui permet de catalyser la réduction du diazote en ammoniac. Il existe néanmoins quelques mécanismes abio-

tiques (non dépendants des êtres vivants) de fixation de l'azote comme les éclairs ou certains procédés industriels comme le procédé Haber-Bosch (Smil, 2004) ou encore la combustion de carburants fossiles.

$$N_2 + 8H^+ + 8e^- \longrightarrow 2NH_3 + H_2 \tag{1.1}$$

La fixation de l'azote par les micro-organismes peut se faire de manière autonome ou à travers des associations symbiotiques complexes impliquant les racines de certaines plantes (pois, graines de soja, trèfle...).

1.1.2 La nitrification

La nitrification est une autre étape importante du cycle de l'azote. Il s'agit de l'oxydation des produits de la fixation de l'azote (l'ion ammonium ou l'ammoniac) en nitrite (NO_2^-) puis en nitrate (NO_3^-)(Figure 1.2). Ce processus est exclusivement le fait des procaryotes et se déroule essentiellement en aérobie (en présence de dioxygène). Plusieurs études ont montré que le processus de nitrification peut entraîner la formation de NO et de N_2O même si la formation de ces gaz par nitrification reste un phénomène encore mal connu. Les organismes impliqués dans l'oxydation de l'ion ammonium jouent par ailleurs un rôle clé dans le traitement des eaux usées en permettant de réduire la quantité d'ammonium de ces eaux évitant ainsi une trop grande pollution des cours d'eau récepteurs.

1.1.3 La dénitrification

La dénitrification est l'étape qui permet la transformation de l'azote bio-utilisable en azote moléculaire par réduction de l'ion nitrate (cf. équation 1.2). Cette réduction peut entraîner la formation de composés intermédiaires tels que le NO ou le N_2O.

$$NO_3^- \longrightarrow NO_2^- \longrightarrow NO \longrightarrow N_2O \longrightarrow N_2 \tag{1.2}$$

Contrairement à la nitrification, ce processus se déroule essentiellement en anaérobie (ab-

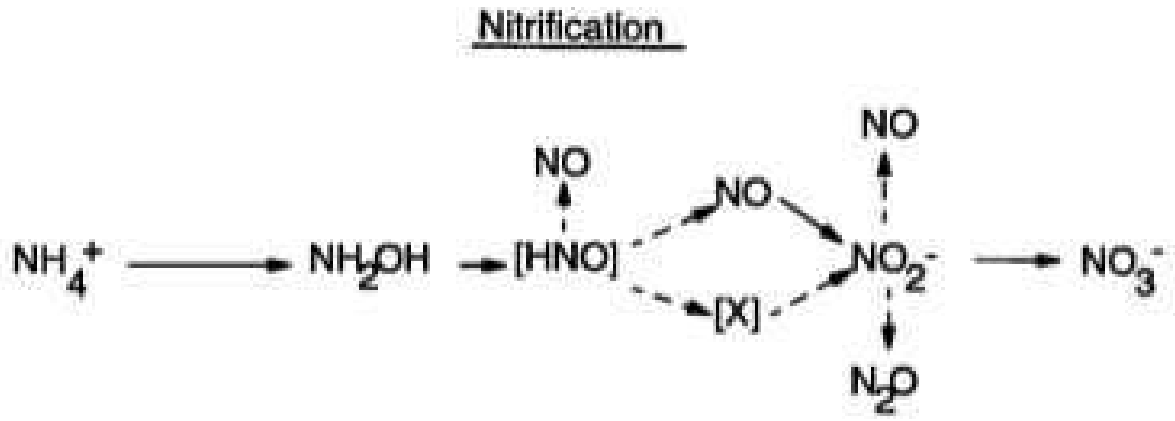


FIGURE 1.2 – Représentation schématique du processus de nitrification selon Parton et al. (1996). Les pointillés représentent les processus mal connus.

sence de dioxygène) voire en anoxie (absence totale d'oxygène). Diverses espèces de procaryotes ainsi que d'autres espèces de micro-organismes appelés eucaryotes sont responsables de la dénitrification (Risgaard-Petersen et al., 2006) qu'elles utilisent comme mode de respiration alternatif pour assouvir leurs besoins en oxygène. La dénitrification est également importante dans le traitement des eaux usées dans la mesure où elle permet d'en réduire le nitrate indésirable.

Après avoir défini les principaux processus qui constituent le cycle de l'azote, nous allons dans ce qui suit aborder à travers une analyse quantitative la question de l'impact de l'activité humaine sur ce cycle.

1.1.4 Impact de l'activité humaine

La fixation globale de l'azote moléculaire par les processus naturels est estimée à 203 Téragrammes d'azote par an ($TgN.an^{-1}$) (Fowler et al., 2013) avec $140 \pm 50\%$ TgN à travers les écosystèmes marins, $58 \pm 50\%$ TgN à travers les écosystèmes terrestres et $5 \pm 50\%$ TgN à travers

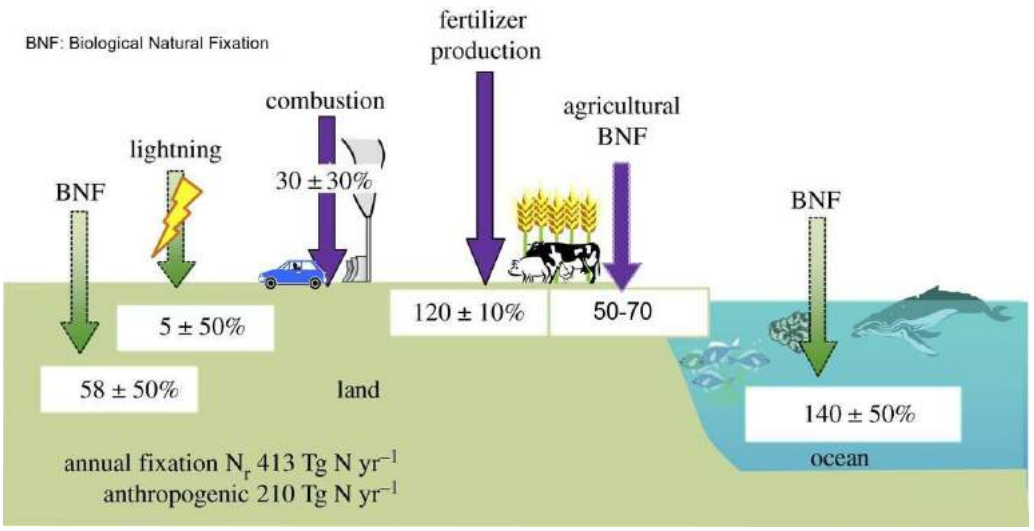


FIGURE 1.3 – Les différents processus (naturels et anthropiques) contribuant à la fixation de l'azote atmosphérique. Tiré et adapté de Fowler et al. (2013)

les processus liés aux éclairs. La fixation liée à l'activité humaine est estimée à 210 TgN.an^{-1} doublant ainsi la quantité totale d'azote moléculaire transformée en azote bio-utilisable (cf. Figure 1.3). L'activité agricole constitue la principale source anthropique de fixation de l'azote moléculaire. Ainsi, entre 50 et 70 TgN.an^{-1} (Herridge et al., 2008) provient de la fixation biologique par les plantes issues de l'agriculture tandis que l'utilisation du procédé Haber-Bosch pour la synthèse de NH_3 à partir de l'azote atmosphérique contribue à hauteur de 120 TgN.an^{-1} (Galloway et al., 2008). Le NH_3 ainsi synthétisé est principalement utilisé comme engrais. La combustion (carburants fossiles et biomasse) constitue une source anthropique supplémentaire de fixation d'azote atmosphérique à hauteur de 30 TgN.an^{-1} $\pm$ 30% (Fowler et al., 2013; van Vuuren et al., 2011).

Comme nous venons de le voir, le N_2O est produit essentiellement par les processus microbiens de nitrification et de dénitrification. Il s'agit donc d'un produit naturel du cycle global de l'azote. Cependant, l'activité humaine contribue à perturber de diverses manières ce cycle naturel entraînant ainsi une accélération de ces processus naturels et par conséquent une augmentation de la production des composés associés à ces processus dont le N_2O. Nous verrons

dans ce qui suit, les différentes sources d'émissions du N_2O ainsi que la tendance de ces émissions au cours de ces dernières décennies.

1.2 Sources et puits du protoxyde d'azote

1.2.1 Les émissions naturelles

Les émissions de protoxyde d'azote à l'échelle globale sont estimées à environ 18 TgN.an^{-1} (Solomon et al., 2007a; Syakila and Kroeze, 2011). La part des sources naturelles est évaluée entre 10 et 11 TgN.an^{-1} constituant ainsi entre 55 et 61% des émissions totales de N_2O. Entre 55 et 70% de ces émissions provient des surfaces continentales tandis que la contribution des océans constitue 30 à 40% des émissions naturelles. Le protoxyde d'azote est également produit naturellement par la chimie troposphérique et cette production constitue entre 6 et 10% des émissions naturelles de N_2O.

1.2.2 Les émissions anthropiques

1.2.2.1 L'agriculture

L'activité agricole constitue la plus large source d'émissions anthropiques de protoxyde d'azote (cf. Figure 1.4). Les émissions de N_2O liées à l'agriculture s'élèvent à plus de 4.1 TgN.an^{-1} (Bouwman et al., 2013; Syakila and Kroeze, 2011) soit plus de 66 % des émissions anthropiques de N_2O. On distingue d'une part, les émissions directes par les sols agricoles dues à l'utilisation des engrais azotés et autres fumiers organiques qui représentent plus des trois quarts des émissions liées à l'agriculture et d'autre part, les émissions indirectes essentiellement liées au lessivage et au ruissellement d'une partie de ces fertilisants. Le principal facteur responsable des émissions de N_2O liées à l'agriculture est l'inefficience dans l'utilisation des fertilisants. On estime en effet que près de la moitié de l'apport en azote aux sols agricoles, par l'application des engrais azotés, n'est pas assimilé par les plantes.

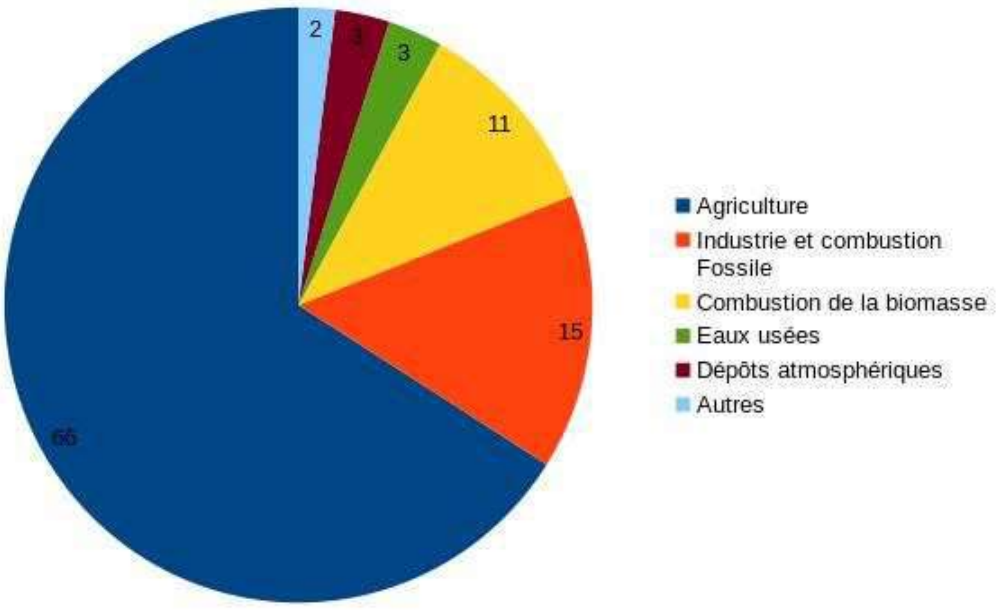


FIGURE 1.4 – Les contributions en pourcentage des différents secteurs d'activité aux émissions anthropiques de N_2O.

1.2.2.2 L'industrie et la combustion fossile

Les secteurs de l'industrie, de l'énergie et du transport constituent des sources importantes d'émissions de protoxyde d'azote. Ils représentent en effet, entre 10 et 15% des émissions anthropiques de N_2O. Lors de la combustion fossile, l'azote atmosphérique situé dans l'air environnant ainsi que l'azote organique des combustibles sont oxydés pour produire du protoxyde d'azote. La majorité de ces émissions sont dites stationnaires et sont le fait des centrales à charbon. Dans le secteur des transports, les émissions de N_2O sont dues à l'utilisation de catalyseurs pour contrôler les émissions de gaz d'échappements (NO_x et de monoxyde de carbone).
Le principaux processus industriels pouvant conduire à des émissions de N_2O sont liés à l'oxydation de composés azotés dans la production des acides nitriques et adipiques. L'acide nitrique est un ingrédient important dans la fabrication des fertilisants tandis que l'acide adipique est utilisé dans la fabrication de fibres synthétiques.

1.2.2.3 Combustion de la biomasse

La combustion de la biomasse est responsable d'environ 11% des émissions anthropiques de protoxyde d'azote. Au cours de la combustion, l'azote contenu dans les végétaux et dans l'air environnant est oxydé pour produire du protoxyde d'azote. Même si une partie des feux de forêts est initiée naturellement par la foudre, toutes les émissions liées aux feux de forêt sont considérées comme étant d'origine anthropique.

1.2.2.4 Dépôts atmosphériques, eaux usées et autres sources d'émissions anthropiques

Les émissions de protoxyde d'azote via les eaux usées représentent environ 3% des émissions anthropiques. Cette catégorie d'émission inclut aussi bien les émissions directes à travers les effluents que les émissions indirectes par les bioréacteurs servant à éliminer l'azote dans les eaux usées (Law et al., 2012). On estime aussi à environ 1% des émissions anthropiques, les émissions de protoxyde d'azote dues à l'aquaculture. Les composés azotés émis dans l'atmosphère par l'activité humaine peuvent se déposer sur les surfaces terrestres et océaniques stimulant ainsi l'activité microbienne de nitrification et de dénitrification. Ce dépôt atmosphérique de composés azotés peut donc entraîner des émissions supplémentaires de protoxyde d'azote. Les émissions de N_2O dans les océans dues à ces dépôts atmosphériques sont estimées à environ 3% des émissions anthropiques (Suntharalingam et al., 2000).

Notons néanmoins que ces estimations d'émission, à l'image des estimations des contributions des différentes activités humaines sur le processus de fixation de l'azote moléculaire, sont sujettes à de fortes incertitudes. On a effet près de 30% d'incertitude sur les émissions liées à l'agriculture, plus de 50% d'incertitude sur les émissions liées à la combustion de la biomasse et près de 40% d'incertitude sur les émissions liées à l'industrie et à la combustion fossile (Bouwman et al., 2013).

1.2.3 Puits de protoxyde d'azote

Le protoxyde d'azote est essentiellement détruit par pholotyse ($\sim 90\%$) dans la stratosphère (cf. eq 1.3). Cependant, une partie du N_2O stratosphérique restant réagit avec l'atome d'oxygène excité (cf. eq 1.4 et 1.5) O(^{1}D)(Minschwaner et al., 1993).

$$N_2O + h\nu \longrightarrow O(^1D) + N_2 \tag{1.3}$$

$$N_2O + O(^1D) \longrightarrow 2NO \tag{1.4}$$

$$N_2O + O(^1D) \longrightarrow N_2 + O_2 \tag{1.5}$$

De plus, la réaction 1.4 est la principale source de composés azotés de type NO_x dans la stratosphère contribuant ainsi indirectement à la destruction de l'ozone stratosphérique (Ravishankara et al., 2009). Il existe, par ailleurs un autre puits de N_2O à travers les sols et les océans. En effet, les bactéries dénitrifiantes sont capables de convertir directement le protoxyde d'azote en diazote. La plupart des études considèrent l'impact du puits terrestre et océanique de N_2O comme étant négligeable. Cependant, de récentes études ont montré la possibilité qu'une quantité non négligeable du protoxyde d'azote atmosphérique soit détruite par le mécanisme de dénitrification notamment à l'échelle nationale (Syakila et al., 2010).

1.2.4 Tendances d'émissions

La moyenne globale du rapport de mélange de protoxyde d'azote dans l'atmosphère a augmenté d'environ 20 % depuis l'époque préindustrielle, passant de 270 $\pm$ 7 partie par milliard (ppb ou ppbv) en 1750 à 324.2 ppb en 2011 (Ciais et al., 2014). Depuis le début des mesures de N_2O à la fin des années 1970, on enregistre une augmentation moyenne d'environ 0.75 ppb.an^{-1} (cf. Figure 1.5).

Cette augmentation est en grande partie due à l'utilisation de plus en plus généralisée des fertilisants agricoles synthétiques et organiques, notamment en Asie et en Amérique latine ces

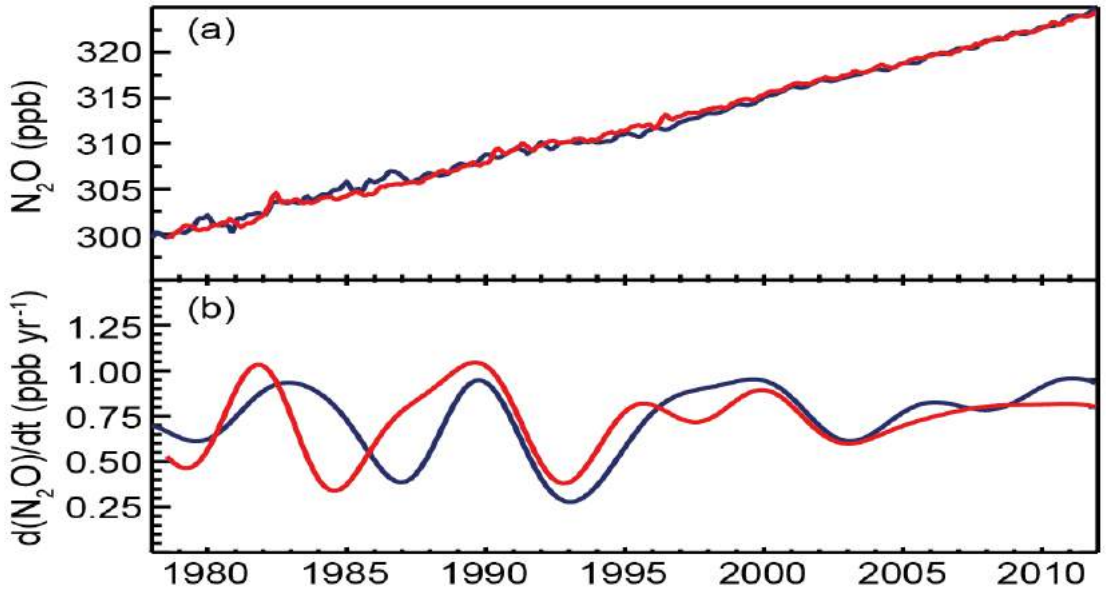


FIGURE 1.5 – En haut : moyennes globales du rapport de mélange de N_2O calculées à partir des bases de données AGAGE (rouge) et NOAA/ESRL/GMD (bleue). En bas : taux d'augmentation des moyennes globales de rapport de mélange. D'après Ciais et al. (2014).

deux dernières décennies (cf. Figure 1.6).

Les RCPs (Representative Concentration Pathways) sont des scénarios d'émission de gaz à effet de serre permettant d'atteindre des valeurs de forçage radiatif anthropiques allant de 2.6 W/m^2 (pour le scénario le plus optimiste) à 8.5 W/m^2 (pour le scénario le plus pessimiste) à l'horizon 2100. Contrairement au méthane et au dioxyde de carbone, la concentration de protoxyde d'azote dans l'atmosphère ne diminuerait pas même dans le scénario le plus optimiste (cf. Figure 1.7). Ainsi, d'après ces scénarios, même en cas d'efforts concertés et accrus à l'échelle internationale pour la réduction des gaz à effets de serre, la concentration de protoxyde d'azote devrait au mieux se stabiliser.

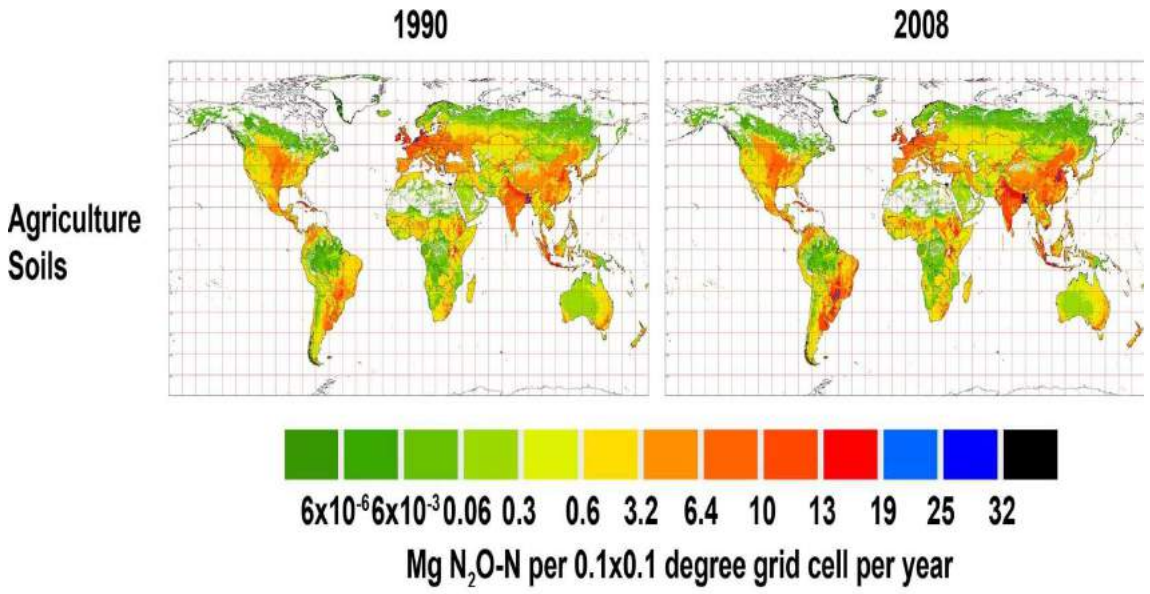


FIGURE 1.6 – Emissions globales de N_2O par les sols agricoles calculées à partir de la base de données EDGAR (Emissions Database for Global Atmospheric Research). D'après Bouwman et al. (2013).

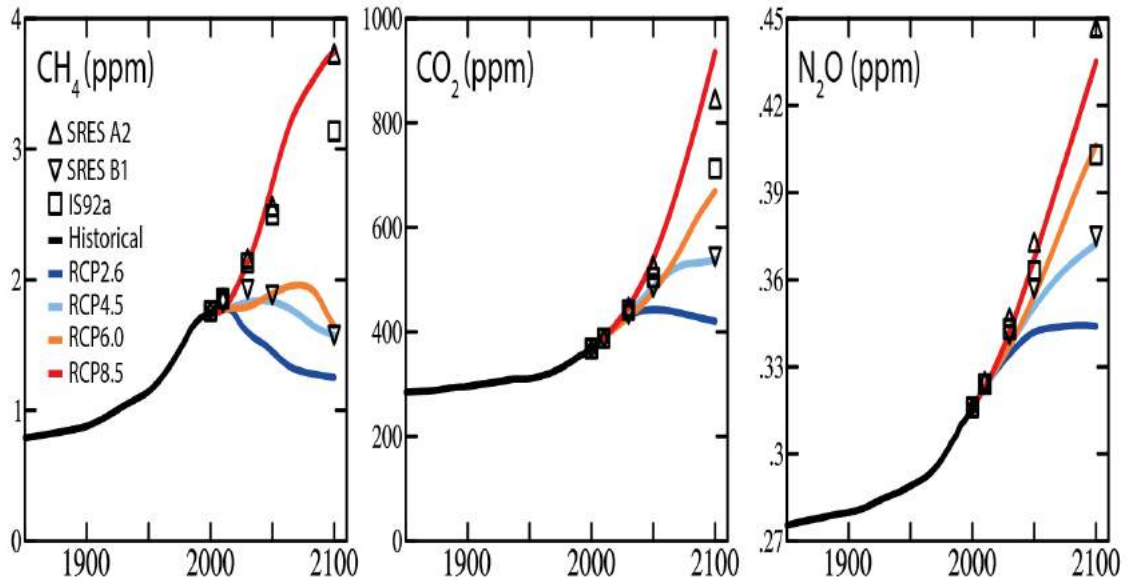


FIGURE 1.7 – Evolution temporelle passée et future de la moyenne globale du rapport de mélange de protoxyde d'azote d'après les différents RCPs : RCP2.6 (bleu), RCP4.5 (bleu clair), RCP6.0 (orange), RCP8.5 (rouge). D'après IPCC (2014).

1.3 Modélisation

1.3.1 Généralités

Les modèles de Chimie-Transport aussi appelés CTMs (Chemistry Transport Model) donnent une représentation mathématique de l'état de l'art des connaissances des processus qui déterminent la composition chimique de l'atmosphère (cf. Figure 1.8). En effet, ils simulent les différents processus de transport, de réaction chimique, d'émissions et de dépôt en utilisant des données météorologiques en entrée pour, in fine, décrire les variations spatio-temporelles de la composition chimique de l'atmosphère. Il s'agit concrètement de résoudre l'équation dite de continuité dont la forme générale est la suivante :

$$\frac{dC}{dt} = S + \sum_{process_i} \frac{dC}{dt}_{process_i} \tag{1.6}$$

où C est la concentration atmosphérique de l'espèce chimique ; process$_i$, le processus physique où chimique qui génère des variations de C et S l'ensemble des sources d'émissions de l'espèce chimique. Il existe deux approches principales pour la résolution numérique de l'équation de continuité :

— une approche dite Lagrangienne qui suit l'évolution d'une parcelle d'air dans l'espace et dans le temps ;

— une approche dite Eulérienne qui suit l'évolution temporelle de la composition chimique d'un domaine d'étude fixe.

La plupart des modèles de circulation générale et de chimie-transport utilisent un schéma mixte dit semi-Lagrangien (Williamson and Rasch, 1989).

Modéliser le protoxyde d'azote dans l'atmosphère revient en général à :

— déterminer la répartition spatio-temporelle des sources d'émission de protoxyde d'azote ;

— déterminer les variations de concentrations dues aux processus de transport (advection et diffusion) ;

— déterminer les pertes de N_2O dues à la photochimie (cf. eq 1.3)

— déterminer les pertes de N_2O dues à la réaction avec l'atome d'oxygène excité (cf. eq 1.4 et eq 1.5)

Les CTMs ont divers applications. Ils sont communément utilisés pour interpréter les observations de composition chimique atmosphérique à la lumière de la compréhension que l'on a des processus modélisés. Ils permettent ainsi de dégager des bilans d'émissions globales et régionales, jetant les bases pour l'élaboration de scénarios d'émissions dans des cadres de projections futures. Ils peuvent être aussi utilisés, et nous le verrons dans la suite de ce document, comme information a priori dans la restitution de constituants chimiques à partir d'observations spatiales. Dans une approche de modélisation inverse, ces modèles peuvent également servir à contraindre les flux d'émissions de surface à partir d'observations spatiales. Une des applications de ces modèles est l'assimilation de données chimiques qui consiste en l'intégration d'un vaste ensemble d'observations dans ces modèles permettant ainsi une description optimale de la composition chimique de l'atmosphère.
Dans ce qui suit , nous présenterons les CTMs utilisés dans le cadre de cette thèse : LMDz-OR-INCA et ACTM.

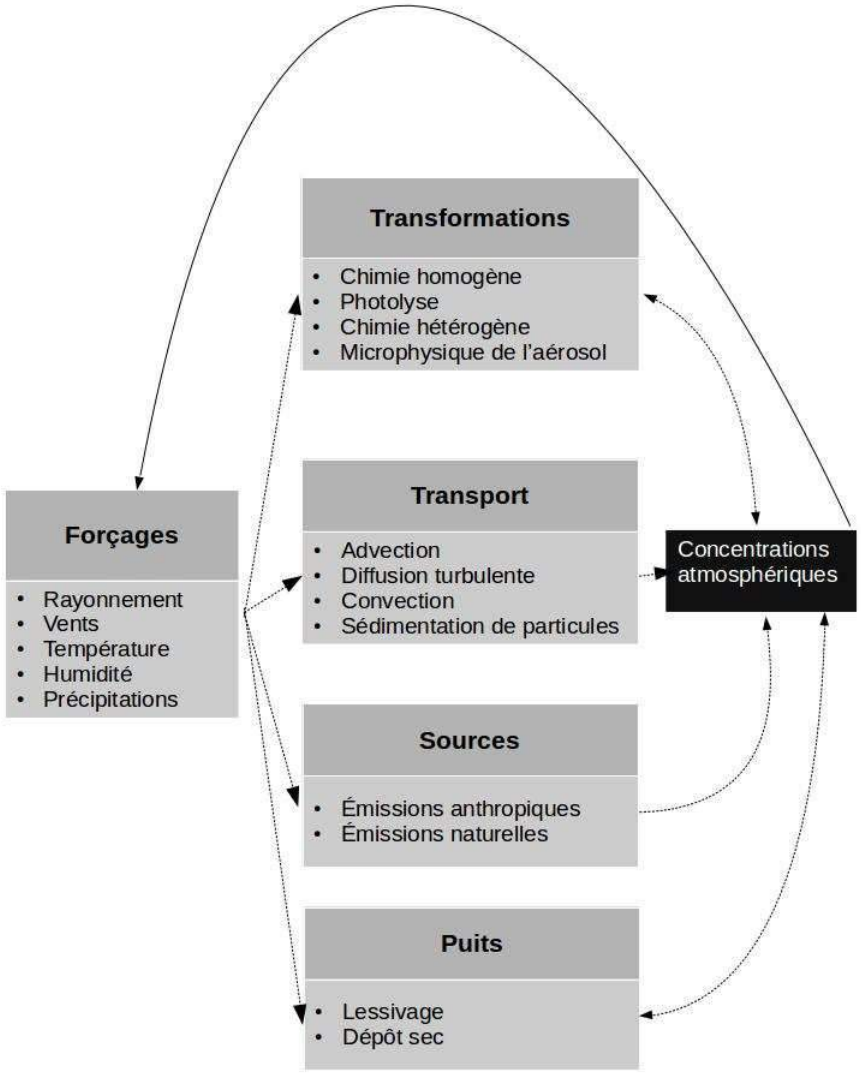


FIGURE 1.8 – Principaux processus impliquées dans l'évolution spatiale et temporelle des distributions d'espèces chimiques dans l'atmosphère d'après Delmas et al. (2005). Les flèches à double-sens indiquent que la quantification des transformations et des puits nécessite la prise en compte des concentrations des espèces.

1.3.2 Le modèle LMDz-OR-INCA

Le modèle de chimie-transport LMDz-Or-INCA est constitué du modèle chimique INCA (INteraction between Chemistry and Aerosol), du modèle de circulation générale LMDz et du modèle de végétation ORCHIDEE (Organizing Carbon and Hydrology in Dynamic Ecosystems). LMDz est un modèle de circulation générale développé par le Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD) à partir des années 1970 (http ://lmdz.lmd.jussieu.fr) et qui permet de simuler la dynamique de l'atmosphère terrestre mais aussi celle d'autres planètes telles que Mars, Venus, Titan etc. La version terrestre de LMDz constitue la partie atmosphérique du "Modèle intégré de climat" de l'Institut Pierre Simon Laplace (IPSL) qui permet d'investiguer l'évolution future du climat. Il s'agit donc d'un modèle de recherche développé principalement pour des applications dans le domaine du climat mais qui a aussi une version dite "zoomée" qui permet des applications en mode semi-opérationnelle comme le transport de polluants. Le couplage LMDz-INCA (http ://www-lsceinca.cea.fr) permet de simuler la chimie troposphérique de l'ozone, le transport et la distribution des gaz à effet de serre à longue durée de vie ainsi que la chimie de plusieurs types d'aérosols. Le couplage de LMDz-INCA avec le modèle de végétation ORCHIDEE permet d'intégrer aux simulations les échanges d'énergie et d'humidité entre le sol et l'atmosphère. Le modèle LMDz-OR-INCA est constitué de 39 niveaux verticaux en coordonnées hybrides σ-p. Il existe plusieurs résolutions horizontales du modèle LMDz-Or-INCA. Nous avons au cours de nos travaux utiliser 2 versions différentes du modèle : une version dite basse résolution (LMDz-Or-INCA Low res) avec une résolution horizontale de 3.75° de longitude $\times$ 1.9° de latitude et une version standard de résolution horizontale de 2.5 ° de longitude $\times$ 1.3° de latitude. Outre les résolutions horizontales, les deux versions du modèle utilisent des sources d'émissions différentes, la version standard utilisant des données d'émissions plus récentes que la version basse résolution. En effet, les données d'émissions naturelles et anthropiques de LMDz-Or-INCA sont respectivement issues des travaux de Bouwman et al. (2002) et de la version 4.1 de la base de données EDGAR (ftp ://cidportal.jrc.ec.europa.eu/jrc-opendata/EDGAR/datasets/v41/) . Quant à la version basse résolution, les données d'émissions à la fois naturelles et anthropiques sont issues des travaux de Bouwman and Taylor (1996). De plus, les émissions issues de la combustion de la biomasse de LMDz-Or-INCA et LMDz-Or-

INCA Low res proviennent respectivement des versions 4 et 3 de la base de données GFED (Global Fire Emissions Database) (Giglio et al., 2013; van der Werf et al., 2010). Ainsi, LMDz-Or-INCA a un flux annuel d'émission globale de protoxyde d'azote plus élevé que LMDz-Or-INCA Low res (16.08 TgN.an^{-1} contre 13.27 TgN.an^{-1}) et plus particulièrement dans les zones de fortes émissions estivales de l'est asiatique et d'Inde (Cf. Figure 1.9). Le schéma utilisé pour la résolution numérique est le schéma semi-Lagrangien. Concernant les puits de protoxyde d'azote, en plus de la perte due à la photolyse ($\sim$ 90%), les taux de destruction du protoxyde d'azote dans la stratosphère dus aux réactions 1.4 et 1.5 ont été fixés respectivement à 6.7×10^{-11} cm^3.molécule^{-1}.s^{-1} et 4.4×10^{-11} cm^3.molécule^{-1}.s^{-1} (Thompson et al., 2014). Le temps de vie du protoxyde d'azote dans ce modèle est compris entre 124 et 130 ans.
Les simulations utilisées dans notre étude ont été réalisées en mode dit "guidé". Elles ont été en effet réalisées à partir de forçages météorologiques extérieurs au modèle et provenant d'analyses du Centre Européen pour les Prévisions Météorologiques à Moyen Terme (CEPMMT). Il est à noter également que les sorties du modèle LMDz-Or-INCA que nous avons utilisées représentent des moyennes mensuelles de rapport de mélange de protoxyde d'azote à l'échelle globale.

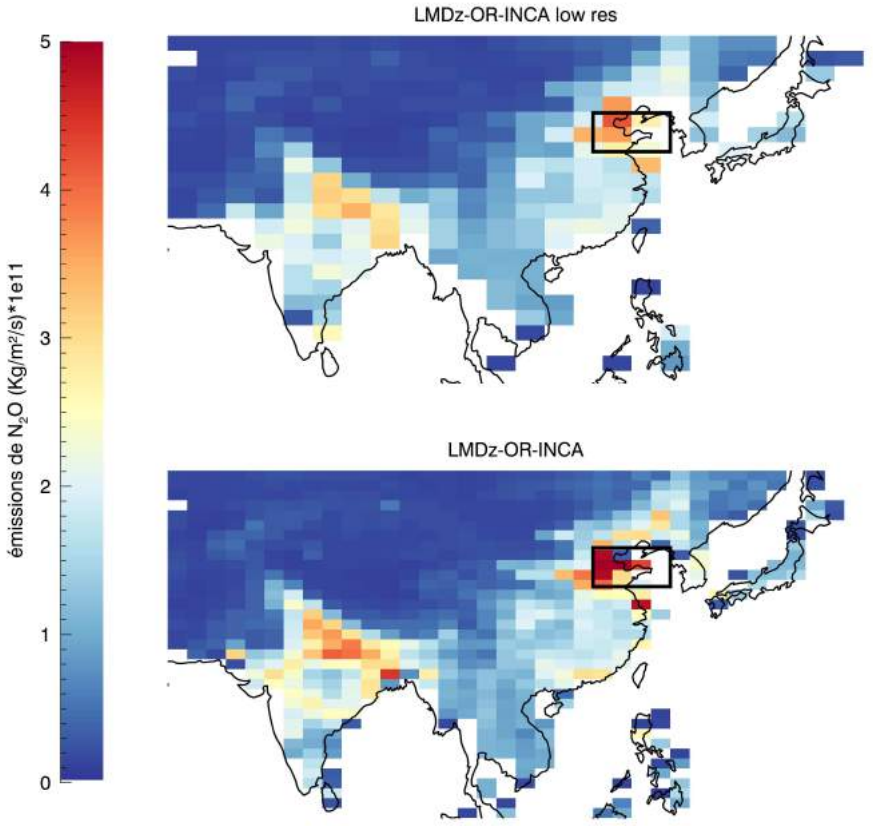


FIGURE 1.9 – Flux d'émission de N_2O en juillet sur l'Asie des deux versions LMDz-Or-INCA low res (en haut) et LMDz-Or-INCA (en bas). Le rectangle représente la région utilisée dans l'exemple de la section 1.3.3.

1.3.3 Le modèle ACTM

Le modèle de chimie-transport ACTM (Atmospheric general circulation model-based Chemistry-Transport Model) a été développé conjointement par trois organismes japonais : le CCSR (Center for Climate System Research), le NIES (National Institute for Environmental Studies) et le FRCGC (Frontier Research Center for Global Change). Il est constitué d'une partie dynamique (AGCM) en interaction avec des modules de chimie atmosphérique et d'aérosols (Developers, 2004). Le modèle est utilisé avec une résolution horizontale de $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ sur 67 niveaux verticaux en coordonnées σ-p [Patra et al., 2009]. Les émissions anthropiques de N_2O sont issues de la version 4.2 de la base de données EDGAR (http ://edgar.jrc.ec.europa.eu/overview.php ?v=42) tandis que les émissions naturelles des sols sont issues des travaux de Bouwman et al. (1995). Les émissions océaniques sont tirées de Nevison et al. (1995). Le flux d'émission globale utilisé dans ACTM s'élève ainsi à 18 TgN.an^{-1} pour l'année 2009 avec un taux d'augmentation de 6 à 8 TgN.an^{-1} sur la période 1980-2009 (Xiong et al., 2014). Le schéma numérique utilisé est le schéma semi-Lagrangien et les taux de destruction du protoxyde d'azote dans la stratosphère dus aux réactions 1.4 et 1.5 ont été fixés respectivement à $6.7 \times 10^{-11} \times \exp(20/T)$ cm^3.molécule^{-1}.s^{-1} et $4.4 \times 10^{-11} \times \exp(20/T)$ cm^3.molécule^{-1}.s^{-1}, où T est la température de l'air pour chaque grille du modèle (Ishijima et al., 2010). La version du modèle utilisée dans nos travaux représente les rapports de mélange de protoxyde d'azote à l'échelle globale avec une résolution temporelle de 3 heures. Elle permet donc entre autres de suivre l'évolution journalière du protoxyde d'azote au dessus d'une région donnée (cf. 1.10).

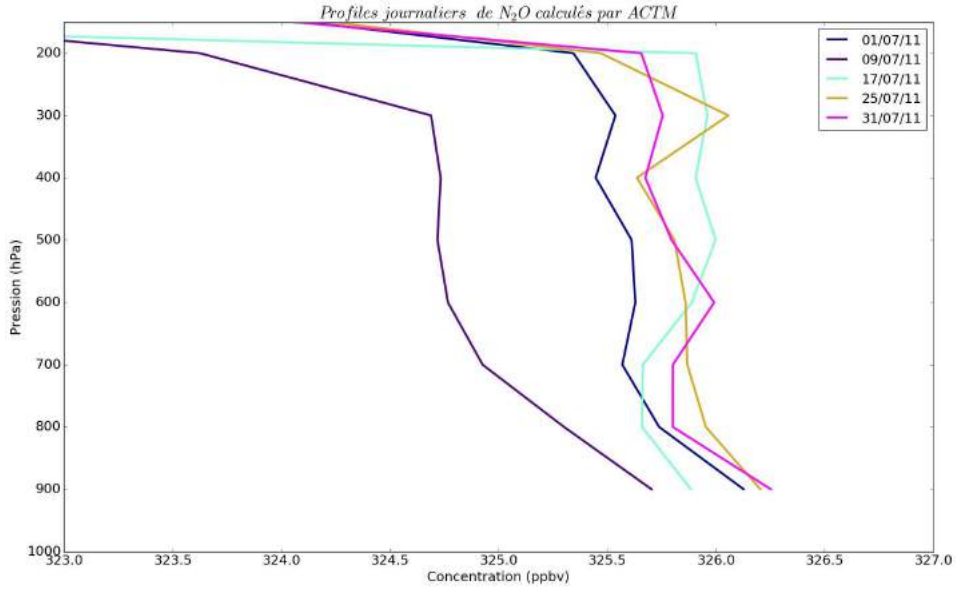


FIGURE 1.10 – Variations du profil de N_2O au cours du mois de juillet 2011 dans le nord-est de la Chine (voir rectangle de la figure 1.9) calculées par le modèle ACTM.

1.4 conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre que le protoxyde d'azote était un produit naturel du cycle de l'azote produit essentiellement dans les surfaces océaniques et continentales par les processus microbiens de nitrification et de dénitrification. En plus de son principal puits dans l'atmosphère qui est sa destruction photolytique dans la stratosphère, il est également, par le biais de sa réaction avec l'atome d'oxygène excité, la principale source d'oxyde d'azote de type NO_x dans la stratosphère. L'activité humaine, par le bais principalement de l'utilisation des engrais azotés, contribue de manière significative à l'augmentation des émissions de protoxyde d'azote. Ainsi, les émissions anthropiques de N_2O représentent entre 40 et 45 % du total des émissions et sont dominées par l'agriculture qui représente plus de 66% de ces émissions. De plus, du fait de l'utilisation de plus en plus accrue des engrais azotés notamment dans les pays émergents (Chine, Inde, Amérique Latine), on observe une augmentation des émissions de protoxyde d'azote ces dernières décennies avec une augmentation moyenne de 0.75 ppb.an^{-1} depuis 1970. Nous avons finalement présenté les deux modèles de chimie-transport utilisés dans le cadre de cette thèse : LMdz-Or-INCA et ACTM.

Dans la suite de ce manuscrit, nous allons aborder les aspects techniques et scientifiques des mesures spatiales de protoxyde d'azote non sans avoir au préalable posé les bases théoriques de la mesure des concentrations d'espèces chimiques à l'aide de capteurs spatiaux.

Chapitre 2

La télédétection spatiale de l'atmosphère

Dans ce chapitre, nous allons dans un premier temps aborder les aspects théoriques concernant le rayonnement électromagnétique ainsi que son interaction avec la matière. Nous allons ensuite présenter les différents instruments spatiaux ainsi que l'outil de transfert radiatif utilisés au cours de cette thèse. Pour finir, nous poserons les bases théoriques de l'inversion de mesures spatiales.

2.1 Physique de la mesure

2.1.1 Rayonnement électromagnétique

Le rayonnement électromagnétique est constitué d'une superposition d'ondes électromagnétiques. Ces ondes sont associées au déplacement et aux vibrations du champ électromagnétique correspondant ainsi à un transport d'énergie ou de quanta d'énergie aussi appelés photons. Les ondes électromagnétiques permettent la propagation de l'énergie à très grande distance du fait de la conservation du flux d'énergie sur toute surface entourant la source. Les ondes électromagnétiques ont une grande diversité énergétique (ou spectrale) qu'on peut diviser en plusieurs domaines : γ, X , ultraviolet (UV), visible, infrarouge (IR), micro-ondes, radio (cf. Figure 2.1).

On caractérise généralement le rayonnement électromagnétique par sa répartition en fonction de la fréquence ou de la longueur d'onde (spectre), de la polarisation (liée à la direction du

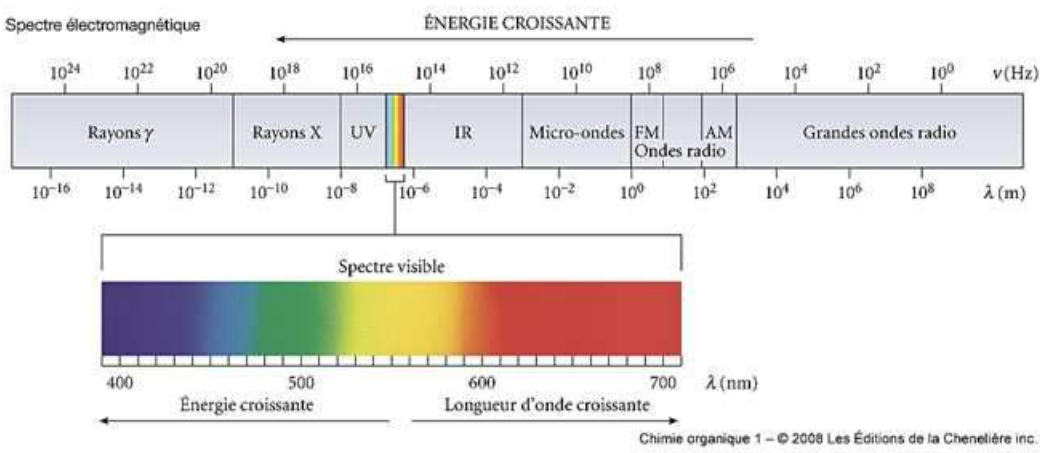


FIGURE 2.1 – Les différents domaines du spectre élecromagnétique.

champ électrique) et de la cohérence spatiale et temporelle. Le rayonnement électromagnétique est utilisé dans différents domaines. Ainsi en télécommunication, les modulations des ondes électromagnétiques sont utilisées pour transporter de l'information numérique ou analogique à très grande distance. Nous nous intéressons à l'application de l'étude du rayonnement au domaine de la télédétection c'est-à-dire à l'observation de la Terre depuis l'espace. En effet, le rayonnement observé depuis l'espace est caractérisé par les processus d'émissions de la source ainsi que par les interactions avec les milieux biophysiques et chimiques rencontrés au cours du trajet. L'étude de ces interactions ainsi que l'analyse du rayonnement observé permettent de remonter aux propriétés physiques de la source et des milieux traversés.

2.1.2 Interaction rayonnement-matière

Un corps en équilibre thermodynamique avec son rayonnement émet un rayonnement qui obéit à la loi de rayonnement dite du corps noir ou loi de Planck : les rayonnements absorbés et émis par un corps noir sont égaux à toutes les longueurs d'onde et ne dépendent que de sa température. La répartition spectrale du rayonnement du corps noir est donnée par :

$$B_\lambda(T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5(e^{\frac{hc}{\lambda kT}} - 1)} \tag{2.1}$$

où B_λ est la luminance spectrale (aussi appelée radiance) du corps noir et est exprimée en Watts.mètres^2.stéradian^{-1}.mètres^{-1} ($W.m^2.sr^{-1}.m^{-1}$) ;
T est la température du corps en Kelvin (K) ;
h=6.6256 10^{-34} Joules.Secondes (J.s), la constante de Planck ;
c=3 10^8 $m.s^{-1}$, la vitesse de la lumière dans le vide ;
k=1.3806488 10^{-23} J.K^{-1}, la constante de Boltzmann.

Les corps réels ne sont en général pas des corps noirs. Ainsi, on définit la température de brillance d'un corps réel à une longueur d'onde donnée comme étant la température d'un corps noir qui rayonnerait la même énergie que le corps à cette même longueur d'onde.

L'une des applications de la loi de Planck est la loi de Wien qui permet de relier la longueur d'onde du maximum d'émission à la température du corps noir :

$$\lambda_{max} T = 2898 \mu m.K \tag{2.2}$$

Le soleil qui rayonne presque comme un corps noir (cf. Figure 2.2) a son maximum d'émission dans le visible à $\sim$ 0.5 μm et a une température de surface $\approx$ 5900 K. Quant à la Terre, avec une température entre 270 et 300 K, elle a son maximum d'émission dans l'infrarouge thermique entre 10 et 15 μm. Tout rayonnement émis réagit avec les différents milieux traversés. Il est ainsi atténué par absorption et/ou par diffusion. Le niveau d'extinction représenté généralement par un coefficient d'extinction (coefficient d'absorption + coefficient de diffusion) dépend des caractéristiques du rayonnement et du milieu. Ainsi, le rayonnement solaire reçu à la surface de la mer diffère du rayonnement reçu au sommet de l'atmosphère du fait de ces processus d'extinction. De même, le rayonnement terrestre reçu au sommet de l'atmosphère diffère du rayonnement émis en surface du fait entre autres de son interaction avec les particules et les constituants gazeux de l'atmosphère. L'interaction du rayonnement et des gaz dépend du domaine spectral. Lorsqu'on mesure le rayonnement observé d'une source moléculaire ou atomique, on observe un fond continu du rayonnement représentant le rayonnement de corps noir de la source sur lequel se superpose des raies, soient plus intenses (émission), soit moins

intenses (absorption). Ces raies sont en fait dues au passage d'un niveau d'énergie à un autre de la molécule qui se traduit par l'émission ou l'absorption d'un photon d'énergie. La largeur des raies dépend des paramètres environnementaux (température, pression ...) ce qui peut donner une bande d'absorption atmosphérique (cf. Figure 2.3). L'étude des spectres des différentes molécules absorbantes de l'atmosphère constitue la base de la télédétection de la composition chimique de l'atmosphère.

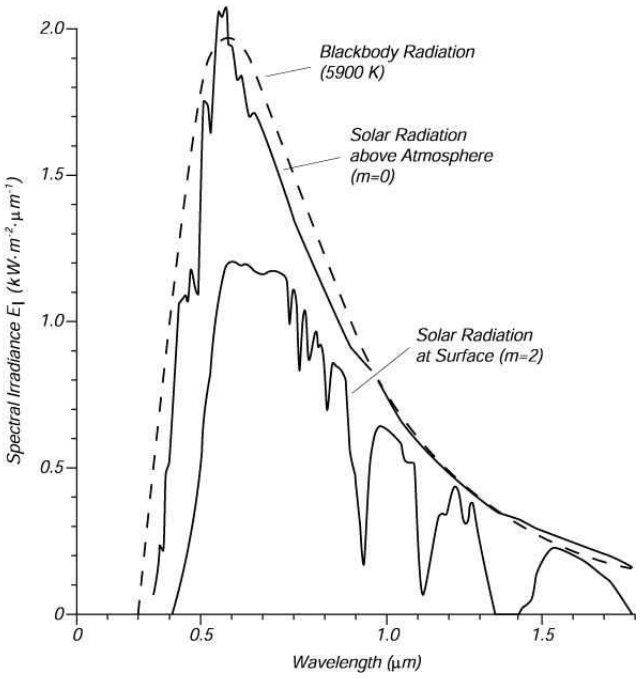


FIGURE 2.2 – Rayonnment d'un corps noir à une température de 5900 K superposé aux rayonnments solaire au sommet de l'atmosphère et à la surface de la Terre. Tirée de Stewart (1985)

2.1.3 Transfert radiatif

Nous avons posé les bases théoriques qui régissent les processus de rayonnement. La combinaison de tous ces processus permettent de déterminer la variation spatiale de la luminance dans un milieu : c'est l'objet du transfert radiatif. Sous sa forme générale, l'équation de transfert

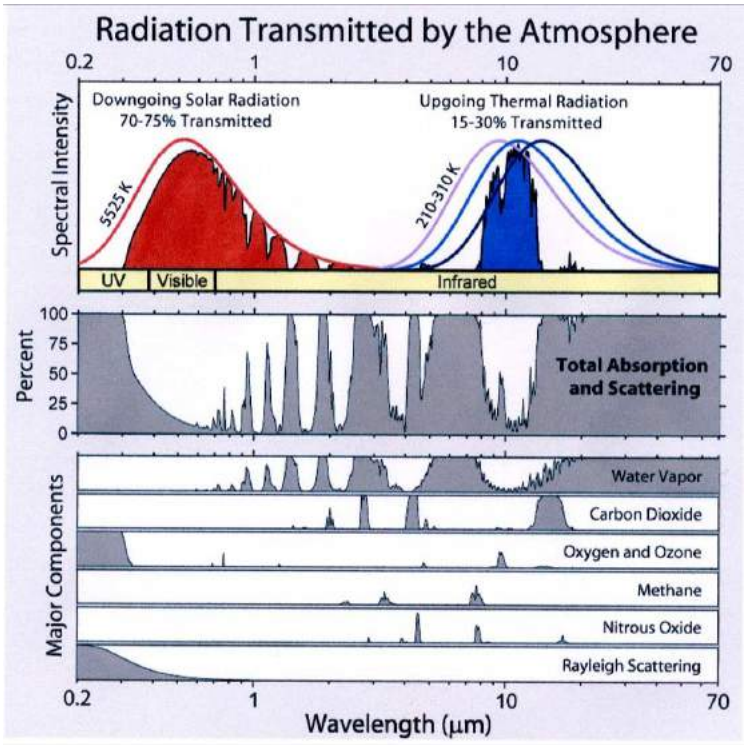


FIGURE 2.3 – En haut, les rayonnments solaire (rouge) et infrarouge terrestre (bleu) transmis respectivement à la surface terrestre et au sommet de l'atmosphère ; au milieu le coefficient d'extinction (coeffcicient d'absorption + coefficient de diffusion) en pourcentage ; en bas, les différents contributeurs à l'extinction (absorption gazeuse et diffusion de Rayleigh). © Barrett Bellamy Climate

radiatif (ETR) est la suivante :

$$\frac{dL_\lambda(s)}{ds} = -(\sigma_\lambda^{abs}(s)+\sigma_\lambda^{diff}(s))L_\lambda(s)+\epsilon_\lambda(s)B_\lambda(T)+\frac{\sigma_\lambda^{diff}(s)}{4\pi}\int_{4\pi} P(\Omega' \rightarrow \Omega)L_\lambda(s)d\Omega' \quad (2.3)$$

où s est une variable d'espace et L la luminance ;

$\sigma_\lambda^{abs}(s)$, $\sigma_\lambda^{diff}(s)$, $\epsilon_\lambda(s)$ sont respectivement les coefficients d'absorption, de diffusion et l'émissivité à la longueur d'onde λ et au point s ;

$P(\Omega' \rightarrow \Omega)$ est la probabilité qu'un photon arrivant de la direction d'angle solide Ω' soit diffusé dans la direction d'angle solide Ω.

L'ETR lie ainsi la variation de la luminance à des facteurs de gain dépendant de l'émissivité du

milieu et de la diffusion bi-directionnelle ainsi qu'à des facteurs de perte dépendant de l'absorption et de la diffusion du milieu.

L'étude des raies d'absorption des gaz atmosphériques est capitale pour la détermination du coefficient d'absorption. L'absorption d'une onde de fréquence ν_{ij} par une molécule gazeuse d'énergie interne E_i entraîne un passage au niveau d'énergie E_j ce qui correspond à une augmentation de son énergie interne de $\Delta E_{ij} = h\nu_{ij}$. L'ensemble des raies spectrales de fréquence ν_{ij} constitue le spectre de raies de la molécule. Les raies ont une largeur naturelles et peuvent être élargies par des facteurs environnementaux. Les transitions d'énergie sont générées par différents mécanismes (vibrations, rotations ...). Dans l'infrarouge, les transitions d'énergie correspondent à des phénomènes de vibration sur des états rotationnels excités : on parle alors de spectre de vibration-rotation. Le principe du calcul dit raies-par-raies imposent la prise en compte de toutes les transitions énergétiques contribuant au signal observé. Le coefficient d'absorption s'écrit alors :

$$\alpha_\nu(s) = \sum_m \sum_t N^m(s) k^m_{\nu_t}(T(s)) \Phi(\nu - \nu_t, P(s), T(s)) \tag{2.4}$$

où s, T et P sont respectivement la variable d'espace, la pression et la température ;
$N^m(s)$, la concentration moléculaire de la molécule m en s ;
$k^m_{\nu_t}(T(s))$, l'intensité de la raie de fréquence ν correspondant à la transition t ;
$\Phi(\nu - \nu_t, P(s), T(s))$, le profil de raie normalisé correspondant à la transition t.

L'émission atmosphérique dépend de l'émissivité des gaz atmosphériques ainsi que de leur densité et température. D'après la loi de Kirchhoff, à l'équilibre thermodynamique local (qui est globalement valide dans l'atmosphère), on a $\epsilon = \sigma^{abs}$. Ainsi, l'atmosphère n'émet qu'aux fréquences correspondant à ses bandes d'absorption.

Le coefficient de diffusion dépend du rapport longueur d'onde/taille des particules. Ainsi, pour des particules de tailles très petites devant λ, on a une diffusion dite de Rayleigh. Il s'agit du mode de diffusion des gaz. Ce mode de diffusion implique une décroissance en λ^{-4} du coefficient de diffusion. La diffusion gazeuse est donc souvent négligée au-delà de $1\mu m$. Le coefficient de diffusion des aérosols varie en $\lambda^{-\beta}$ avec β compris entre 0 et 4 selon la taille

des particules. Ainsi, β étant inversement proportionnel à la taille des particules, un aérosol de petite taille diffuse plus à une longueur d'onde donnée qu'un aérosol de taille plus grande.
Dans l'infrarouge thermique, en l'absence d'aérosols (une hypothèse souvent utilisée), l'ETR est souvent approximée en ne considérant que les phénomènes d'absorption et d'émission.

2.2 Les capteurs spatiaux

2.2.1 Généralités

La mesure par satellite, encore appelée télédétection spatiale, s'impose de plus en plus comme une source d'information incontournable pour l'observation de la Terre et du système solaire. En effet, en observant dans toutes les régions spectrales, les capteurs spatiaux permettent aussi bien d'étudier le milieu interstellaire et les corps célestes (planètes, comètes,...) que les caractéristiques physico-chimiques de l'atmosphère et des surfaces terrestres. On distingue deux grandes catégories d'instruments : les instruments actifs et les instruments passifs.
Les instruments actifs émettent un signal lumineux soit dans le but d'observer une cible donnée (ex : lidars) soit dans le but de transmettre de l'information sur de très grandes distances (télécommunication). Quant aux instruments passifs, ils captent un signal provenant d'une source donnée et atténuée (par diffusion et/ou absorption). Les instruments de sondage atmosphérique peuvent également être caractérisés par leur direction de visée qui peut être verticale (visée au nadir) ou tangente (visée au limbe) à l'atmosphère.

Les spectromètres sont des capteurs passifs qui réalisent une analyse spectrale du flux lumineux observé. Ils permettent ainsi de déterminer la distribution de la luminance observée en fonction de la longueur d'onde. Différentes techniques sont utilisées pour réaliser l'analyse spectrale du flux lumineux. Puisque les mesures étudiées dans le cadre de cette thèse proviennent d'interféromètres de Michelson encore appelés interféromètres à transformée de Fourier, nous nous intéresserons dans ce qui suit à la technique de l'interférométrie à deux ondes utilisée par ce type de capteur. Un tableau récapitulatif des principaux types de spectromètres est disponible dans l'Annexe A.

2.2.2 Les interféromètres de Michelson

Le principe de mesure d'un interféromètre de Michelson consiste à séparer le rayonnement incident en deux composantes pour ensuite les recombiner après avoir ainsi modifié leur chemin optique. Cette différence de chemin optique produit des interférences et c'est l'analyse de ces interférences qui permet de caractériser le rayonnement incident. Un tel instrument est donc principalement composé d'une lame séparatrice, d'un miroir mobile et d'un miroir fixe (cf . Figure 2.4). L'onde incidente est partiellement transmise au miroir mobile et partiellement réfléchie sur le miroir fixe. La différence de chemin optique (plus communément appelée différence de marche) entre les deux composantes est induite par le déplacement du miroir mobile. Les deux rayons réfléchis par les deux miroirs interfèrent au niveau de la lame séparatrice et sont partiellement réfléchis sur un détecteur. La variation de l'intensité lumineuse reçue par le détecteur dépend de la différence de marche. Ce signal modulé appelé interférogramme représente la mesure physique de l'interféromètre.

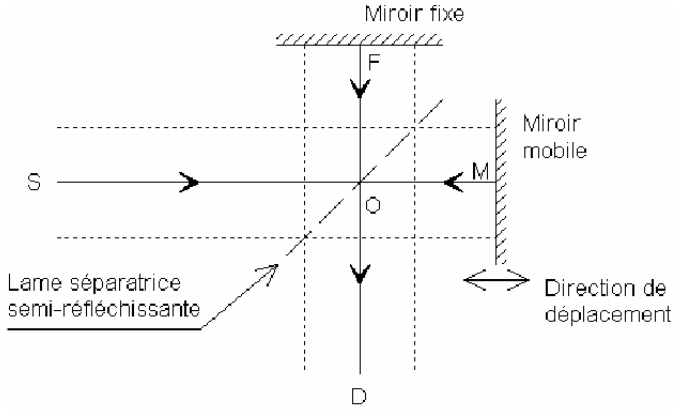


FIGURE 2.4 – Schéma de principe de l'interféromètre de Michelson. Tiré de Blumstein et al. (2008).

On montre que le spectre de la source dans le domaine des fréquences est donné par la transformée de Fourier (TF) de l'interférogramme :

$$S(\sigma) = \int_{-\infty}^{\infty} I(\delta) e^{-j2\pi\sigma\delta} d\delta = TF(I(\delta)) \tag{2.5}$$

où $S(\sigma)$ est l'intensité de la source à la fréquence σ et $I(\delta)$, l'intensité de l'interférogramme en fonction de la différence de marche δ.

Cependant, le miroir mobile a un déplacement limité dans l'espace (de $-\Delta_{max}/2$ à $+\Delta_{max}/2$). Ainsi, le spectre reçu $G(\sigma)$ est tel que :

$$G(\sigma) = \int_{-\Delta_{max}/2}^{\Delta_{max}/2} I(\delta) e^{-j2\pi\sigma\delta} d\delta = \int_{-\infty}^{\infty} A(\delta) I(\delta) e^{-j2\pi\sigma\delta} d\delta \tag{2.6}$$

où $A(\delta)$ est une fonction porte dont la définition est la suivante :

$$A(\delta) = \begin{cases} 1 \text{ si } & -\Delta_{max}/2 \leq \delta \leq \Delta_{max}/2 \\ 0 \text{ sinon.} & \end{cases}$$

D'après le théorème du produit de convolution de la transformée de Fourier, on montre que :

$$G(\sigma) = f(\sigma) * S(\sigma) \tag{2.7}$$

Où le signe '*' représente le produit de convolution et $f(\sigma)$, la transformée de Fourier de $A(\delta)$. f est appelée fonction d'appareil du spectromètre. $A(\delta)$ étant une fonction porte, f est donc un sinus cardinal. En pratique, on évitera d'avoir une fonction du type sinus cardinal comme fonction d'appareil du fait des artefacts que peuvent entraîner ses lobes secondaires et ses minima négatifs relativement importants. On choisira donc des fonctions dites d'apodisation à l'allure différente de la fonction porte ce qui entraînera une relative dégradation de la fonction d'appareil tout en atténuant les lobes secondaires (cf. Figure 2.5). On considère souvent la largeur à mi-hauteur de la fonction d'appareil comme étant la résolution spectrale ($\delta\sigma$) de l'instrument. Pour caractériser cette dernière, on utilise parfois le pouvoir de résolution : $R_0 = \frac{\sigma}{\delta\sigma}$.

Notons pour finir que le bruit est souvent donné par le NEDT ("Noise Equivalent Delta Température"). Il s'agit en fait de la plus petite variation de température détectable dans le spectre de la source. On définit alors le rapport signal sur bruit ou "SNR" (Signal to Noise Ratio) de la manière suivante :

$$SNR = \frac{B}{NEDT \frac{\partial B}{\partial T}} \tag{2.8}$$

où B est la luminance du corps noir (loi de Planck) et $\frac{\partial B}{\partial T}$, sa dérivée par rapport à la température.

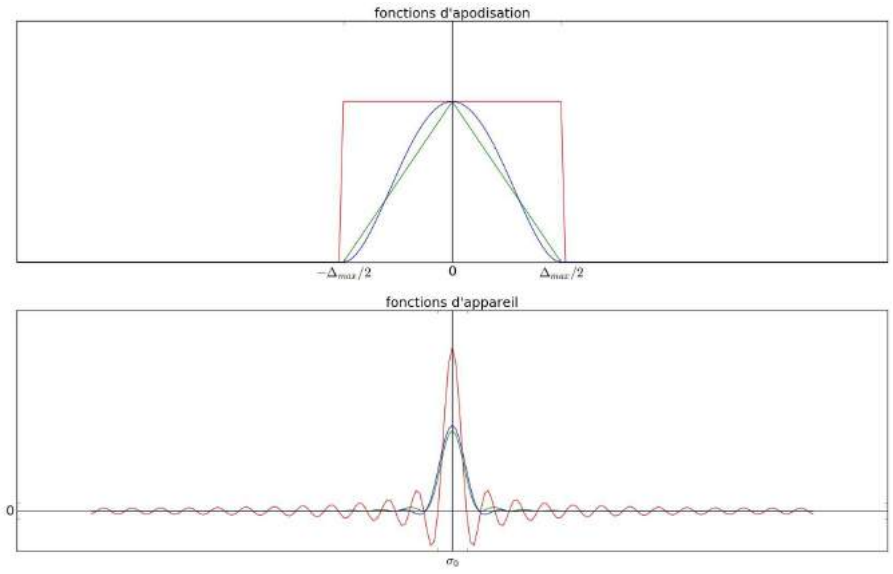


FIGURE 2.5 – Exemples de fonctions d'apodisation (en haut) et des fonctions d'appareil associées (en bas).

2.2.3 Le sondeur IASI

IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer), spectromètre infrarouge à transformée de Fourier, est l'un des 13 instruments qui constituent la charge utile des plateformes MetOp (A et B) (cf. www.esa.int). MetOp (Meteorological Operational) est une mission de l'organisme EUMETSAT (EUropean organization for exploitation of METeorological SATellites) constituée d'une série de trois satellites défilants à orbites basses ($\sim$820 km) héliosynchrones et inclinées de 98.7° par rapport au plan équatorial. Le premier satellite (MetOp-A) a été lancé le 19 Octobre 2006, le second (MetOp-B), le 17 Septembre 2012 et le lancement du troisième (MetOp-C) est prévu pour le mois d'octobre 2018. Un satellite MetOp parcourt une orbite en 100 minutes, effectuant ainsi 14 orbites par jour avec un passage au nœud ascendant à 9h30 heure locale. On a ainsi deux passages par jour sur une même zone et un passage au même point tous les 29 jours. Conjointement développé par le CNES (Centre National D'Études Spatiales) et EUMETSAT, IASI est d'une part un support à la prévision numérique du temps en fournissant des profils de température et d'humidité avec des précisions respectives de 1 K et 10% (Pougatchev et al., 2009) et d'autre part, grâce à son domaine spectral assez large (3.6-15.5 μm)

et couvrant des bandes d'absorption de plusieurs molécules (N_2O, CO, CO_2, CH_4, O_3, etc.), il permet le suivi de la composition chimique de l'atmosphère(Clerbaux et al., 2009). Ainsi, les profils de température, de vapeur d'eau et d'ozone sont restitués à partir des données IASI en utilisant un algorithme d'estimation optimale. Quant aux autres molécules, elles sont estimées à partir des données IASI en utilisant un algorithme basé sur la technique des réseaux de neurones artificiels (Turquety et al., 2004). Nous avons dans le cadre de cette thèse développé un algorithme de restitution basée sur l'estimation optimale (voir section 2.4.2) des profils de N_2O à partir des radiances observées par IASI (cf. Chapitre 4). Le tableau 2.1 résume les principales caractéristiques du sondeur IASI dont le champ de vue est représenté sur la figure 2.6. Dans la continuité de la mission MetOp, le lancement d'une nouvelle série de 3 satellites (en 2021, 2028 et 2035), aux caractéristiques similaires à ceux des satellites MetOp, est prévu au titre de la mission MetOp dite de seconde génération (MetOp-SG). Ces plateformes embarqueront une nouvelle génération du capteur IASI : IASI-New Generation (IASI-NG). IASI-NG sera similaire à IASI en termes de résolution spatiale et de domaine spectral. On prévoit cependant pour IASI-NG une réduction du bruit et une augmentation de la résolution spectrale d'un facteur 2 par rapport à IASI. Nous avons étudié dans le cadre de cette thèse (cf. Chapitre 5), l'apport théorique de IASI-NG par rapport à IASI pour la mesure du N_2O.

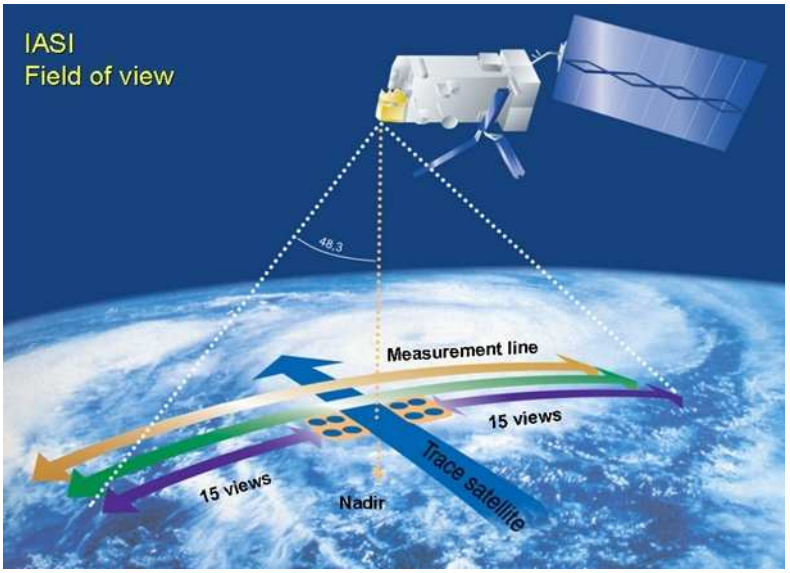


FIGURE 2.6 – Champ de vue du sondeur IASI. Source EUMETSAT (https ://www.eumetsat.int)

Paramètres	**Valeurs**
Domaine spectrale	645-2760 cm^{-1}(15.5-3.6 μm) divisé en trois bandes : bande 1 : 645-1210 cm^{-1} bande 2 : 1210-2000 cm^{-1} bande 3 : 2000-2760 cm^{-1}
Résolution spectrale	0.5 cm^{-1}(largeur à mi-hauteur de la fonction d'appareil après apodisation)
Visée	Nadir
Fauchée	$\pm$1100 km
Résolution horizontale (IFOV) (Note 1)	12 km au nadir et 39 $\times$ 20 km aux bords
Zone éffective du scan (EFOV) (Note 2)	matrice 2 $\times$ 2 de pixels circulaires de 12 km de diamètre soit 30 matrices sur toute la fauchée
Fréquence de scan	1 scan toutes les 8 secondes soit 30 $\times$ 4=120 radiances chaque 8 secondes

TABLE 2.1 – Principales caractéristiques du sondeur IASI.
Note 1 : IFOV pour "Instantaneous Field Of View" donne l'étendue spatiale vue par l'instrument.
Note2 : EFOV pour "Effective Field Of View" représente ici la zone de scan de l'instrument.

2.2.4 Le sondeur TANSO-FTS

TANSO-FTS (Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation-Fourier Transform Spectrometer) est un sondeur infrarouge de la plateforme japonaise GOSAT (Greenhouse gases Observing SATellite). Lancé le 23 Janvier 2009, GOSAT a été conjointement développé par trois organismes japonais : le ministère japonais de l'environnement, l'institut national japonais pour les études environnementales et l'agence japonaise pour l'exploration aérospatiale. GOSAT comporte également un imageur : TANSO-CAI (Cloud and Aerosol Imager). Son orbite est héliosynchrone, à altitude basse ($\sim$666 km), avec une inclinaison de 98.05° par rapport au plan équatorial et un passage au nœud descendant à $\sim$13h15 heure locale (Kuze et al., 2009). GOSAT parcourt ainsi $\sim$14 orbites par jour avec un passage au même point tous les 3 jours. Le sondeur TANSO-FTS est dédié à la mesure du CO_2 et du CH_4. Il comporte 4 bandes : une bande dans le visible (12900-13200 cm^{-1}), deux bandes dans le proche infrarouge (5800-6400 cm^{-1} et 4800-5200 cm^{-1}) et une bande dans l'infrarouge thermique (700-1800 cm^{-1}). La bande infrarouge thermique de TANSO-FTS sert à restituer des profils de CH_4 (Saitoh et al., 2012) et de CO_2 (Saitoh et al., 2016). Du fait de l'existence d'une bande d'absorption de N_2O dans la même région spectrale que la bande d'absorption du CH_4 dans l'infrarouge thermique, les profils de N_2O sont restitués simultanément avec ceux du CH_4 (Kangah et al., 2017) (cf. Chapitre 3). Le tableau 2.2 résume les principales caractéristiques du sondeur TANSO-FTS dans sa bande infrarouge thermique tandis que la figure 2.7 représente le champ de vue du capteur.

Paramètres	Valeurs
Domaine spectral	700-1800 cm^{-1}(14.28-5.55 μm)
Résolution spectrale	0.2 cm^{-1}(aucune apodisation n'est effectuée)
Visée	Nadir
Fauchée	$\pm$750 km (5 points d'observation)
Résolution horizontale (IFOV)	10.5 km de diamètre
Fréquence de scan	1 scan par seconde soit 5 radiances par seconde

TABLE 2.2 – Principales caractéristiques du sondeur TANSO-FTS dans sa bande infrarouge thermique.

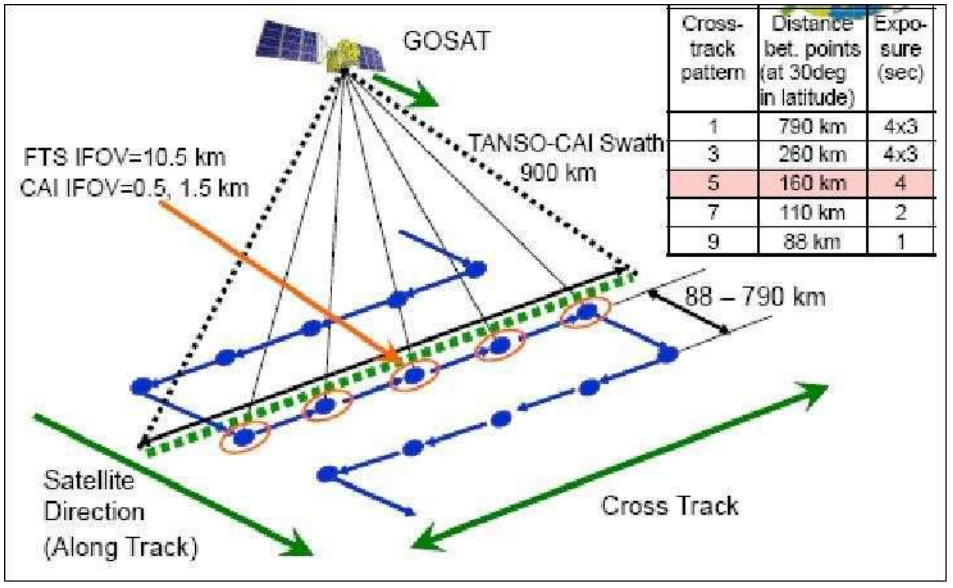


FIGURE 2.7 – Champ de vue du sondeur TANSO-FTS. Source JAXA

2.3 Les modèles de transfert radiatif : le modèle RTTOV

Plusieurs types de modèles sont utilisés pour simuler le rayonnement reçu par un satellite. On distingue généralement deux grandes familles de modèles : les modèles de transfert radiatif raies par raies et les modèles de transfert radiatif rapide. Comme leur nom l'indique, la première famille de modèle consiste à résoudre en utilisant des méthodes numériques (N-flux, Monte Carlo, approximations successives, etc.), l'ETR en prenant en compte toutes les raies de transition énergétique des molécules. Ces modèles permettent ainsi d'obtenir avec une très grande précision la radiance spectrale à une altitude et une direction de visée donnée et à la résolution spectrale voulue. Cependant, ces modèles étant assez coûteux en temps de calcul, on préférera parfois utiliser, en opérationnel ou pour le traitement de données sur une longue période, des modèles moins précis mais plus rapides notamment dans le cadre de l'inversion de mesure qui utilise souvent des schémas itératifs nécessitant plusieurs appels du modèle de transfert radiatif (cf. section 2.4). Les modèles de transfert radiatif rapide reposent sur un apprentissage supervisé des transmittances calculées par un modèle raies par raies en fonction des paramètres de surfaces et atmosphériques. On obtient ainsi des modèles de prédiction (parfois sous forme d'abaques ou d'atlas) permettant de simuler rapidement les radiances spectrales avec une résolution spectrale fixe. En intégrant les caractéristiques instrumentales d'un capteur donné (fonction d'appareil, bande spectrale et résolution spectrale, altitude du satellite), on peut ainsi bâtir un modèle de prédiction spécifique aux radiances observées par ce capteur. C'est le principe de fonctionnement du modèle de transfert radiatif RTTOV.

RTTOV (Radiative Transfer for Tiros Operational Vertical sounder) est un modèle de transfert radiatif rapide qui simule les transmittances des gaz atmosphériques à partir d'un jeu de coefficients de régression linéaire généré en utilisant le modèle de transfert radiatif LBLRTM (Line By Line Radiative Transfert Model) (Saunders et al., 1999). Plusieurs jeux de coefficients correspondant à différents capteurs spatiaux (IASI, IASI-NG, AIRS, HIRS, etc.) sont ainsi générés. Dans la version 11.2 de RTTOV (Hocking et al., 2015) utilisée dans le cadre de cette thèse, les prédicteurs de la régression linéaire dépendent des profils des gaz traces atmosphériques suivant : N_2O, H_2O, CH_4, CO, CO_2, O_3. Le transfert radiatif simulé par RTTOV dépend donc des

bandes d'absorption et de la variabilité de tous ces gaz. Ces derniers peuvent par conséquent être restitués en utilisant les simulations de RTTOV. La simulation des radiances observées consistant en une simple régression linéaire multiple, On observe donc une très grande rapidité d'exécution du modèle. A titre d'exemple, RTTOV est capable de simuler en 25 millisecondes 183 canaux IASI en utilisant en entrée des profils atmosphériques sur 54 niveaux verticaux en plus des paramètres de surface (émissivité et température) (Rundle, 2014). En ciel clair et sur mer, les biais moyens de simulation des températures de brillance de IASI par RTTOV ont été évalués à ± 1 K entre 645 et 2000 cm^{-1} et à ± 1.6 K entre 2200 et 2300 cm^{-1} (Matricardi, 2009).

2.4 L'inversion de mesures spatiales

2.4.1 Généralités

L'inversion de mesures spatiales consiste à estimer un ou plusieurs paramètres atmosphériques et de surface à partir des mesures de radiances des capteurs spatiaux. Il s'agit en fait de résoudre le problème inverse du transfert radiatif à savoir déterminer le profil vertical de concentration d'un composé chimique et/ou d'un paramètre physique à partir de la mesure de rayonnement :

$$y = f(x) \tag{2.9}$$

$$\hat{x} = f^{-1}(f(x)) + \epsilon_x \tag{2.10}$$

où y est la mesure qui dépend du paramètre d'état x via la physique de la mesure f ; $\hat{x}$ est l'estimation du paramètre d'état x entaché d'une erreur ϵ_x.

Il existe plusieurs techniques d'inversion de mesure. Certaines sont basées sur un apprentissage statistique des relations entre les paramètres d'entrée (les radiances spectrales, l'angle solaire zénithal etc.) et les paramètres de sortie (les paramètres géophysiques). Dans cette catégorie d'inversion, on utilise notamment les réseaux neuronaux artificiels (Turquety et al., 2004). Certaines méthodes d'inversion sont basées sur la connaissance des mécanismes du transfert

radiatif via un modèle de transfert radiatif. Parmi ces méthodes, la plus utilisée est la méthode d'estimation optimale. Cette méthode permet en effet une évaluation détaillée des erreurs sur la restitution. Dans ce qui suit nous présenterons cette méthode en utilisant le formalisme développé par Rodgers (2000).

2.4.2 La méthode de l'estimation optimale

La méthode de l'estimation optimale se base sur la théorème de Bayes :

$$P(x|y) = \frac{P(y|x)P(x)}{P(y)} \tag{2.11}$$

où $P(x)$ et $P(y)$ sont respectivement les densités de probabilité du vecteur d'état x et de la mesure y ;
$P(y|x)$ et $P(x|y)$ sont respectivement les densités de probabilité conditionnelle de y sachant x et de x sachant y.

La relation entre la mesure y et sa simulation via un modèle de transfert radiatif F peut s'écrire :

$$y = F(x, b) + \epsilon_y \tag{2.12}$$

où b représente l'ensemble des paramètres du transfert radiatif qui n'étant pas restitués ne font donc pas partie du paramètre d'état cible x.

En supposant gaussiennes et de moyenne nulle les erreurs sur la mesure et sur la connaissance a priori (x_a) du vecteur d'état, il vient que :

$$-2ln(P(x|y)) = (y - F(x,b))^T S_y^{-1}(y - F(x,b)) + (x - x_a)^T S_a^{-1}(x - x_a) + c \tag{2.13}$$

où S_y et S_a sont respectivement les matrices de covariance des erreurs sur la mesure et sur l'a priori et c une constante.

Ainsi, maximiser $P(x|y)$ revient à minimiser le terme de droite de l'équation 2.13. En sup-

posant linéaire le modèle de transfert radiatif, on peut écrire :

$$y = Kx + \epsilon_y \tag{2.14}$$

où K=$\frac{\partial F}{\partial x}$ est la matrice des fonctions de poids encore appelée Jacobien.

On montre que la solution $\hat{x}$ qui maximise $P(x|y)$ est telle que :

$$\hat{x} = x_a + (K^T S_y^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} K^T S_y^{-1} (y - K x_a) \tag{2.15}$$

En réalité, la linéarité du problème n'étant pas complètement avérée, on a recours à des schémas itératifs qui permettent un traitement non linéaire du problème d'inversion. Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé le schéma de Levenberg-Marquardt dont l'équation de base est la suivante :

$$\hat{x}_{i+1} = x_a + (K_i^T S_y^{-1} K_i + S_a^{-1} + \gamma S_a^{-1})^{-1} \times (K_i^T S_y^{-1} ([y - F(\hat{x}_i, b)] + K_i [\hat{x}_i - x_a]) + \gamma S_a^{-1} [\hat{x}_i - x_a]) \tag{2.16}$$

où $\hat{x}_i$ et $\hat{x}_{i+1}$ représentent respectivement l'estimation à l'itération i et à l'itération $i+1$ et γ, un paramètre qui permet de contrôler la vitesse de convergence. En pratique, dans la mise en œuvre de cette méthode, on cherchera à minimiser la fonction coût suivante :

$$\chi_i^2 = (y - F(x_i, b))^T S_y^{-1} (y - F(x_i, b)) + (x_i - x_a)^T S_a^{-1} (x_i - x_a) \tag{2.17}$$

Lorsqu'on a $\chi_{i+1}^2 > \chi_i^2$ on divise γ par un facteur α fixé à l'avance avant de passer à l'itération suivante. Dans le cas contraire, on multiplie γ par α jusqu'à l'obtention d'une diminution du paramètre χ^2. Le choix du γ initial et de α est purement empirique et dépend du cas d'étude. On estime en général que les problèmes d'inversion dans une atmosphère en ciel clair sont modérément non linéaires. On utilisera alors dans de tels cas le formalisme linéaire-gaussien pour l'étude du bilan d'erreur et de la sensibilité verticale de l'estimation.

2.4.2.1 Sensibilité verticale

Du fait de limitations liées, entre autres, aux aspects techniques de la mesure (bande spectrale et résolution spectrale, bruits de mesure, etc...), la mesure ne contient pas toute l'information sur la distribution verticale du paramètre que l'on veut restituer. La sensibilité de l'estimation par rapport à la mesure appelée encore matrice de gain (G) est donnée par :

$$G = \frac{\partial \hat{x}}{\partial y} = (K^T S_y^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} K^T S_y^{-1} \tag{2.18}$$

On définit alors la sensibilité verticale de l'estimation à la réalité encore appelée matrice des fonctions de balayage (A) par :

$$A = \frac{\partial \hat{x}}{\partial x} = GK \tag{2.19}$$

Ainsi, la ligne $a_{i.}$ de A est la fonction de balayage correspondant à l'altitude i et est telle que $a_{ij} = \frac{\partial \hat{x}_i}{\partial x_j}$. On a par ailleurs :

$$I - A = \frac{\partial \hat{x}}{\partial x_a} \tag{2.20}$$

La fonction de balayage ainsi calculée caractérise l'indépendance de chaque niveau par rapport aux autres niveaux mais aussi par rapport à l'information a priori. La trace de la matrice des fonctions de balayage représente le nombre de degrés de liberté sur la verticale. Cette grandeur que l'on notera DOF (pour degrees of freedom en anglais) est en fait le nombre d'informations indépendantes sur la verticale contenu dans l'estimation.

2.4.2.2 Bilan d'erreurs

L'avantage du formalisme de Rodgers, c'est qu'il permet une description détaillée des différentes sources d'erreurs affectant l'estimation $\hat{x}$. Ainsi, en réarrangeant l'équation 2.15, on obtient :

$$\begin{aligned} \hat{x} - x = \quad & (A - I)(x - x_a) && \text{erreur de lissage} \\ & + G\epsilon_y && \text{erreur d'estimation} \end{aligned} \tag{2.21}$$

où I est la matrice identité.

L'erreur de lissage rend compte notamment de la relative dégradation de la résolution verticale de l'estimation par rapport à l'atmosphère réelle. Pour un choix de x_a correspondant à l'état moyen de l'atmosphère (ce qui est souvent le cas), l'erreur de lissage est en moyenne nulle et est donc caractérisée par sa matrice de covariance S_s :

$$S_s = (A - I)S_e(A - I)^T \tag{2.22}$$

où S_e est la matrice de covariance de l'atmosphère réelle x.

On essaiera le plus souvent de construire la matrice S_a de sorte à ce qu'elle puisse constituer une bonne approximation de la matrice S_e. L'erreur de lissage est généralement la plus importante. On peut cependant considérer que l'on cherche à estimer une version "lissée" de la réalité. C'est en général le postulat de base de la plupart des procédures de validation de données satellites par des données in-situ. D'où le fait que l'on réserve souvent l'appellation "erreur d'estimation" au terme $G\epsilon_y$. On applique alors la fonction de balayage de l'état estimé $\hat{x}$ aux données in-situ avant de les comparer aux données satellites. Les aspects concernant la validation de profils estimés de N_2O par des données in-situ seront abordés plus en détail aux chapitres 3 et 4.

L'erreur d'estimation $G\epsilon_y$ peut être décomposée en 3 parties :

$$\begin{aligned} G\epsilon_y = \quad & GK_b(b - \hat{b}) && \text{erreur des paramètres du transfert radiatif} \\ & + G\Delta f && \text{erreur de modélisation} \\ & + G\epsilon && \text{bruit d'estimation} \end{aligned} \tag{2.23}$$

K_b et $\hat{b}$ sont respectivement le Jacobien et l'estimation du paramètre b ;
Δf est l'erreur du transfert radiatif par rapport à la physique exacte et
ϵ est le bruit de mesure.

En pratique, on essaiera d'avoir en entrée du système d'inversion une estimation aussi précise que possible des paramètres non inversés b afin d'en minimiser l'impact sur l'estimation du paramètre cible x. On pourra aussi introduire ces paramètres dans le vecteur d'état et donc les restituer simultanément avec le paramètre cible (cf. 2.4.2.3). Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi cette dernière option pour bâtir le système d'inversion du N_2O. L'erreur de modélisation est souvent considérée comme négligeable lorsqu'on utilise un transfert radiatif raie par raie. Quand un modèle de transfert radiatif rapide est utilisé, Δf correspond à l'erreur du modèle de transfert radiatif rapide par rapport à un modèle raie par raie. C'est souvent une erreur systématique. On essayera donc en pratique de traiter en amont les biais du transfert radiatif rapide en estimant Δf à partir d'un échantillon représentatif des différentes situations atmosphériques. Quant au bruit d'estimation, il est lié au bruit de mesure ϵ. C'est donc généralement une erreur aléatoire dont la matrice de covariance est :

$$S_m = GS_yG^T \tag{2.24}$$

2.4.2.3 Restitution simultanée de paramètres indépendants

Le système de restitution mis en place dans le cadre de cette thèse effectue une restitution simultanée de plusieurs paramètres (N_2O, H_2O, CH_4, température, etc.) supposés indépendants les uns des autres mais qui influencent le rayonnement dans les même bandes spectrales. Cette méthode a pour inconvénient de complexifier le système de restitution en rajoutant au vecteur d'état x, au Jacobien K et à la matrice de covariance a priori S_a des composantes relatives aux autres paramètres restitués (b). Cela entraîne des interactions complexes entre les différents paramètres au cours de l'inversion malgré l'indépendance supposée des unes par rapport aux autres. Cependant ce qui peut sembler être un inconvénient au premier abord, peut en fait constituer un avantage. En effet, en plus d'offrir la possibilité d'une meilleure estimation des paramètres a priori mal connus, la restitution simultanée peut également permettre de stabiliser

le système d'inversion à l'aide de paramètres dits "puits". Il s'agit en fait de paramètres sur lesquels on mettra une erreur a priori relativement importante et qui serviront à capter les sources inconnues de variation du modèle de transfert radiatif. Dans un cas de restitutions simultanées, la matrice des fonctions de balayage se présente de la façon suivante (Baron, 1999) :

$$A = \begin{pmatrix} A^{1/1} & \cdots & A^{1/N} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ A^{N/1} & \cdots & A^{N/N} \end{pmatrix}$$

où $A^{p/p}$ représente la matrice des fonctions de balayage associée au paramètre p et $A^{p/q} = \frac{\partial x^p}{\partial x^q}$, l'impact du paramètre q sur l'estimation du paramètre p.

En utilisant la méthode de restitution simultanée, les erreurs induites par les autres paramètres sur l'estimation du paramètre cible sont implicitement contenues dans la matrice des fonctions de balayage. De plus, la matrice des fonctions de balayage du paramètre cible, en plus de quantifier la dépendance de l'estimation du paramètre cible par rapport à l'information a priori, contient également une information sur la dépendance de l'estimation du paramètre cible par rapport aux autres paramètres restitués. Plus les incertitudes sur les autres paramètres restitués sont grandes, plus le DOF associé au paramètre cible aura tendance à diminuer. En utilisant les notations précédentes à ceci près que l'ensemble des paramètres b est maintenant restitué simultanément avec x, les valeurs de la matrice des fonctions de balayage associée à $\hat{x}$ diminuent d'un facteur $(K_b S_b K_b^T)^{-1}$ (Rodgers, 2000). La matrice des fonctions de balayage associée à $\hat{x}$ dans un cas de restitutions simultanées aura bien souvent les mêmes caractéristiques de forme que celle calculée à l'aide des équations 2.19 et 2.18 mais avec des valeurs plus faibles.

2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons dans un premier temps posé les bases théoriques du transfert radiatif dans l'atmosphère. Après avoir présenté leur principe général de fonctionnement, nous avons ensuite présenté les deux capteurs étudiés dans le cadre de cette thèse : TANSO-FTS et IASI. Ces deux instruments effectuent des mesures dans des bandes infrarouges thermiques qui comportent, comme nous le verrons dans la suite, des bandes d'absorption du N_2O. En effet,

IASI effectue des mesures uniquement dans l'infrarouge thermique (3.6-15.5 μm) tandis que TANSO-FTS possède en plus d'une bande visible et de deux bandes dans le proche infrarouge, une bande dans l'infrarouge thermique (5.5-14.3 μm). Ces deux capteurs ont des caractéristiques équivalentes en terme de résolution horizontale : 10.5 km pour TANSO-FTS et 12 km pour IASI. Quant à la résolution spectrale, celle de TANSO-FTS (0.2 cm^{-1}) est bien meilleure que celle de IASI (0.5 cm^{-1}). Notons néanmoins qu'aucune apodisation n'est effectuée sur les mesures de TANSO-FTS ce qui pourrait expliquer en partie sa meilleure résolution spectrale mais pourrait, en revanche, entraîner des erreurs de mesure dues aux lobes secondaires de la fonction d'appareil bien plus importantes que celles de IASI. Par ailleurs, du fait de son champ de vue et de sa fréquence de scan, IASI a un échantillonnage journalier en nombre de pixels beaucoup plus élevé que TANSO-FTS.

Nous avons ensuite brièvement présenté le modèle de transfert radiatif utilisé au cours de cette thèse : RTTOV. Ce modèle fait partie de la catégorie des modèles de transfert radiatif dits rapides. En utilisant des jeux de coefficients de régression linéaire sur des prédicteurs dépendant entre autres des paramètres atmosphériques, RTTOV permet de simuler le rayonnement observé par différents capteurs spatiaux dont IASI.

Nous avons, pour finir, présenté le principe de l'inversion des mesures satellites à partir de la théorie de l'estimation optimale en nous attardant sur la méthode utilisée dans le cadre de cette thèse à savoir la restitution simultanée de plusieurs paramètres.

Nous présenterons dans les chapitres suivants, les principaux résultats scientifiques (concernant la variabilité du N_2O dans l'atmosphère) et techniques (concernant notamment la mise en place d'un système de restitution des profils de N_2O à partir de mesures spatiales) obtenus aux cours de ces travaux de thèse.

Chapitre 3

Etude des processus d'émissions et de transport de N_2O entre l'Asie et la Méditerranée à partir des mesures du capteur spatial TANSO-FTS et des sorties du modèle LMDz-Or-INCA.

Ce chapitre s'appuie sur l'article de Kangah et al. (2017) publié le 20 mars 2017 au JGR (Journal of Geophysical Research) et portant sur l'impact des émissions estivales asiatiques de N_2O sur la variabilité spatio-temporelle du N_2O au-dessus du bassin méditerranéen. La section 3.1 présente un résumé étendu de l'article tandis que la section 3.2 contient le texte intégral de l'article.

3.1 Résumé étendu de l'article

Comme nous l'avons vu précédemment, les profils de N_2O restitués à partir des mesures du capteur TANSO-FTS de GOSAT constituent à ce jour, avec ceux restitués à partir des mesures du capteur AIRS, les seules sources de données d'observation spatiales de profils verticaux de

N_2O à l'échelle globale. Nous avons étudié en utilisant ces données ainsi que des moyennes mensuelles de N_2O calculées par le modèle LMDz-Or-INCA (cf. section 1.3.2), l'impact des émissions asiatiques estivales de N_2O sur la variabilité spatio-temporelle du N_2O au-dessus du bassin méditerranéen. Nous disposons en effet de 4 ans de données (2010-2013) GOSAT et LMDz-Or-INCA. Cette étude s'inscrit dans la continuité de l'étude de Ricaud et al. (2014) qui a montré l'impact de l'anticyclone de la mousson asiatique sur la distribution spatio-temporelle du CH_4 au-dessus du bassin méditerranéen. Les fonctions de balayage du N_2O GOSAT indiquent un maximum de sensibilité entre 500 et 200 hPa avec un pic à 314 hPa. Ce niveau constituera donc le niveau de référence pour notre étude. Puisqu'il s'agit de la première utilisation des profils de N_2O GOSAT, nous avons effectué, dans le cadre de cette étude, une validation empirique des données GOSAT au-dessus des surfaces maritimes en les comparant aux mesures provenant de trois des 5 campagnes HIPPO : HIPPO 3 (mars-avril 2010), HIPPO 4 (juin-juillet 2011), et HIPPO 5 (août-septembre 2011). Il vient de cette comparaison que les données GOSAT à 314 hPa présentent des biais très faibles ($\sim$ -0.4 ppbv) et une erreur (en écart type) d'environ 2 ppbv. Cette erreur passe à $\sim$0.1 ppbv sur les moyennes mensuelles et régionales des données GOSAT au-dessus du bassin méditerranéen. La droite de régression linéaire entre les données GOSAT et HIPPO a une pente très faible de 0.22. On peut donc considérer que les données GOSAT ont tendance à sous-estimer les variations de N_2O en haute troposphère. En nous inspirant de la méthodologie employée par Ricaud et al. (2014), nous avons divisé le bassin méditerranéen en deux parties : la partie Est (30-37°N, 26-37°E) notée EMB (pour Eastern Mediterranean Basin en anglais) et la partie Ouest (36-45°N, 1-12°E) notée WMB (pour Western Mediterranean Basin en anglais). Pour cette étude, nous avons utilisé les données GOSAT et LMDz-Or-INCA moyennées sur ces deux régions et sur la période 2010-2013. On observe un maximum en juillet de la différence est-ouest de N_2O au-dessus du bassin méditerranéen à 314 hPa à la fois sur les observations GOSAT et les données calculées par LMDz-Or-INCA. Ce maximum est dû à une forte augmentation du N_2O dans la haute troposphère de l'EMB en été et plus particulièrement en juillet. L'amplitude du maximum est cependant beaucoup plus élevée dans les observations GOSAT ($\sim$1.4 ppbv) que dans le modèle LMDz-Or-INCA ($\sim$0.8 ppbv). A partir d'un point situé à 300 hPa dans l'EMB (33°N et 35°E), nous avons réalisé des rétro-trajectoires à 10 jours.

Ces rétrotrajectoires montrent qu'en juillet et en août, les masses d'air arrivant sur l'est du bassin méditerranéen proviennent majoritairement d'Asie via l'anticyclone de la mousson asiatique. En accord avec les études menées par Vogel et al. (2015) et Bergman et al. (2013), ces rétro-trajectoires ont également permis de mettre en évidence l'impact des émissions estivales en provenance majoritairement du sous-continent indien et dans une moindre mesure de l'est de la Chine sur la composition en N_2O dans la haute troposphère de l'EMB. Afin de comprendre ce pic en juillet de la différence est-ouest de N_2O au-dessus du bassin méditerranéen, nous avons étudié la saisonnalité des émissions de N_2O sur le sous-continent indien en nous appuyant sur les données d'émissions utilisées par le modèle LMDz-Or-INCA. Oswald et al. (2013) a montré que les émissions des composés azotés étaient liées au contenu en eau du sol (noté SWC pour Soil Water Content). Ainsi, les émissions de N_2O n'interviendraient que pour des SWC relativement forts (entre 40 et 70 %) tandis que pour des SWC faibles (entre 5 et 40%) ce sont d' autres composés azotés tels que les NO_x qui sont émis. Les émissions de NO_x et de NO_2 utilisées par LMDz-Or-INCA sont cohérentes avec cette étude. En effet, le pic des émissions de N_2O sur le sous-continent indien intervient en Juillet soit deux mois après celui des émissions de NO_x et un mois avant le pic des précipitations convectives provenant des réanalyses ERA-interim. L'utilisation d'engrais azotés dans le cadre d'une agriculture intensive s'est accrue ces dernières décennies en Asie faisant ainsi de la Chine et de l'Inde respectivement le premier et le second producteur et consommateur de ce type d'engrais dans le monde (https ://www.tfi.org/statistics/statistics-faqs). L'utilisation de ces engrais est la principale cause des fortes émissions de N_2O en Asie et plus particulièrement sur le sous-continent indien (Rasul and Thapa, 2003; Solomon et al., 2007b). Ainsi, les fortes précipitations estivales liées au phénomène de mousson entraînent de fortes émissions de N_2O en provenance de sols enrichis en azote par l'épandage des engrais azotés. Ces fortes émissions de N_2O sont transportées en haute troposphère par les mouvements verticaux liés à la mousson et sont ensuite redistribuées vers l'ouest jusqu'à l'EMB par la circulation issue de l'anticyclone de la mousson asiatique. Par ailleurs, nous avons également étudié pour le modèle et les observations, les facteurs qui influencent l'amplitude du maximum de la différence est-ouest. Deux facteurs sont susceptibles de modifier la distribution spatiale du N_2O dans le modèle : la résolution spatiale du modèle

et les émissions utilisées. En effet, la version basse résolution du modèle LMDz-Or-INCA low res qui a également sur le sous-continent indien un taux d'émission de 7% inférieur à celui de LMDz-Or-INCA en juillet présente également une amplitude du maximum de la différence est-ouest légèrement moins intense ($\sim$0.7 ppbv). Plusieurs études ont mis en évidence une sous-estimation des émissions de N_2O liées à l'agriculture du fait d'une compréhension encore insuffisante de certains processus biochimiques impliqués dans ces émissions (Raut et al., 2015; Shcherbak et al., 2014). De plus, Bergman et al. (2013) a montré que lorsqu'on diminuait la résolution horizontale du modèle, la composition de l'anticyclone de la mousson asiatique était moins influencée par les émissions à la surface du sous-continent indien. Afin de comprendre l'effet de la sensibilité verticale du capteur TANSO-FTS sur l'amplitude restituée de la différence est-ouest de N_2O, nous avons appliqué à LMDz-Or-INCA l'effet de lissage présent dans la mesure et représenté par la fonction de balayage. On obtient alors une baisse de moitié (de 0.8 à 0.4 ppbv) de l'amplitude du maximum de la différence est-ouest de N_2O calculée par le modèle. Cela confirme que l'amplitude de la différence est-ouest observée par GOSAT sous-estime la réalité du fait notamment de l'effet de lissage dû à la sensibilité verticale de la mesure. Il ressort de cette étude que les mesures spatiales du N_2O au-dessus du bassin méditerranéen peuvent permettre, dans le cadre d'une stratégie « top-down » d'estimation des émissions, d'améliorer l'estimation des émissions de N_2O en Asie et plus particulièrement celles sur le sous-continent indien.

3.2 Article 1

AGU PUBLICATIONS

JGR

Journal of Geophysical Research: Atmospheres

RESEARCH ARTICLE
10.1002/2016JD026119

Key Points:
- Consistency between GOSAT N_2O measurements and LMDz-OR-INCA model N_2O results
- Evidence of a link between summertime Asian N_2O Emissions and the Mediterranean tropospheric N_2O

Correspondence to:
Y. Kangah,
yannick.kangah@meteo.fr

Citation:
Kangah, Y., P. Ricaud, J.-L. Attié, N. Saitoh, D. A. Hauglustaine, R. Wang, L. El Amraoui, R. Zbinden, and C. Delon (2017), Summertime upper tropospheric nitrous oxide over the Mediterranean as a footprint of Asian emissions, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *122*, doi:10.1002/2016JD026119.

Received 28 OCT 2016
Accepted 28 MAR 2017
Accepted article online 29 MAR 2017

©2017. The Authors.
This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivs License, which permits use and distribution in any medium, provided the original work is properly cited, the use is non-commercial and no modifications or adaptations are made.

Summertime upper tropospheric nitrous oxide over the Mediterranean as a footprint of Asian emissions

Yannick Kangah[1], Philippe Ricaud[1], Jean-Luc Attié[1,2], Naoko Saitoh[3], Didier A. Hauglustaine[4], Rong Wang[4,5], Laaziz El Amraoui[1], Régina Zbinden[1], and Claire Delon[2]

[1]CNRM-GAME, Toulouse, France, [2]Laboratoire d'Aérologie, Université de Toulouse, Toulouse, France, [3]Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University, Chiba, Japan, [4]Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Paris, France, [5]Department of Global Ecology, Carnegie Institution for Science, Stanford, California, USA

Abstract The aim of this paper is to study the transport of nitrous oxide (N_2O) from the Asian surface to the eastern Mediterranean Basin (MB). We used measurements from the spectrometer Thermal and Near infrared Sensor for carbon Observation Fourier transform spectrometer on board the Greenhouse gases Observing SATellite (GOSAT) over the period of 2010–2013. We also used the outputs from the chemical transport model LMDz-OR-INCA over the same period. By comparing GOSAT upper tropospheric retrievals to aircraft measurements from the High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations, we calculated a GOSAT High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research standard deviation (SD error) of ~2.0 ppbv for a single pixel and a mean bias of approximately −1.3 ppbv (approximately −0.4%). This SD error is reduced to ~0.1 ppbv when we average the pixels regionally and monthly over the MB. The use of nitrogen fertilizer coupled with high soil humidity during the summer Asian monsoon produces high N_2O emissions, which are transported from Asian surfaces to the eastern MB. This summertime enrichment over the eastern MB produces a maximum in the difference between the eastern and the western MB upper tropospheric N_2O (east-west difference) in July in both the measurements and the model. N_2O over the eastern MB can therefore be considered as a footprint of Asian summertime emissions. However, the peak-to-peak amplitude of the east-west difference observed by GOSAT (~1.4 ± 0.3 ppbv) is larger than that calculated by LMDz-OR-INCA (~0.8 ppbv). This is due to an underestimation of N_2O emissions in the model and to a relatively coarse spatial resolution of the model that tends to underestimate the N_2O accumulation into the Asian monsoon anticyclone.

1. Introduction

Nitrous oxide (N_2O) is produced in oceans and soils by microbial processes of nitrification and denitrification [*Butterbach-Bahl et al.*, 2013]. With a 120 year lifetime, N_2O is the third anthropogenic greenhouse gas after carbon dioxide (CO_2) and methane (CH_4) in terms of radiative forcing [*Ciais et al.*, 2014]. The N_2O radiative forcing contribution accounts for 6–15% of the greenhouse gas emission contribution to global warming. In spite of its far lower concentration in the atmosphere than CO_2, N_2O is a much more efficient greenhouse gas with a global warming potential of 265 over a 100 year time span. Although its main sink is photolysis in the stratosphere, an additional loss of N_2O comes from its reaction with excited atomic oxygen $O(^1D)$ in the stratosphere. This reaction is the main source of stratospheric nitrogen oxides [*Minschwaner et al.*, 1993] that are involved in stratospheric ozone destruction. It is therefore the main emitted ozone-depleting substance of the 21st century [*Ravishankara et al.*, 2009]. Moreover, N_2O volume mixing ratio (vmr) has increased at an average rate of 0.75 ppbv yr^{-1} since the late 1970s and is expected to increase until 2100 according to the Intergovernmental Panel on Climate Change climatic scenarios due to the increasing use of nitrogen fertilizers in agricultural activities [*Ciais et al.*, 2014]. In Asia, the use of nitrogen fertilizers in agriculture is increasing to meet the growing demand for food production, making China and India the first and second largest consumers and producers of nitrogen fertilizers (https://www.tfi.org/statistics/statistics-faqs), respectively.

At a global scale, the strongest N_2O sources are natural soil emissions with an emission rate of 6–7 TgN yr^{-1}, followed by emissions from agricultural sources (4.3–5.8 TgN yr^{-1}) [*Syakila and Kroeze*, 2011]. Soil moisture is the major driver of N_2O emissions whose maxima occur around 55% soil water content (SWC) [*Oswald et al.*, 2013].

Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

The second main control variable for N_2O emissions by soils is the nitrogen content of the soil, which increases when fertilizers are added in agro systems [*Butterbach-Bahl and Dannenmann*, 2011].

Contrary to surface N_2O measurements from the World Meteorological Organization Global Atmosphere Watch Programme [*Tsutsumi et al.*, 2009], tropospheric N_2O measurements at global or regional scale have neither been widely performed nor widely used up to now like those of CH_4 or CO_2. Remote Fourier transform infrared measurements of total column N_2O are regularly performed within the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change [*Zander et al.*, 2005]. There are also sporadic aircraft campaigns including the High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations (HIPPO) [*Kort et al.*, 2011] used in this paper. However, satellite observations of tropospheric N_2O profiles and N_2O total columns have been performed by using respectively the Atmospheric Infrared Sounder (AIRS) on board the AQUA platform and the Infrared Atmospheric Sounder Interferometer (IASI) on board the METOP A/B platforms. Consistent interannual trends of N_2O with surface measurements can be derived from AIRS measurements [*Xiong et al.*, 2014], and the African equatorial maximum during March–May can be observed by using IASI total column measurements [*Ricaud et al.*, 2009]. In addition, N_2O is retrieved simultaneously with methane from the thermal infrared measurements of the Greenhouse gases Observing SATellite (GOSAT) at a global scale. Since this study is the first use of GOSAT N_2O data, this data set is introduced in this paper.

In the context of monitoring pollution effects on regional climate, the Chemistry and Aerosol Mediterranean Experiment (ChArMEx) project aims, among other objectives, to understand the spatial and temporal evolutions of chemical compounds over the Mediterranean Basin (MB). In this framework and despite the fact that well-mixed greenhouse gases were not expected to have significant regional variations in the troposphere, a summertime peak in the difference between the eastern and the western MB of middle-to-upper tropospheric CH_4 has been attributed to the transport of pollutants from Asia via the Asian monsoon anticyclone to the eastern MB [*Ricaud et al.*, 2014]. Therefore, variations of long-lived species over the MB can probably be used as footprints of Asian emissions of pollutants. Following this previous work, the aim of this paper is to demonstrate the impact of the Asian N_2O emissions on the upper tropospheric N_2O over the eastern MB. First, we present the N_2O data from the GOSAT Thermal and Near infrared Sensor for carbon Observation Fourier transform spectrometer (TANSO-FTS) together with our validation of GOSAT upper tropospheric N_2O by using the HIPPO aircraft measurements and introduce the chemical transport model LMDz-OR-INCA. Second, we study the N_2O seasonal variability in the eastern and the western MBs as well as the east-west difference of N_2O seasonal variability. Then, we analyze the link between these variabilities and the Asian N_2O emissions via the summer Asian monsoon and its associated anticyclone. Before concluding, we discuss first the correlation between high precipitation rates associated with the monsoon period and high N_2O emissions over Asia. Then, we discuss the influence of horizontal resolution in the model and emission modeling as well as the vertical resolution of measurements on the assessed east-west difference of the MB upper tropospheric N_2O seasonal variability in the model and in the observations, respectively.

2. Data Sets

2.1. GOSAT/TANSO-FTS Data

The Japanese Ministry of the Environment, the Japanese National Institute for Environmental Studies, and the Japan Aerospace eXploration Agency developed the Sun-synchronous orbital satellite GOSAT platform [*Hamazaki et al.*, 2005] dedicated to the study of two greenhouse gases: CO_2 and CH_4. The platform was launched on 23 January 2009 carrying two sensors: a Fourier transform spectrometer (TANSO-FTS) and a Cloud and Aerosol Imager (TANSO-CAI) [*Yokota et al.*, 2009]. The TANSO-FTS is a nadir-viewing instrument using four spectral bands covering the thermal infrared (TIR) and the shortwave infrared domains (0.76, 1.6, 2.0, and 5.5–14.3 μm) [*Kuze et al.*, 2009] with a 10.5 km diameter of instrumental field of view and a spectral resolution of ~0.2 cm^{-1}. Along with CH_4 retrievals in the TIR, N_2O is also processed as a by-product by using a nonlinear optimal estimation retrieval method [*Saitoh et al.*, 2009] from the latest V1 retrieval algorithm [*Saitoh et al.*, 2016]. The retrieval has been performed in clear-sky conditions [*Eguchi and Yokota*, 2008] in which clouds are filtered by using cloud flags provided by the TANSO-CAI during daytime [*Ishida and Nakajima*, 2009; *Ishida et al.*, 2011] and on the basis of the TANSO-FTS TIR spectrum during nighttime [*Saitoh et al.*, 2016]. The N_2O-retrieved profiles have been obtained by

AGU Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

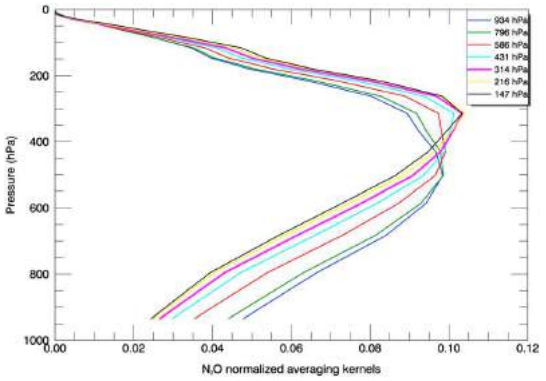


Figure 1. Normalized N_2O averaging kernels from GOSAT/TANSO-FTS at 35°N and 20°E and monthly averaged over July 2010. The different colors represent different retrieval representative levels as shown in the caption.

assuming a fixed a priori profile derived from the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) reference atmosphere (V3) climatology from 15°N to 60°N latitude (MIPAS reference atmosphere profiles can be downloaded from http://www.atm.ox.ac.uk/RFM/atm/).

GOSAT N_2O retrievals are performed on 22 retrieval grid layers, and each grid layer has a representative pressure level. The normalized averaging kernels shown in Figure 1 have been calculated at 35°N and 20°E and averaged over July 2010. They are representative of the MB since the N_2O averaging kernels do not have significant spatial variations over the MB. They characterize the sensitivity of GOSAT N_2O measurements at each of the 22 retrieval layers to the true atmospheric N_2O profile [*Rodgers*, 2000] (only seven of them are represented in Figure 1). The GOSAT N_2O-retrieved profiles reach a maximum of sensitivity between 500 and 200 hPa peaking at the pressure level of 314 hPa. Since we are studying upper tropospheric N_2O transport processes, 314 hPa will be the reference pressure level for our analyses.

Individual retrievals have total theoretical random errors less than 2% (~6.4 ppbv for 320 ppbv) at each retrieval level. In this study, we took averages (spatially and temporally) (monthly/interannually) of GOSAT N_2O data (see section 3.1) over the MB at 314 hPa instead of using the individual retrievals. The random errors on the N_2O averaged values are less than 0.1% (~0.3 ppbv). TIR measurements are highly affected by surface parameters such as surface emissivity and temperature [*Claeyman et al.*, 2011]. The errors in the surface parameters can impact the N_2O retrieval as systematic errors. Because surface parameters have generally high variability (e.g., diurnal amplitude of surface temperature), these errors may vary in time and space. Thus, to minimize the impact of systematic errors caused by surface parameters, we only used maritime pixels where these parameters exhibit much smaller variations than over land. In addition, consistent with the methodology presented in *Ricaud et al.* [2014] to minimize any systematic errors, we mostly analyze seasonal variability of differences such as anomalies and east-west differences over the MB (see section 3.1), assuming that systematic errors are of the same order of magnitude in the eastern and the western MBs.

Since we are interested in the N_2O variability, we determined the anomaly from its respective mean of all N_2O data over the latitude band 15°N–60°N for each year over the period of 2010–2013. This approach has the main advantage of facilitating the comparison between model results and measurements.

2.2. GOSAT N_2O Data Validation

In addition to the theoretical errors analysis presented in section 2.1, we used the HIPPO airborne campaigns to assess the quality of the GOSAT N_2O retrievals. The HIPPO campaigns performed in situ measurements over the Pacific Ocean by using the National Science Foundation's Gulfstream V aircraft. Several aerosols and chemical species including N_2O were measured over a wide range of latitudes (67°S–87°N) and altitudes (600–15,000 m) with vertical profiles every 2.2° of latitude [*Wofsy*, 2011, *Wofsy et al.*, 2012]. HIPPO encompasses five campaigns: HIPPO 1 (January 2009), HIPPO 2 (October–November 2009), HIPPO 3 (March–April 2010), HIPPO 4 (June–July 2011), and HIPPO 5 (August–September 2011). Since our GOSAT data cover the period of 2010–2013, we used the HIPPO campaigns 3–5 to assess the quality of the GOSAT N_2O retrievals (Figure 2). For our comparison, we used the measurements from the Harvard/Aerodyne Quantum Cascade Laser Spectrometer, one of the airborne instruments of HIPPO. This instrument has a 1σ precision of 0.09 ppbv and an accuracy of 0.2 ppbv [*Kort et al.*, 2011].

Each vertical profile from HIPPO is identified by its mean coordinates (latitude, longitude, and time) and is interpolated on the 22 retrieval representative levels of GOSAT. Since HIPPO profiles do not cover the

AGU Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

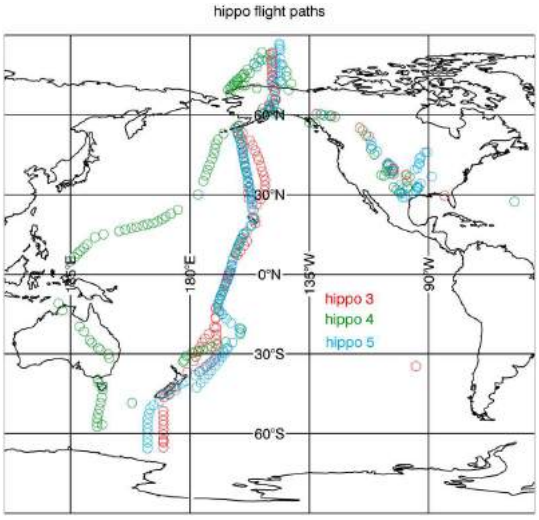


Figure 2. Flight paths of HIPPO campaigns used for GOSAT N_2O validation: HIPPO 3 (March–April 2010, red), HIPPO 4 (June–July 2011, green), and HIPPO 5 (August–September 2011, blue).

entire vertical range of GOSAT retrievals, we extended the HIPPO profiles to the bottom and to the top of the atmosphere by using monthly averaged profiles from LMDz-OR-INCA. However, to minimize the impact of such artificial extension on our validation results and since we are interested in the 314 hPa level, we only took HIPPO profiles with a ceiling pressure of less than 250 hPa and a bottom pressure level of greater than 400 hPa.

To evaluate only the retrieval system and not the instrumental performance of the TANSO-FTS sounder, we applied the GOSAT N_2O averaging kernel to the HIPPO measurements by using the following equation [*Rodgers*, 2000]:

$$\hat{x} = Ax + (I - A)x_a \quad (1)$$

where A is the averaging kernel matrix, I the identity matrix, x_a the a priori profile (the same used for GOSAT retrievals), x the HIPPO profile, and $\hat{x}$ the HIPPO convolved profile. Each HIPPO convolved profile is then compared to the GOSAT measurements in time and space coincidence considering GOSAT maritime profiles within a distance of ±300 km of the HIPPO profile and a temporal window of ±12 h. The standard deviation of the HIPPO N_2O data selected from all of the three campaigns at 314 hPa is ~3.3 ppbv. The standard deviation of the convolved HIPPO N_2O data at 314 hPa is ~2.0 ppbv. Therefore, the vertical sensibility of the GOSAT instrument represented by the averaging kernels tends to underestimate the variability of N_2O at 314 hPa.

Figure 3 shows the comparison between the GOSAT N_2O data retrievals and the HIPPO N_2O at 314 hPa by using 200 coincident pairs with our selection criteria. P_0 = 318.4 ppbv is the intersection point between the regression line and the first bisector (the line $y = x$). The Pearson linear correlation coefficient is about 0.44. The slope of the regression line is about ~0.22 ppbv ppbv^{-1}, which means that the GOSAT N_2O variations are smaller than HIPPO N_2O variations at 314 hPa. GOSAT data underestimate N_2O for volume mixing ratio (vmr) larger than P_0 and conversely for vmr smaller than P_0. This confirms the fact that, in general, the GOSAT retrieval system tends to reduce the amplitude of N_2O variations. Since N_2O is retrieved simultaneously with CH_4 in the GOSAT retrieval system, a strong constraint has been applied on N_2O in order to avoid large oscillations that could impact the CH_4 retrieval product. This strong constraint artificially reduces the GOSAT N_2O variability at 314 hPa.

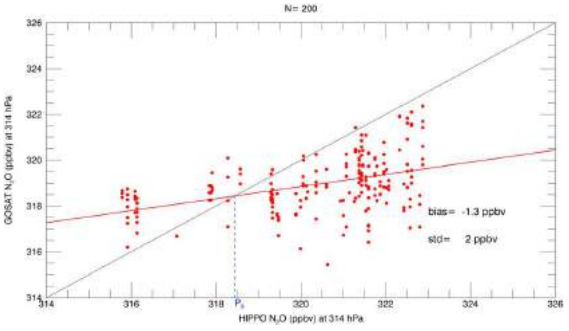


Figure 3. HIPPO (3–5) N_2O airborne measurements versus GOSAT N_2O at 314 hPa in time and space coincidence within a box of ±300 km and ±12 h. N (=200) is the total number of coincident pairs selected. The black and red lines represent the first bisector ($y = x$) and the linear regression line, respectively. The dashed blue line represents the intersection point (P_0 = 318.4 ppbv) of the regression line and the first bisector. Note that we applied the GOSAT averaging kernels on HIPPO observations.

The mean N_2O bias (GOSAT-HIPPO) at 314 hPa is about −1.3 ppbv (~0.4%) because tropospheric N_2O vmr are mostly greater than P_0. Furthermore, since HIPPO measurements have a very good precision (~0.03% at 320 ppbv), the standard deviation of the

Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

GOSAT-HIPPO differences (called hereafter SD error), which is about 2.0 ppbv (~0.6%), can be considered as an estimation of the real random error on an individual GOSAT measurement. This value is small and much less than the theoretical value of 6.4 ppbv (~2%) (see section 2.1) associated with the total random error on a single retrieval.

To conclude, the comparisons with HIPPO data show that the GOSAT N_2O maritime pixels at 314 hPa are of sufficient quality to be used in order to analyze regional and seasonal N_2O variabilities. However, we have to keep in mind that the GOSAT retrieval system tends to underestimate the amplitude of the upper tropospheric N_2O variations. Furthermore, averaging spatially and temporally (between 400 and 900 profiles) over the eastern and the western MBs results in a very small random errors: less than ~0.3 ppbv (~0.09%) for the theoretical error and ~0.1 ppbv for the SD error. Thus, we also have to keep in mind that the error values used in our analysis of N_2O seasonal variabilities are calculated by using the theoretical total random errors which are much more pessimistic than the SD error from the comparison with HIPPO measurements.

2.3. LMDz-OR-INCA

The INteraction between Chemistry and Aerosol (INCA) model coupled with the general circulation model LMDz GCM is used to simulate the distribution of aerosols and gaseous reactive species in the troposphere [*Hauglustaine et al.*, 2004]. In addition, soil/atmosphere exchanges of water and energy are simulated by coupling LMDz with the Organizing Carbon and Hydrology in Dynamic Ecosystems dynamic global vegetation model [*Krinner et al.*, 2005]. Together, these three models form the LMDz-OR-INCA model. The model has a horizontal resolution of 1.26° in latitude and 2.5° in longitude and 39 vertical levels from the surface up to 80 km. The N_2O surface emissions are monthly averages based on *Thompson et al.* [2014] for anthropogenic and natural emissions and on the Global Fire Emissions Database version 4.1 (GFEDv4.1) inventory for biomass burning [*Giglio et al.*, 2013]. The total annual emission rate is 16.08 TgN yr^{-1} in our simulations. Our model is forced dynamically by the meteorological analysis from the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts. We used monthly averaged N_2O outputs covering the period of 2010–2013 together with GOSAT retrievals to assess the impact of Asian summertime emissions on eastern MB upper tropospheric N_2O.

However, in order to assess the impact of improving the horizontal resolution and the surface emission inventories on the modeled N_2O transport, we used in section 4 another configuration of LMDz-OR-INCA referred to as LMDz-OR-INCA low resolution (LMDz-OR-INCA *low res*). LMDz-OR-INCA *low res* has been performed for climate change impact investigations by using different Representative Concentration Pathway scenarios [*Hauglustaine et al.*, 2014]. The horizontal resolution in this configuration is 1.9° in latitude and 3.75° in longitude. This configuration used monthly averaged N_2O surface emissions based on *Bouwman and Taylor* [1996] for anthropogenic and natural emissions and on the Global Fire Emissions Database version 3 inventory for biomass burning [*Van der Werf et al.*, 2010]. The total annual emission rate in this configuration is 13.27 TgN yr^{-1}. The vertical levels are the same in the two configurations.

3. Results

3.1. N_2O Variability Over the Mediterranean Basin

GOSAT and LMDz-OR-INCA anomalies have been calculated for each year from their annual mean over the latitude band 15°N–60°N. These anomalies are averaged monthly from 2010 to 2013 and selected within two boxes (36–45°N, 1–12°E) and (30–37°N, 26–37°E) to represent the western and eastern MBs (black boxes in Figure 4), respectively. Figure 4 shows the N_2O anomaly fields in summer (June, July, and August) and winter (December, January, and February) at 314 hPa observed by GOSAT and calculated by LMDz-OR-INCA. In winter, a very weak positive east-west N_2O difference is measured by GOSAT (~0.7 ppbv) and calculated by the model (~0.15 ppbv) with a larger anomaly over the eastern MB.

In summer, this gradient is enhanced within the two data sets, although it remains less intense in the model (~0.5 ppbv) compared to GOSAT (~1.5 ppbv). Figure 5 shows the seasonal variation of the N_2O anomaly observed by GOSAT and calculated by LMDz-OR-INCA for the two basins. In the GOSAT data, a seasonal cycle is observed in the eastern MB with a maximum in July and a peak-to-peak amplitude of ~1.8 ± 0.4 ppbv, whereas in the western MB, a maximum with a peak-to-peak amplitude of ~0.8 ± 0.4 ppbv is observed in August. The GOSAT peak in July over the eastern MB is sharper than the peak in August over the western

AGU Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

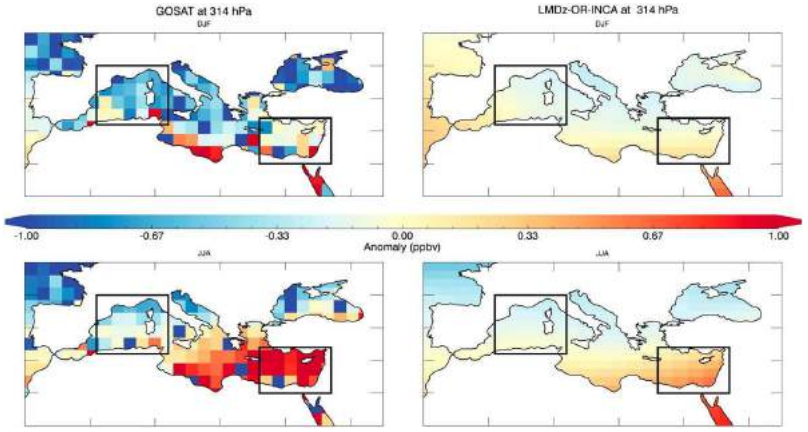


Figure 4. N_2O volume mixing ratio anomaly (ppbv) from (left) GOSAT TANSO-FTS (right) and LMDz-OR-INCA at 314 hPa for (top) December-January-February (DJF) and for (bottom) June-July-August (JJA) averaged over the period of 2010–2013. The satellite measurements and the model outputs are selected within the black boxes to represent the eastern and the western Mediterranean Basins.

MB. The error bars represent the random total errors on monthly averaged N_2O retrievals and indicate the confidence level on the mean value. Despite the small values of the seasonal amplitude, the seasonal cycle is statistically significant regarding measurements errors. Consistently with GOSAT anomalies, a seasonal cycle is also detected in LMDz-OR-INCA data but with a maximum from August to November in the eastern MB and from September to December in the western MB (peak-to-peak amplitude of ~1.5 ppbv in the two basins).

Figure 6 shows the N_2O difference between the eastern and the western MBs at 314 hPa called hereafter east-west difference. In GOSAT data, the monthly averaged east-west difference has no significant variations (~0.4 ± 0.8 ppbv) from January to May and starts to increase in June reaching a peak-to-peak amplitude of ~1.4 ± 0.3 ppbv in July before decreasing until November. The east-west difference in LMDz-OR-INCA follows almost the same seasonal variation but with a peak-to-peak amplitude less intense than in GOSAT (~0.8 ppbv). Although the two data sets are consistent with each other in terms of the seasonal variation of the east-west difference, the amplitude of the seasonal variations and the absolute value of the difference show inconsistencies. These differences are discussed in section 4. We note that the maximum of the east-west difference occurs in July in both the model results and in the GOSAT observations. The processes that govern this summertime N_2O increase over the eastern MB are investigated in the next section.

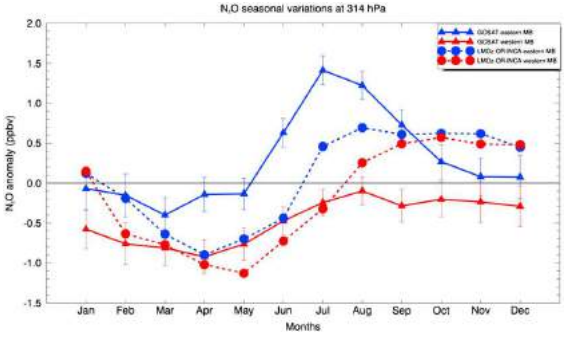


Figure 5. Seasonal variation of the monthly averaged N_2O anomalies (ppbv) from GOSAT TANSO-FTS (solid lines and triangles) and LMDz-OR-INCA (dashed lines and circles) at 314 hPa on the eastern (blue) and western (red) Mediterranean Basins averaged over the period of 2010–2013. The error bars represent the error on the mean considering the theoretical random error of the retrieval and the number of monthly averaged pixels.

3.2. Impact of Asian Summer Monsoon

Due to its particular location, the MB is influenced by several meteorological patterns and air masses originating from Europe, North Africa, the Arabian peninsula, North America, and Asia [*Ricaud et al.*, 2014]. Figure 7 shows the LMDz-OR-INCA northern hemisphere N_2O anomaly and wind patterns representative of the months of July and August (bottom) and the other months (top) over the period of 2010–2013 at 314 hPa.

Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

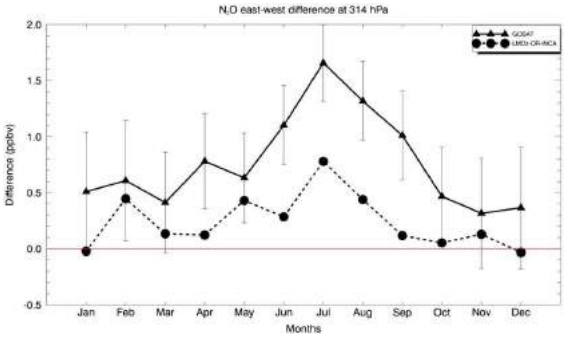


Figure 6. Seasonal variation of the east-west difference of N_2O (ppbv) measured by GOSAT TANSO-FTS (solid line) and calculated by LMDz-OR-INCA (dashed line) at 314 hPa. The error bars represent the error on the mean considering the theoretical random error of the retrieval and the number of monthly averaged pixels.

Upper tropospheric air masses over the eastern and western MBs mainly come from North America and the northern Atlantic throughout the year. But in summer, over the eastern MB, upper tropospheric air masses are mostly transported from Asia through the Asian monsoon anticyclone [*Scheeren et al.*, 2003; *Rodwell and Hoskins*, 1996] and are also influenced by the Arabian Peninsula and North Africa [*Dayan*, 1986*; Tyrlis et al.*, 2013].

The impact of long-range transport of air masses from Asia on the MB explains the maximum in the east-west CH_4 difference in the upper troposphere observed in August [*Ricaud et al.*, 2014]. Westerly circulation brings air masses from the northern Atlantic and North America from January until May. At the beginning of the Asian monsoon period in June, a southerly circulation takes place over the eastern MB, bringing tropical air masses from Asia to the eastern MB. These air masses are enriched in pollutants trapped by the monsoon anticyclone. Thus, pollutants emitted in Asia are transported to the upper troposphere by updrafts associated with the monsoon region and redistributed westward to the eastern MB by the monsoon anticyclone. In the next section, we investigate the different regions of N_2O emissions in Asia.

3.3. Asian N_2O Surface Emissions

The eastern MB air masses come from the Asian anticyclone in summer and are therefore impacted by the N_2O surface emissions from different Asian regions. Figure 8 synthesizes the pressure levels of air masses from 10 day back trajectories covering the period of 2001–2011 (two trajectories per day at 00:00 and 12:00 UTC) in July and in August from the point located at 33°N, 35°E and 300 hPa in the eastern MB. This back trajectory climatology has been performed by using the British Atmospheric Data Centre trajectory service

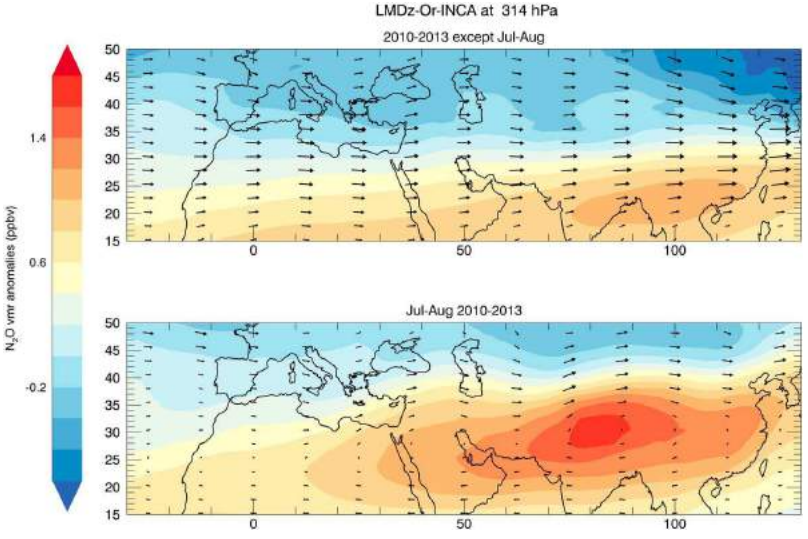


Figure 7. N_2O volume mixing ratio anomaly (ppbv) from LMDz-OR-INCA and horizontal wind from IFS at 314 hPa averaged over (bottom) July and August 2010–2013 and over (top) the other months.

AGU Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

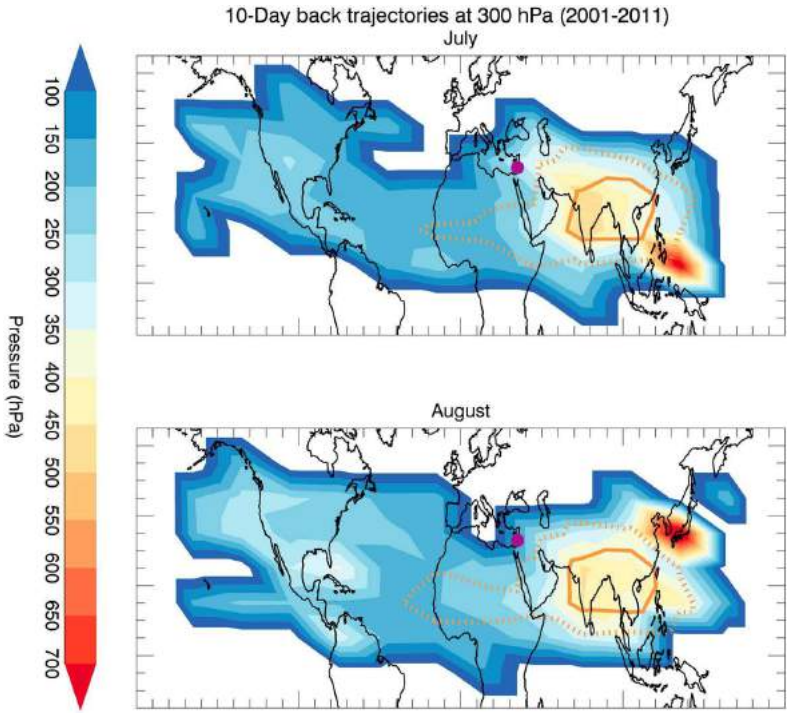


Figure 8. Pressure levels of air masses after 10 day back trajectories from the point located at 33°N, 35°E (purple filled circle) and 300 hPa in the eastern MB from the British Atmospheric Data Centre trajectory service (http://badc.Nerc.Ac.uk/community/trajectory/) in (top) July and in (bottom) August over the period of 2001–2011. The contour lines superimposed to the maps delimit the percentage of air masses reaching the eastern MB at 314 hPa after 10 days of transport: 55% (solid orange line) and 80% (dotted orange line).

(http://badc.nerc.ac.uk/community/trajectory/). The contour lines superimposed to the maps delimit the percentage of air masses reaching the eastern MB at 314 hPa after a transport of 10 days: 55% (solid orange line) and 80% (dotted orange line) of all trajectories (682 trajectories). Since 6 day back trajectories were sufficient to highlight the impact of the Indian subcontinent air masses on the MB [*Ricaud et al.*, 2014], we used 10 day back trajectories to detect the influence of planetary boundary layer sources.

The eastern MB air masses during summer come mostly from southeastern Asian and the Indian/Tibetan Plateau regions in July and August, as shown by the contour lines in Figure 8. However, air masses from the Indian subcontinent come from lower levels (500–550 hPa), whereas those from southeastern Asia come from upper levels (350–400 hPa). The so-called Asian monsoon anticyclone is actually an upper level divergence zone linked to the monsoon convective system and causes strong updrafts in the troposphere [*Randel and Park*, 2006]. Thus, air masses that have their origins in the Indian subcontinent are likely influenced by the boundary layer in the short term (less than 1 month) via the updrafts associated with the upper level divergence zone (referred to as monsoon anticyclone). Figure 9 represents the monthly averaged Asian N_2O emission fluxes used in LMDz-OR-INCA simulations superimposed with the contour lines in Figure 8. The peak of Asian N_2O emissions occurs in July, consistent with the peak of the east-west difference measured by GOSAT and calculated by LMDz-OR-INCA (Figure 6). There are two main regions of emissions: in northern India and in eastern China. The main emission region from eastern China is outside, while the northern Indian region is well inside the contour lines delimiting the main regions of origin of eastern MB air masses. This confirms the fact that upper tropospheric N_2O over the eastern MB in July and August comes mostly from Indian subcontinent N_2O emissions. This hypothesis is consistent with previous work on the Asian monsoon anticyclone composition in July and in August. First, *Vogel et al.* [2015] show that, in July 2012, the contribution of boundary layer sources to the Asian monsoon composition is between 35% and 55% and the

Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

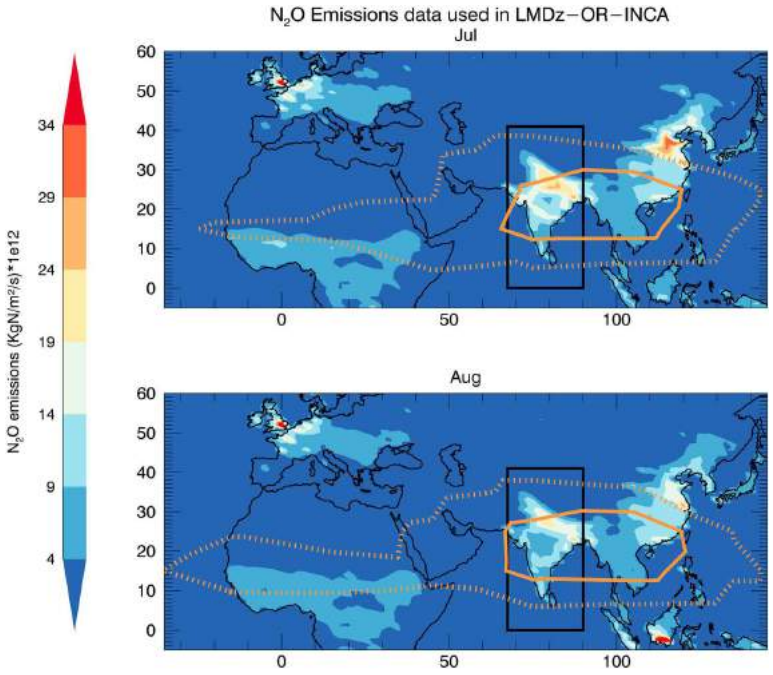


Figure 9. Monthly averaged Asian N_2O surface emission fluxes (kg m^{-2} s^{-1}) used in LMDz-OR-INCA simulations in (top) July and in (bottom) August. The black rectangle (0–41°N, 67.5–90°E) delimits the Indian subcontinent N_2O emission region. The contour lines (see Figure 8) delimit the percentage of air masses reaching the eastern MB at 314 hPa after 10 days of transport: 55% (solid orange line) and 80% (dotted orange line).

contributions of the Indian/Tibetan Plateau region and eastern China are 24% and 10%, respectively. Consequently, in July, the Indian/Tibetan Plateau and eastern China represent 43–68% and 18–28% of the contribution from all boundary layer sources to the Asian monsoon anticyclone, respectively. Second, *Bergman et al.* [2013] show that, in August 2011, the main contributions from the boundary layer sources to the Asian monsoon anticyclone composition are from India/Southeast Asia and the Tibetan Plateau regions (70–80%).

In summary, we showed the predominant contribution of the Indian subcontinent N_2O emissions on the composition of upper tropospheric N_2O over the eastern MB in July and in August. In the next section, we explain the biochemical processes involved in these N_2O emissions.

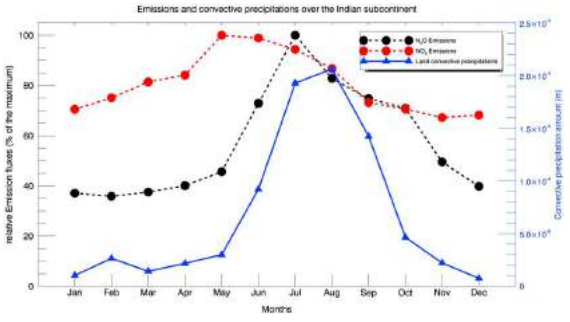


Figure 10. Seasonal variation of monthly averaged N_2O (black) and NO_x (red) relative to surface emission fluxes (emission fluxes divided by the maximum fluxes) used in LMDz-OR-INCA and the convective precipitation amount from the reanalysis ERA-Interim (blue) averaged over the Indian subcontinent (land pixels within the black box of Figure 9). The convective precipitation data are monthly averaged over the period of 2010–2013.

3.4. Emission Processes

The east-west difference of N_2O from GOSAT and LMDz-OR-INCA exhibits a maximum in summer peaking in July, namely, 1 month earlier than the occurrence of a CH_4 maximum analyzed by *Ricaud et al.* [2014]. This is due to environmental parameters such as soil moisture that influence N_2O emissions. Soil ability to emit N_2O can be characterized by analyzing the nitrification and the denitrification processes [*Qu et al.*, 2014]. Since intensified agriculture, characterized by high nitrogen fertilizer

AGU Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

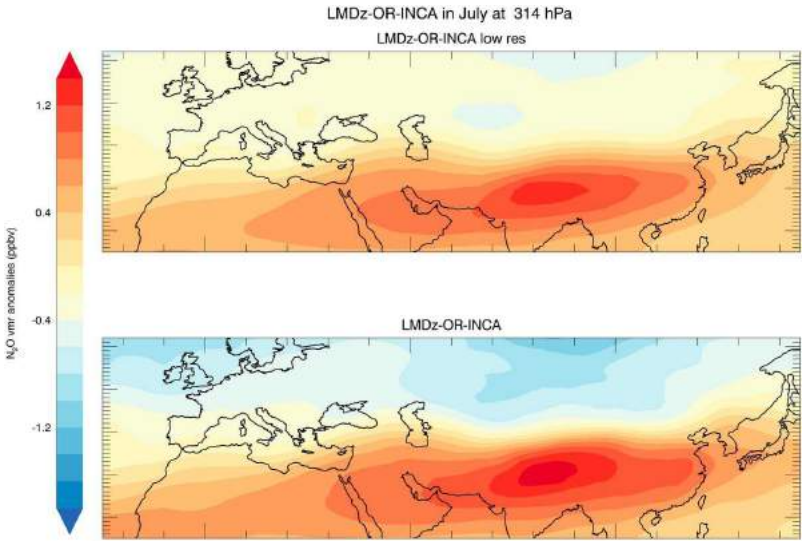


Figure 11. Monthly averaged N_2O volume mixing ratio anomaly (ppbv) from (top) LMDz-OR-INCA *low res* and (bottom) LMDz-OR-INCA at 314 hPa in July over the period of 2010–2013.

levels, are replacing traditional farming in many South Asian countries [*Rasul and Thapa*, 2003], the denitrification process is enhanced by the use of nitrogen fertilizers leading to an increase of N_2O emissions to the atmosphere [*Solomon et al.*, 2007]. N_2O emissions are positively correlated with soil moisture [*Raut et al.*, 2015], and the relative soil nitrogen emissions (NO, HONO, and N_2O) critically depend on the SWC [*Oswald et al.*, 2013] favoring NO and HONO when SWC ranges from 5 to 40% and favoring N_2O when SWC ranges from 40 to 70%. Thus, the South Asian region is a hot spot of N_2O emissions, especially during summertime when high precipitation events occur. Figure 10 shows the convective precipitation from the reanalysis ERA-Interim [*Dee et al.*, 2011] over the Indian subcontinent (land pixels within the black box in Figure 9) and the monthly averaged N_2O and nitrogen oxide (NO_x) emission fluxes used in LMDz-OR-INCA in this region. In addition to the rainfall information, the convective precipitation can be considered as a footprint of the presence and intensity of the updrafts associated with the Indian monsoon. The Indian subcontinent convective precipitation shows a maximum in July–August. The N_2O surface emissions over this region are highly correlated with precipitation with a maximum in summer and peaking in July. Actually, NO_x emissions peak in May–June, while N_2O emissions peak 1 month later in July (Figure 10). This time lag results from the processes occurring in the soil. Prior to the monsoon period, when SWC is low, a large amount of fertilizer is used in the Indian subcontinent and the surplus of nitrogen in soil mostly produces emissions of the nitrogen compounds NO and HONO. The emissions of NO are represented by NO_x emissions since NO is predominant in emissions of NO_x from soil [*Bertram et al.*, 2005]. During the Indian monsoon period, intense precipitation increases the soil humidity, and once the SWC reaches ~40% [*Oswald et al.*, 2013], N_2O becomes the dominant nitrogen compound emitted. Thus, if a peak in NO_x emissions is reached in June [*Ghude et al.*, 2010] through nitrification processes, it takes few days or weeks for the soil to have enough humidity over the entire Indian subcontinent and for microbial processes to get involved in the production and release of N_2O in the atmosphere through nitrification and denitrification processes [*Smith and Tiedje*, 1979]. This explains the July peak in N_2O emissions. Consequently, the measurements of N_2O in the upper troposphere over the eastern MB in summer (June-July-August, JJA) can be considered as a footprint of the N_2O emissions over the Asian and especially the Indian subcontinent regions. This is all the more interesting, as this region is difficult to observe from space in summer because of cloudy conditions associated with the monsoon system. It is valuable to examine another source of information to estimate the accumulation of N_2O in the Asian monsoon anticyclone and then to improve the estimation of N_2O emissions from agriculture over Asia.

AGU Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

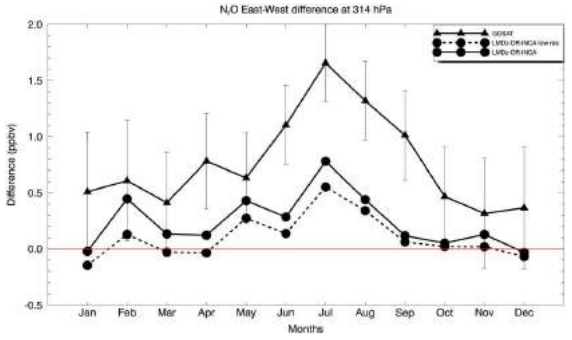


Figure 12. Seasonal variation of the east-west difference of N_2O (ppbv) measured by GOSAT/TANSO-FTS (solid line with triangles) and calculated by LMDz-OR-INCA (solid line with circles) and LMDz-OR-INCA *low res* (dashed line with circles) at 314 hPa over the period of 2010–2013. The error bars represent the error on the mean considering the total random errors of the retrieval and the number of monthly averaged values.

4. Discussion

Although measured and modeled east-west differences peak in July (Figure 6), the amplitude is twice as large in the GOSAT measurements than in the model outputs. To understand the possible reasons of these differences, we studied some parameters that impact the east-west difference in the model and in the GOSAT data sets.

In the model data, the east-west difference is affected by at least two factors: the emission sources, including the magnitude of emissions as well as the spatial distribution, and the horizontal resolution of the transport model.

To illustrate the impact of the horizontal resolution and the emission sources on the estimated east-west difference, we have compared the results from two different configurations of the model (LMDz-OR-INCA and LMDz-OR-INCA *low res*) as described in section 2.3. The global total emission rate in LMDz-OR-INCA is about 23% greater than in LMDz-OR-INCA *low res*. Over the Indian subcontinent (black box in Figure 9) in July, the emission rate in LMDz-OR-INCA is about 7% higher than in LMDz-OR-INCA *low res*. Figure 11 shows the northern hemisphere N_2O anomaly in July 2010–2013 at 314 hPa for LMDz-OR-INCA and LMDz-OR-INCA *low res*, and Figure 12 shows the east-west difference of GOSAT, LMDz-OR-INCA, and LMDz-OR-INCA *low res*. The N_2O vmr maxima and gradient in the Asian monsoon are more intense in LMDz-OR-INCA than in LMDz-OR-INCA *low res*. Consistently, the peak-to-peak amplitude of the east-west difference (Figure 12) is more intense in LMDz-OR-INCA (~0.8 ppbv) than in LMDz-OR-INCA *low res* (0.7 ppbv).

Since there is still a significant difference between the peak-to-peak amplitudes observed by GOSAT and calculated by LMDz-OR-INCA (1.8 ppbv and 1.5 ppbv, respectively), the N_2O emission fluxes could be larger over Asia than the fluxes fixed in the emission inventory used by LMDz-OR-INCA. The inaccurate understanding of some processes such as soil acidification involved in soil N_2O emission leads generally to an underestimation of the emission factor used to estimate soil emissions from agriculture [*Raut et al.*, 2015]. Consequently, this generates an underestimation of N_2O emission fluxes, which are linearly affected by the emission factors [*Dobbie et al.*, 1999]. There is also evidence of an underestimation of N_2O emissions at very high N-fertilizer application rates due to a nonlinear relationship between N-fertilizer and N_2O emissions [*Shcherbak et al.*, 2014].

In addition to the emission sources, the horizontal resolution of the model could likely play a role in the model east-west difference. *Bergman et al.* [2013] showed that the contribution of Indian boundary layer sources to the Asian monsoon anticyclone composition in August is less intense for a lower resolution of the dynamical model. This is due to the fact that the finer the horizontal resolution, the better the representation of mesoscale convection and therefore the more efficient the vertical transport processes to bring N_2O-enriched air masses into the upper troposphere. Moreover, the horizontal transport of air masses is also improved and better represented in the high-resolution model than in the coarser resolution model.

In the GOSAT data, the east-west difference is affected by the vertical sensitivity of the measurements. As we have already noted in section 2.2, applying GOSAT optimal estimation formalism (cf. equation (1)) to HIPPO measurements significantly reduces N_2O variability. Thus, to assess the impact of the vertical sensitivity of the measurements (represented by the averaging kernels in Figure 1) on the observed east-west difference, we applied the GOSAT averaging kernels to LMDz-OR-INCA outputs by using equation (1). The result in terms of east-west difference is shown in Figure 13. The smoothing of the model's vertical resolution by the application of GOSAT averaging kernels tends to reduce the variations in east-west difference. Although the difference still peaks in July, the peak-to-peak amplitude decreases from 0.8 to 0.4 ppbv. Actually, the east-west

AGU Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

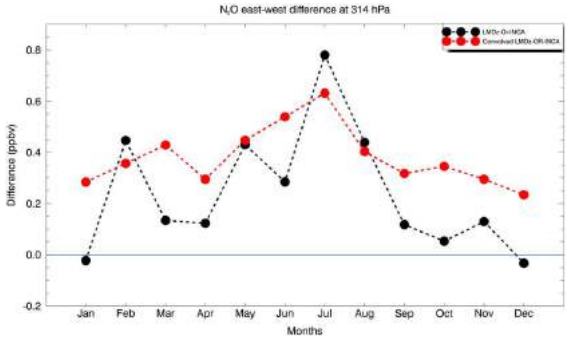


Figure 13. Seasonal variations of the east-west differences calculated by LMDz-OR-INCA (black) and LMDz-OR-INCA convolved by the GOSAT averaging kernels (red) monthly averaged over the period of 2010–2013.

differences are higher all year long in the convolved model than in the original, but the peak in July is less marked in the convolved model than in the original. These changes in the seasonal variability of the east-west difference can be understood when analyzing the broad width of the 314 hPa averaging kernel peak (Figure 1). The convolved LMDz-OR-INCA N_2O data at 314 hPa are also sensitive to higher and lower levels. Since the N_2O east-west difference variability is smaller in LMDz-OR-INCA at lower levels (e.g., a peak-to-peak amplitude of ~0.2 ppbv at 502 hPa, not shown) than in the upper troposphere, the impact of lower levels tends to decrease the variability of the east-west difference at 314 hPa. Moreover, because the western MB is located at higher latitudes than the eastern MB (see Figure 4), the convolved model at 200 hPa is influenced more by stratospheric N_2O in the western MB than in the eastern MB. Since N_2O vmr decreases with height in the stratosphere, the impact of the influence of stratospheric N_2O tends to increase the east-west difference at 314 hPa all year long. Similarly, we can consider that the amplitude of the east-west difference variations observed in GOSAT underestimates the real variations in amplitude and the positive east-west difference observed all year long is also likely due to the vertical sensitivity of the GOSAT measurements.

5. Conclusion

We used global-scale measurements of upper tropospheric N_2O from the GOSAT TANSO-FTS satellite instrument and outputs from the chemical transport model LMDz-OR-INCA to evaluate the impact of the Asian N_2O emissions on the N_2O distribution in the MB during summer. We assessed the quality of the GOSAT upper tropospheric N_2O retrievals by using the HIPPO airborne campaigns. This validation indicated an SD error of about 2.0 ppbv for a single pixel and a mean bias of about −1.3 ppbv (approximately −0.4%). Since we used monthly and regional means, this SD error is reduced to ~0.1 ppbv. The SD error deduced from the comparisons with HIPPO data is about 3 times less than the theoretical random errors used in this paper to analyze the significance of the seasonal variations.

The GOSAT and LMDz-OR-INCA monthly averaged upper tropospheric N_2O (2010–2013) over the MB have a significant seasonal cycle with a strong increase in summer. The eastern MB is highly enriched in N_2O producing a peak in July in the east-west difference of N_2O over the MB as calculated by the model and as observed by GOSAT. This is due to the impact of air masses originated from Asia and transported over the eastern MB through the Asian monsoon anticyclone. Back trajectory calculations also showed that the main sources of eastern MB upper tropospheric N_2O in summer come from the Indian subcontinent region where high emissions occur during the monsoon period. These high N_2O emissions are due to the high precipitation associated with the monsoon and combined with heavy use of fertilizers, since N_2O emissions occur under conditions of high SWC.

Since the summertime maximum over the eastern MB is linked to the maximum of N_2O surface emissions over Asia and mainly the Indian subcontinent, the eastern MB can therefore be used as a footprint of summertime N_2O emissions over this region. However, the east-west difference peak in July is almost twice as large in GOSAT (~1.4 ppbv) than in LMDz-OR-INCA (~0.8 ppbv). This is likely due to an underestimation of the N_2O Indian subcontinent emission sources and a relatively coarse horizontal resolution in the model that affects the efficiency of the vertical transport within the Asian monsoon Anticyclone. In addition, the application of the averaging kernels from GOSAT to the model tends to reduce the east-west N_2O difference variations likely due to the low vertical sensitivity of the satellite measurements (represented by the averaging kernel).

AGU Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

One major outcome of this study is that the use of current GOSAT N_2O measurements over the MB can help to improve the estimation of N_2O emissions over Asia and especially the Indian subcontinent in a top-down emission estimation strategy. Moreover, tropospheric N_2O satellite measurements are made difficult in summer over Asia due to cloudy conditions associated with the monsoon period. In such case, upper tropospheric N_2O measurements over the MB could be the best alternative to estimate the N_2O accumulation in the Asian summer monsoon anticyclone and then to assess the surface emissions that caused this accumulation.

Acknowledgments
We would like to thank the following institutes and programs for funding our study: Centre National de la Recherche Scientifique-Institut National des Sciences de l'Univers (CNRS-INSU), Centre National des Etudes Spatiales (CNES), Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) through the program the Mediterranean Integrated Studies at Regional And Local Scales (MISTRALS), Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment (ChArMEx), Météo-France, and Airbus Defense and Space for funding Y. Kangah's PhD thesis and the Greenhouse gases Observing SATelite (GOSAT) Research Announcement (RA) Initiative. The GOSAT N_2O data can be obtained by contacting Naoko Saitoh via e-mail at nsaitoh@faculty.chiba-u.jp. The chemical model INCA can be downloaded from http://forge.ipsl.jussieu.fr/inca, and the LMDz-OR-INCA N_2O data used in this paper can be obtained by contacting Didier Hauglustaine via e-mail at didier.hauglustaine@lsce.ipsl.fr. We finally would like to thank the three anonymous reviewers for their fruitful comments.

References

Bergman, J. W., F. Fierli, E. J. Jensen, S. Honomichl, and L. L. Pan (2013), Boundary layer sources for the Asian anticyclone: Regional contributions to a vertical conduit, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *118*, 2560–2575, doi:10.1002/jgrd.50142.

Bertram, T. H., A. Heckel, A. Richter, J. P. Burrows, and R. C. Cohen (2005), Satellite measurements of daily variations in soil NO_x emissions, *Geophys. Res. Lett.*, *32*, L24812, doi:10.1029/2005GL024640.

Bouwman, A., and J. Taylor (1996), Testing high-resolution nitrous oxide emission estimates against observations using an atmospheric transport model, *Global Biogeochem. Cycles*, *10*(2), 307–318, doi:10.1029/96GB00191.

Butterbach-Bahl, K., and M. Dannenmann (2011), Denitrification and associated soil N_2O emissions due to agricultural activities in a changing climate, *Curr. Opin. Environ. Sustainability*, *3*(5), 389–395, doi:10.1016/j.cosust.2011.08.004.

Butterbach-Bahl, K., E. M. Baggs, M. Dannenmann, R. Kiese, and S. Zechmeister-Boltenstern (2013), Nitrous oxide emissions from soils: How well do we understand the processes and their controls?, *Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. B*, *368*(1621), 20,130,122, doi:10.1098/rstb.2013.0122.

Ciais, P., et al. (2014), Carbon and other biogeochemical cycles, in *In Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, pp. 465–570, Cambridge Univ. Press, Cambridge, U. K.

Claeyman, M., et al. (2011), A geostationary thermal infrared sensor to monitor the lowermost troposphere: O_3 and co retrieval studies, *Atmos. Meas. Tech.*, *4*(2), 297–317, doi:10.5194/amt-4-297-2011.

Dayan, U. (1986), Climatology of back trajectories from Israel based on synoptic analysis, *J. Clim. Appl. Meteorol.*, *25*(5), 591–595, doi:10.1175/1520-0450(1986)025.

Dee, D., et al. (2011), The ERA-Interim reanalysis: Configuration and performance of the data assimilation system, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, *137*(656), 553–597, doi:10.1002/qj.828.

Dobbie, K., I. McTaggart, and K. Smith (1999), Nitrous oxide emissions from intensive agricultural systems: Variations between crops and seasons, key driving variables, and mean emission factors, *J. Geophys. Res.*, *104*(D21), 26,891–26,899, doi:10.1029/1999JD900378.

Eguchi, N., and T. Yokota (2008), Investigation of clearsky occurrence rate estimated from CALIOP and MODIS observations, *Geophys. Res. Lett.*, *35*, L23816, doi:10.1029/2008GL035897.

Ghude, S. D., D. Lal, G. Beig, R. van der A, and D. Sable (2010), Rain-induced soil NO_x emission from India during the onset of the summer monsoon: A satellite perspective, *J. Geophys. Res.*, *115*, D16304, doi:10.1029/2009JD013367.

Giglio, L., J. T. Randerson, and G. R. Werf (2013), Analysis of daily, monthly, and annual burned area using the fourth-generation global fire emissions database (GFED4), *J. Geophys. Res. Biogeosci.*, *118*, 317–328, doi:10.1002/jgrg.20042.

Hamazaki, T., Y. Kaneko, A. Kuze, and K. Kondo (2005), Fourier transform spectrometer for Greenhouse gases Observing SATellite (GOSAT), in Fourth International Asia-Pacific Environmental Remote Sensing Symposium 2004: Remote Sensing of the Atmosphere, Ocean, Environment, and Space, pp. 73–80, International Society for Optics and Photonics, doi:10.1117/12.581198.

Hauglustaine, D., F. Hourdin, L. Jourdain, M.-A. Filiberti, S. Walters, J.-F. Lamarque, and E. Holland (2004), Interactive chemistry in the laboratoire de météorologie dynamique general circulation model: Description and background tropospheric chemistry evaluation, *J. Geophys. Res.*, 109, D04314, doi:10.1029/2003JD003957.

Hauglustaine, D., Y. Balkanski, and M. Schulz (2014), A global model simulation of present and future nitrate aerosols and their direct radiative forcing of climate, *Atmos. Chem. Phys.*, *14*(5), 11,031–11,063, doi:10.5194/acp-14-11031-2014.

Ishida, H., and T. Y. Nakajima (2009), Development of an unbiased cloud detection algorithm for a spaceborne multispectral imager, *J. Geophys. Res.*, *114*, D07206, doi:10.1029/2008JD010710.

Ishida, H., T. Y. Nakjima, T. Yokota, N. Kikuchi, and H. Watanabe (2011), Investigation of GOSAT TANSO-CAI cloud screening ability through an intersatellite comparison, *J. Appl. Meteorol. Climatol.*, *50*(7), 1571–1586, doi:10.1175/2011JAMC2672.1.

Kort, E., et al. (2011), Tropospheric distribution and variability of N_2O: Evidence for strong tropical emissions, *Geophys. Res. Lett.*, *38*, L15806, doi:10.1029/2011GL047612.

Krinner, G., N. Viovy, N. de Noblet-Ducoudre, J. Ogee, J. Polcher, P. Friedlingstein, P. Ciais, S. Sitch, and I. C. Prentice (2005), A dynamic global vegetation model for studies of the coupled atmosphere-biosphere system, *Global Biogeochem. Cycles*, *19*, GB1015, doi:10.1029/2003GB002199.

Kuze, A., H. Suto, M. Nakajima, and T. Hamazaki (2009), Thermal and near infrared sensor for carbon observation Fourier-transform spectrometer on the Greenhouse gases Observing SATellite for greenhouse gases monitoring, *Appl. Opt.*, *48*(35), 6716–6733, doi:10.1364/AO.48.006716.

Minschwaner, K., R. Salawitch, and M. McELroy (1993), Absorption of solar radiation by O_2: Implications for O_3 and lifetimes of N_2O, $CFCL_3$ and CF_2CL_2, *J. Geophys. Res.*, *98*(D6), 10,543–10,561, doi:10.1029/93JD00223.

Oswald, R., et al. (2013), HONO emissions from soil bacteria as a major source of atmospheric reactive nitrogen, *Science*, *341*(6151), 1233–1235, doi:10.1126/science.1242266.

Qu, Z., J. Wang, T. Almøy, and L. R. Bakken (2014), Excessive use of nitrogen in Chinese agriculture results in high $N_2O/(N_2O + N_2)$ product ratio of denitrification, primarily due to acidification of the soils, *Global Change Biol.*, *20*(5), 1685–1698, doi:10.1111/gcb.12461.

Randel, W. J., and M. Park (2006), Deep convective influence on the Asian summer monsoon anticyclone and associated tracer variability observed with Atmospheric Infrared Sounder (AIRS), *J. Geophys. Res.*, *111*, D12314, doi:10.1029/2005JD006490.

Rasul, G., and G. Thapa (2003), Shifting cultivation in the mountains of South and Southeast Asia: Regional patterns and factors influencing the change, *Land Degrad. Dev.*, *14*(5), 495–508, doi:10.1002/ldr.570.

Raut, N., B. K. Sitaula, L. R. Bakken, R. M. Bajracharya, and P. Dörsh (2015), Higher N_2O emission by intensified crop production in South Asia, *Global Ecol. Conserv.*, *4*, 176–184, doi:10.1016/j.gecco.2015.06.004.

AGU Journal of Geophysical Research: Atmospheres 10.1002/2016JD026119

Ravishankara, A., J. S. Daniel, and R. W. Portmann (2009), Nitrous oxide (N_2O): The dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century, *Science*, *326*(5949), 123–125, doi:10.1126/science.1176985.

Ricaud, P., J.-L. Attié, H. Teyssedre, L. E. Amraoui, V.-H. Peuch, M. Matricardi, and P. Schluessel (2009), Equatorial total column of nitrous oxide as measured by IASI on METOP-A: Implications for transport processes, *Atmos. Chem. Phys.*, *9*(12), 3947–3956, doi:10.5194/acp-9-3947-2009.

Ricaud, P., et al. (2014), Impact of the Asian monsoon anticyclone on the variability of mid-to-upper tropospheric methane above the Mediterranean Basin, *Atmos. Chem. Phys.*, *14*(20), 11,427–11,446, doi:10.5194/acp-14-11427-2014.

Rodgers, C. D. (2000), *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, vol. 2, pp. 43–63, World scientific, Singapore.

Rodwell, M. J., and B. J. Hoskins (1996), Monsoons and the dynamics of deserts, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, *122*(534), 1385–1404, doi:10.1002/qj.49712253408.

Saitoh, N., R. Imasu, Y. Ota, and Y. Niwa (2009), CO_2 retrieval algorithm for the thermal infrared spectra of the Greenhouse gases Observing SATellite: Potential of retrieving CO_2 vertical profile from high-resolution FTS sensor, *J. Geophys. Res.*, 114, D17305, doi:10.1029/2008JD011500.

Saitoh, N., et al. (2016), Algorithm update of the GOSAT/TANSOFTS thermal infrared CO_2 product (version 1) and validation of the UTLS CO_2 data using contrail measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, *9*(5), 2119–2134, doi:10.5194/amt-9-2119-2016.

Scheeren, H., et al. (2003), The impact of monsoon outflow from India and Southeast Asia in the upper troposphere over the eastern Mediterranean, *Atmos. Chem. Phys.*, *3*(5), 1589–1608, doi:10.5194/acp-3-1589-2003.

Shcherbak, I., N. Millar, and G. P. Robertson (2014), Global metaanalysis of the nonlinear response of soil nitrous oxide (N_2O) emissions to fertilizer nitrogen, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, *111*(25), 9199–9204, doi:10.1073/pnas.1322434111.

Smith, M. S., and J. M. Tiedje (1979), Phases of denitrification following oxygen depletion in soil, *Soil Biol. Biochem.*, *11*(3), 261–267, doi:10.1016/0038-0717(79)90071-3.

Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K. Averyt, M. Tignor, and H. Miller (2007), Contribution of working group I to the fourth assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, 2007.

Syakila, A., and C. Kroeze (2011), The global nitrous oxide budget revisited, *GHG Meas. Manage.*, *1*(1), 17–26, doi:10.3763/ghgmm.2010.0007.

Thompson, R. L., et al. (2014), Transcom N_2O model inter-comparison—Part 1: Assessing the influence of transport and surface fluxes on tropospheric N_2O variability, *Atmos. Chem. Phys.*, *14*(8), 4349–4368, doi:10.5194/acp-14-4349-2014.

Tsutsumi, Y., K. Mori, T. Hirahara, M. Ikegami, and T. J. Conway (2009), Technical report of global analysis method for major greenhouse gases by the World Data Center for Greenhouse Gases, WMO/TD, (1473).

Tyrlis, E., J. Lelieveld, and B. Steil (2013), The summer circulation over the eastern Mediterranean and the Middle East: Influence of the South Asian monsoon, *Clim. Dyn.*, *40*(5–6), 1103–1123, doi:10.1007/s00382-012-1528-4.

van der Werf, G. R., et al. (2010), Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009), *Atmos. Chem. Phys.*, *10*(23), 11,707–11,735, doi:10.5194/acp-10-11707-2010.

Vogel, B., G. Gunther, R. Muller, J.-U. Grooß, and M. Riese (2015), Impact of different Asian source regions on the composition of the Asian monsoon anticyclone and of the extratropical lowermost stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, *15*(23), 13,699–13,716, doi:10.5194/acp-15-13699-2015.

Wofsy, S. C. (2011), HIAPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO): Fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols, *Philos. Trans. R. Soc. London A*, *369*(1943), 2073–2086, doi:10.1098/rsta.2010.0313.

Wofsy, S. C., et al. (2012), HIPPO merged 10-second meteorology, atmospheric chemistry, Aerosol data (R_20121129), Carbon Dioxide Inf. Anal. Cent., Oak Ridge Natl. Lab., Oak Ridge, Tenn., doi:10.3334/CDIAC/hippo_010.

Xiong, X., E. S. Maddy, C. Barnet, A. Gambacorta, P. K. Patra, F. Sun, and M. Goldberg (2014), Retrieval of nitrous oxide from Atmospheric Infrared Sounder: Characterization and validation, *J. Geophys. Res. Atmos.*, *119*, 9107–9122, doi:10.1002/2013JD021406.

Yokota, T., Y. Yoshida, N. Eguchi, Y. Ota, T. Tanaka, H. Watanabe, and S. Maksyutov (2009), Global concentrations of CO_2 and CH_4 retrieved from GOSAT: First preliminary results, *Sola*, *5*, 160–163, doi:10.2151/sola.2009-041.

Zander, R., E. Mahieu, P. Demoulin, P. Duchatelet, et al. (2005), Evolution of a dozen non-CO_2 greenhouse gases above central Europe since mid-1980s, *Environ. Sci.*, *2*(2–3), 295–303.

Chapitre 4

Restitution des profils de N_2O à partir des observations du capteur spatial IASI

Ce chapitre s'appuie sur un article en cours de soumission et portant sur la restitution des profils de N_2O à partir des radiances observées par l'instrument IASI. La section 4.1 présente un résumé étendu de l'article tandis que la section 4.2 contient le texte intégral de l'article.

4.1 Résumé étendu de l'article

Le but de cet article est de présenter une méthode de restitution des profils de N_2O à partir des radiances observées par IASI. Nous avons ensuite effectué une validation empirique de profils restitués par cet algorithme en les comparant avec les mesures des campagnes HIPPO. La validité scientifique des estimations a ensuite été prouvée notamment en ce qui concerne le transport longue distance du N_2O. Comme nous l'avons vu précédemment (cf. 2.2.3), IASI est un sondeur Infrarouge dont la gamme spectrale (3.6-15.5 μm) contient des bandes d'absorption de plusieurs constituants atmosphériques dont le N_2O. Le Jacobien du N_2O sur l'ensemble des canaux IASI présente trois principales bandes d'absorption : B1 (7.6-8.0 μm), B2 (4.4-4.6μm) et B3 (3.8-4.0μm). B2 est la bande d'absorption la plus intense avec une sensibilité allant des couches les plus basses de l'atmosphère jusqu'à 100 hPa tandis que l'absorption dans B1 se fait de 800 hPa à 100 hPa. La bande B3 est beaucoup moins intense que les deux autres et présente

une sensibilité de 900 à 300 hPa. Il ressort d'une étude de sensibilité, que les bandes B1 et B2 sont très influencées par la température de l'air et dans une moindre mesure par les paramètres de surface (température et émissivité de surface). On a en plus dans B1 l'influence du H_2O et du CH_4. Il est également à noter le niveau très élevé du bruit radiométrique dans B2. En effet les variations de température de brillance induites par le bruit instrumental dans B2 équivalent à celles induites par une variation de 4% sur tout le profil de N_2O. Nous avons sélectionné pour notre système d'inversion 126 canaux IASI dans B1 et 103 canaux dans B2. Aucun canal n'a été sélectionné dans la bande B3 du fait du niveau trop élevé du bruit instrumental qui s'y trouve. Afin de prendre en compte toutes les sources de variations des radiances dans chacune des bandes, nous avons opté pour la technique de restitution simultanée. Ainsi dans B1, les profils de N_2O sont restitués simultanément avec les profils de H_2O, de température, de CH_4 et avec les paramètres de surface tandis que, dans B2, les profils de N_2O sont restitués simultanément avec les profils de H_2O, de température, de CO, de CO_2 et avec les paramètres de surface. Nous nommerons N_2O_B1 et N_2O_B2 les profils de N_2O restitués en utilisant les canaux sélectionnés respectivement dans B1 et B2. La méthode utilisée pour la restitution est basée sur le schéma itératif de Levenberg-Marquardt (cf. 2.4.2). En plus du χ^2 normalisé (par la somme de la dimension du vecteur d'état et du nombre de canaux) qui fournit un critère de qualité sur tout le vecteur d'état, nous avons défini un χ^2 réduit nommé $\chi^2_{N_2O}$ qui fournit un critère de qualité sur le seul profil de N_2O. En plus de ces deux paramètres, nous avons également défini un facteur de contamination (noté CF) afin d'évaluer l'impact des autres paramètres restitués sur les profils estimés de N_2O. Après une étude de sensibilité, nous avons fixé à 4 les valeurs de χ^2 et de $\chi^2_{N_2O}$ à partir desquelles le résultat de l'inversion est rejeté car considéré comme aberrant. La comparaison avec les mesures HIPPO ont permis d'estimer l'erreur (en écart-type) à 1.5 Nous avons restitué 26850 profils le long des trajectoires des campagnes HIPPO en vue d'effectuer une validation empirique du système d'inversion. En moyenne, les fonctions de balayage de N_2O_B1 et de N_2O_B2 ont leur maximum de sensibilité au niveau de restitution 309 hPa. Ce niveau est donc considéré comme le niveau de référence pour l'analyse de N_2O_B1 et N_2O_B2. Cependant, les valeurs des fonctions de balayage de N_2O_B1 sont bien plus élevées que celle de N_2O_B2. Ainsi les DOF moyens de N_2O_B1 et N_2O_B2 sont respectivement 1.38 et 0.93,

traduisant ainsi un effet de lissage plus grand sur N_2O_B2 par rapport à N_2O_B1. Une validation plus spécifique des estimations a été effectuée à 309 hPa en employant la méthodologie adoptée dans Kangah et al. (2017) et qui consiste à comparer les estimations aux données in-situ auxquelles ont été préalablement appliquées les erreurs de lissage. Il vient de cette comparaison que N_2O_B1 et N_2O_B2 restituent correctement les variations de N_2O en haute troposphère en témoignent notamment des biais moyens très faibles (-1.6 ppbv pour N_2O_B1 et 0.3 ppbv pour N_2O_B2). Cependant, on constate dans les tropiques, une surestimation des variations de N_2O par N_2O_B2 mise en évidence par des valeurs élevées de la pente de la droite de régression linéaire (> 2.5) entre N_2O_B2 et les mesures HIPPO. N_2O_B1 est quant à lui parfois perturbé par les effets de la contamination du H_2O. Ces perturbations se traduisent notamment par des valeurs très élevées du facteur de contamination du H_2O. En ce qui concerne la validité scientifique des restitutions, nous avons d'abord montré que les variations de N_2O_B1 et N_2O_B2 aux moyennes latitudes étaient impactées, d'une part, par l'air stratosphérique du fait de la forme des fonctions de balayages à 309 hPa et, d'autre part, par l'air (appauvri en N_2O) en provenance des hautes latitudes. De plus, nous avons montré que le transport de N_2O entre l'Asie et l'est du bassin méditerranéen pouvait être observé en utilisant N_2O_B2 à une échelle journalière. N_2O_B1 permet également d'observer ce genre de processus de transport avec quelques limitations dues à la contamination du H_2O dans les tropiques. Par conséquent, à ce stade de développement du système d'inversion, le N_2O restitué en utilisant B1 et B2 offre la possibilité inédite d'étudier le N_2O en haute troposphère à l'échelle globale et journalière. Cet algorithme pourrait donc servir à restituer des profils de N_2O en utilisant les 10 années d'observations du capteur IASI.

4.2 Article 2

IASI nitrous oxide (N_2O) retrievals: validation and application to transport studies at daily time scales

Yannick Kangah[1], Philippe Ricaud[1], Jean-Luc Attié[2], Naoko Saitoh[3], Jérôme Vidot[4], Pascal Brunel[4], and Samuel Quesada-Ruiz[1]

[1]CNRM-GAME, Météo-France/CNRS UMR 3589, Toulouse, France
[2]Université de Toulouse, Laboratoire d'Aérologie, CNRS UMR 5560, Toulouse, France
[3]Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University, Japan
[4]Centre de Météorologie Spatiale,DP/Météo-France, Lannion, France

Correspondence to: Yannick Kangah (yannick.kangah@umr-cnrm.fr)

Abstract. The aim of this paper is to present a method to retrieve nitrous oxide (N_2O) vertical profiles from the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) onboard the MetOp platform. We retrieved N_2O profiles using IASI clear sky radiances in 2 spectral bands: B1 and B2 centered at $\sim$1280 cm^{-1} and $\sim$2220 cm^{-1}, respectively. Both retrievals in B1 and B2 (hereafter referred to as N_2O_B1 and N_2O_B2, respectively) are sensitive to the mid-to-upper troposphere with a maximum of sensitivity at around 309 hPa. The degrees of freedom for N_2O_B1 and N_2O_B2 are 1.38 and 0.93, respectively. We validated the retrievals using the High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations (HIPPO). The comparisons between HIPPO and the two retrieved datasets show relatively low standard deviation errors around 1.5% ($\sim$4.8 ppbv) and 1.0% ($\sim$3.2 ppbv) for N_2O_B1 and N_2O_B2, respectively. However, the impact of H_2O contamination on N_2O_B1 due to its strong absorption bands in B1 significantly degrades the quality of the retrievals in tropical regions. We analysed the scientific consistency of the retrievals at 309 hPa with a focus on the long-range transport of N_2O especially during the Asian summer monsoon. Over the mid-latitude regions, both variations of N_2O_B1 and N_2O_B2 at 309 hPa are influenced by the stratospheric N_2O-depleted air because of the relative coarse shape of the averaging kernel. The analysis of N_2O_B2 using results from backtrajectories exhibits the capacity of these retrievals to capture long-range transport of air masses from Asia to northern Africa via the summer monsoon anticyclone on a daily basis. Thus, N_2O_B1 and N_2O_B2 offer an unprecedented possibility to study global upper tropospheric N_2O on a daily basis.

1 Introduction

Nitrous oxide (N_2O) is a long-lived greenhouse gas with a lifetime of about 120 years which is essentially produced in the terrestrial and oceanic surfaces by the microbial processes of nitrification and denitrification (Butterbach-Bahl et al., 2013). In terms of radiative forcing, N_2O is the third anthropogenic greenhouse gas after methane (CH_4) and carbon dioxide (CO_2) (Ciais et al., 2014). Its main sink is the photolysis in the stratosphere but it is also destroyed by reacting with the excited atomic oxygen $O(^1D)$. This reaction is the main source of the nitrogen oxides, which are the main responsible of the destruction of the stratospheric ozone. N_2O is therefore becoming the main ozone depleting substance emitted in the 21^{st} century (Ravishankara

et al., 2009). The natural and anthropogenic N_2O emissions are about 60% and 40%, respectively (Syakila and Kroeze, 2011; Bouwman et al., 2013). The anthropogenic N_2O emissions are dominated by agricultural sources which represent more than 66% of these emissions. An increase of the N_2O volume mixing ratio (vmr) with a mean rate of 0.75 ppbv.yr^{-1} since the late 1970s has been observed (Ciais et al., 2014). This positive trend is driven by anthropogenic emissions because of the increasing use of nitrogen fertilizers to meet the growing demand of food production, especially in Asia. Moreover, according to the Intergovernment Panel on Climate Change (IPCC), this trend is likely to continue until 2100. Monitoring N_2O emissions and its atmospheric concentration are therefore becoming major issues in the framework of anthropogenic pollution mitigation.

Nowadays, surface measurements of N_2O provide the longer time series of N_2O measurements and are used to characterize the trends and the sources of tropospheric N_2O. Such measurements are performed by several organizations or institutes such as the National Oceanic and Atmospheric Administration/Earth Systems Research Laboratory/Global Monitoring Division (NOAA/ESRL/GMD) or in the framework of joint projects such as the Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE) (Ganesan et al., 2015) and the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC) (http://www.ndsc.ncep.noaa.gov). Despite their reliability and the long-term records of surface measurements, their limited geographical coverage makes them difficult to use in order to assess N_2O tropospheric variations at global scale. In addition to surface measurements, there are also some aircraft campaigns like the High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations (HIPPO) (Wofsy, 2011; Wofsy et al., 2012) over the Pacific Ocean. N_2O is also measured in some passenger aircraft based measurements including the Comprehensive Observation Network for TRace gases by AIrlLner (CONTRAIL) (Sawa et al., 2015) and the Civil Aircraft for the Regular Investigation of the atmosphere Based on an Instrument Container (CARIBIC) (Assonov et al., 2013).

Since satellite measurements of stratospheric N_2O began in the 1970s, tropospheric N_2O retrievals using satellite measurements are relatively recent. Clerbaux et al. (2009) exhibit the N_2O signature from the infrared measurements of the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) showing some promising results in view of using these measurements to retrieve N_2O tropospheric profiles. Ricaud et al. (2009a) analysed the equatorial maximum of N_2O during March-May using total columns of N_2O retrieved from IASI measurements using artificial neural networks. First results of N_2O total columns retrievals using a partially scanned IASI interferogram with an accuracy of $\pm$13 ppbv ($\sim$4%) are described in Grieco et al. (2013). Retrievals of N_2O tropospheric profiles have been performed using the Atmospheric Infrared Sounder (AIRS) and the results showed interannual trends consistent with surface measurements (Xiong et al., 2014). N_2O profiles retrieved from the Greenhouse Gas Observing Satellite (GOSAT) measurements have been used to study the transport of Asian summertime high N_2O emissions to the Mediterranean upper troposphere (Kangah et al., 2017).

In this paper, we describe the IASI instrument and the Radiative Transfer for Tiros Operational Vertical sounder (RTTOV) used as forward model in our retrieval system in sections 2 and 3, respectively. We present the retrieval strategy and the validation of the results using HIPPO airborne in situ measurements in sections 5 and 6, respectively. In section 7, we analyse the scientific consistency of the retrievals focusing on the long-range transport of N_2O during the Asian summer Monsoon using backtrajectories from the Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model (HYSPLIT) model (Stein et al., 2015). Conclusions are presented in section 8.

2 IASI

IASI is a spaceborne instrument on board the platforms MetOp-A and MetOp-B. The MetOp (Meteorological Operational) mission consists of a series of three sun-synchronous Low Earth Orbits satellites developed jointly by the french space agency (CNES) and the EUropean organization for the exploitation of METeorological SATellites (EUMETSAT). The first satellite (MetOp-A) was launched in October 2006, the second (MetOp-B) in September 2012 and the third (MetOp-C) is expected to be launched in October 2018. MetOp-A and MetOp-B are operational at the present time. The mean MetOp altitude is $\sim$820 km and the satellite crosses the equator at $\sim$09:30 mean local solar time and have a repeat cycle of 29 days. MetOp-A and MetOp-B are in the same orbital plane and have an orbit phasing of about 49 min. IASI is a Michelson interferometer that measures infrared spectrum in the spectral range from 645 to 2760 cm^{-1} (15.5 to 3.62 μm) (Clerbaux et al., 2009). Although its apodized spectral resolution is about 0.5 cm^{-1}, IASI provides each spectrum with a sampling of 0.25 cm^{-1} giving a total of 8461 channels. The large spectral domain of IASI contains absorption bands of several atmospheric constituents (Hilton et al., 2012) among which the major absorbers are water vapour (H_2O), ozone (O_3), CO_2, N_2O, CH_4 and carbone monoxide (CO). IASI observes the Earth with a swath of about 2200 km (1100 km on each side) and its instantaneous field of view is composed of four circular pixels of 12 km diameter footprint on the ground at nadir. The operational IASI H_2O, temperature and O_3 products are retrieved simultaneously using an optimal estimation method (Pougatchev et al., 2009; Rodgers et al., 2000) whereas total columns of the other molecules are retrieved using artificial neural networks (Turquety et al., 2004). In this work, we used the IASI level 1c spectra (calibrated and apodized spectra) to perform our retrievals.

3 RTTOV

RTTOV is a fast model of transmittances of the atmospheric gases that are generated from a database of accurate line-by-line (LBL) transmittances (Saunders et al., 1999). The database of accurate transmittances is generated from a set of diverse atmospheric profiles and then a linear regression is computed linking the optical depths of the vertical layers and a set of atmospheric profile-dependent predictors. The regression coefficients are actually given for different Instrument Spectral Response Functions (ISRF) including the ones of IASI. For our retrieval system, we used RTTOV version 11.2 together with the regression coefficients v9 based on the model LBLRTM (LBL Radiative Transfer Model) (Hocking et al., 2015). In this version, the predictors depend on the trace gases profiles including H_2O, O_3, CO_2, N_2O, CH_4 and CO. It takes less than 25 ms to compute 183 IASI channels together with weighting functions using an input of atmospheric profiles on 54 vertical levels and surface emissivities. Comparing with accurate LBL models, the biases of RTTOV simulations for IASI Brightness Temperature (BT) over sea in clear sky conditions are within $\pm$1 K in the spectral range 645 to 2000 cm^{-1} and within $\pm$1.6 K in the N_2O/CO_2 $\nu 3$ region between 2200 and 2300 cm^{-1} (Matricardi, 2009).

4 N_2O absorption bands

Previous studies from Clerbaux et al. (2009) have highlighted three absorption bands of N_2O in the IASI spectral range centered at ∼1280 cm^{-1}, ∼2220 cm^{-1} and ∼2550 cm^{-1}. Figure 1 shows a N_2O weighting function matrix (called hereafter Jacobian matrix) calculated in units of brightness temperature (BT) using a N_2O profile derived from the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) reference atmosphere (V3) daytime mid-latitude climatology. This matrix represents the sensitivity of the calculated BT to a unit change in the N_2O volume mixing ratio (vmr). The spectral signature of N_2O appears in the three spectral regions with significant differences of intensity. The most intense absorption band (called hereafter B2) is between 2190 and 2240 cm^{-1} and shows sensitivity to N_2O from the lowermost troposphere to 100 hPa with a maximum of sensitivity between 500 and 200 hPa. The absorption band located between 1250 and 1310 cm^{-1} (called hereafter B1) is less intense than B2 and is sensitive to N_2O between 800 and 100 hPa. The third band (called hereafter B3) located between 2500 and 2600 cm^{-1} is much less intense than B1 and B2 and is sensitive to N_2O from 900 to 300 hPa. To illustrate the sensitivity of these three bands to N_2O and to the other atmospheric and surface parameters, a sensitivity study has been performed using the MIPAS climatology for N_2O, CO_2 and O_3 profiles and a set of atmospheric and surface parameters representative of a given atmospheric state on 13 June 2011 at 11.8°N and 142.9°W. This study consists in calculating of the variation of the BT (called hereafter ΔBT) over the IASI spectral range for a given variation of the major atmospheric and surface parameters consistent with their actual accuracy. Figure 2 shows the absolute value of the ΔBT ($|\Delta BT|$) for variations of each major absorber (H_2O, O_3, CO_2, N_2O, CH_4 and CO) and for variations of temperature and surface temperature. The IASI radiometric noise expressed as the Noise Equivalent Delta Temperature (NEDT) is superimposed to the $|\Delta BT|$ signals. In each band, channels were selected by optimizing the Signal to Noise Ratio (SNR) while reducing the spectral signature of the other parameters. B1 is mainly impacted by temperature, H_2O, CH_4 and surface temperature. The signal corresponding to 10% change of H_2O is more than twice greater than the signal corresponding to a change of N_2O by 4% in most spectral domains of B1. The signal corresponding to a change of CH_4 by 2% is half the size to the signal of N_2O. A total of 126 channels is selected in B1. The signal of N_2O is twice larger than the NEDT for all selected channels in B1 whilst CH_4, H_2O and temperature are critical parameters for the N_2O retrieval using the 126 selected channels in B1. In B2, we selected a total of 103 channels where the signal of N_2O is more than twice greater than the signals of the other parameters except for atmospheric temperature and NEDT. The NEDT level of magnitude is similar to the signal of N_2O while the $|\Delta BT|$ signal corresponding to the temperature variation is slightly greater than that of N_2O. The radiometric noise and the atmospheric temperature are therefore the critical parameters for the N_2O retrieval in B2. In B3, we selected no channels because the radiometric noise is too large compared to the signal of N_2O. In summary, the absorption band of N_2O in B2 is sufficiently isolated from the absorption band of the other gases but presents the same level of magnitude as the IASI radiometric noise whereas in B1 the signal of N_2O is more than twice greater than the noise but is impacted by the absorption bands of CH_4 and H_2O.

5 Retrieval Strategy

5.1 Methodology

We used an optimal estimation method based on the Levenberg-Marquardt iterative algorithm (Rodgers et al., 2000) to retrieve N_2O profiles over 13 fixed pressure levels from IASI clear sky radiances in the bands B1 and B2. Hereafter, the retrievals in B1 and B2 are referred to N_2O_B1 and N_2O_B2, respectively. In the retrieval algorithm, the i+1th retrieval vector is expressed as:

$$\hat{X}_{i+1} = X_a + (K_i^T S_y^{-1} K_i + \gamma S_a^{-1})^{-1} \times \{K_i^T S_y^{-1}([Y - F(\hat{X}_i)] + K_i[\hat{X}_i - X_a]) + \gamma S_a^{-1}[\hat{X}_i - X_a]\} \quad (1)$$

where X_a is an a priori vector with an error covariance matrix S_a. Y is the observed radiances with an error covariance matrix S_y. $F(\hat{X}_i)$ and K_i are the calculated forward spectrum and the Jacobian matrix at the iteration i, respectively. γ is the Levenberg-Marquardt parameter (Rodgers et al., 2000). The vertical sensitivity of the retrieval can be characterised using the averaging kernel matrix (A) defined as:

$$A = \frac{\partial \hat{X}}{\partial X} = (K^T S_y^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} K^T S_y^{-1} K \quad (2)$$

N_2O_B1 profiles are retrieved simultaneously with the vmr profiles of H_2O and CH_4 whilst N_2O_B2 profiles are retrieved simultaneously with the vmr profiles of H_2O, CO and CO_2. The air temperature profiles and the surface parameters (temperature and emissivity) are also retrieved simultaneously with the N_2O profiles for N_2O_B1 and N_2O_B2.

The a priori error covariance matrix S_a is calculated as follows:

$$Sa_{ij} = \sigma_a^2 \times exp(-|ln(P_i) - ln(P_j)|) \quad (3)$$

where σ_a^2 is an a priori variance error fixed for each parameter of the state vector and P_i the pressure level at the level i.

For the retrievals, we used a fixed N_2O a priori profile derived from the MIPAS V3 reference atmosphere daytime mid-latitude climatology. Since this climatology is given for the year 2001, we adjusted it for the year 2011 by applying the averaged increase rate of 0.75 ppbv.yr^{-1} consistently with Ricaud et al. (2009b). We fixed σ_a for the N_2O profile to 4% consistently with Grieco et al. (2013).

The a priori states of H_2O, temperature and surface temperature were taken from the IASI level 2 operational products (August et al., 2012). A validation using radiosonde data gave a standard error (std) of $\sim$2 K for the surface temperature, of about 10% for the relative humidity and between 0.6 and 1.5 K for the temperature profile (Pougatchev et al., 2009). Thus, we took for N_2O_B1 and N_2O_B2, σ_a values of 1 K and 2 K for the temperature profile and the surface temperature, respectively. A σ_a value of 10% for the H_2O profile was used for N_2O_B2. Clerbaux et al. (2009) show the presence of a relatively strong absorption band of the deuterium hydrogen oxide (HDO) also called semiheavy water in the band B1. However, this chemical

species is not taken into account as a variable parameter in RTTOV. Therefore, after sensitivity studies, we fixed the σ_a value for the H_2O profile to 30% for N_2O_B1. In a similar approach to the N_2O a priori profile, we took the CO_2 a priori from the MIPAS reference atmosphere v3 daytime mid-latitude climatology and applied an annual trend of 2.3 ppmv.yr^{-1} (Ciais et al., 2014). A σ_a of 2% is used for the CO_2 a priori profile after a sensitivity study.

In addition, CH_4 and CO a priori profiles were taken from the Monitoring Atmospheric Composition and Climate (MACC) project reanalysis (Inness et al., 2013). σ_a was fixed to 10% for CO after a sensitivity study and consistently with the CO validation reports (http://www.gmes-atmosphere.eu/services/aqac/global_verification/validation_reports/). For CH_4, σ_a was fixed to 2% which is approximately the std error on the IASI retrieved CH_4 profiles (Xiong et al., 2013). The land surface a priori emissivity is derived from a global atlas of land surface emissivity based on inputs from the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) operational product (Borbas and Ruston, 2010; Seemann et al., 2008). Over sea surface, we used the version 6 of the Infrared Surface Emissivity Model (ISEM) (Sherlock and Saunders, 1999) as an a priori surface emissivity. σ_a is fixed to 10% for the surface emissivity since this parameter is also used as a sink parameter. An observation error diagonal covariance matrix S_y was used for the retrievals in both bands with the IASI radiometric noise as the diagonal elements of the matrix.

5.2 Data quality control

To assess the quality of the retrieved N_2O profiles, we used quality parameters derived from the optimal estimation theory (Rodgers et al., 2000). Our retrieval process consists in the minimization of the cost function χ^2 defined as:

$$\chi^2 = \frac{([\hat{X} - X_a]^T S_a^{-1}[\hat{X} - X_a]) + ([Y - F(\hat{X})]^T S_y^{-1}[Y - F(\hat{X})]}{dim(\hat{X}) + dim(Y)} \tag{4}$$

where $dim(\hat{X})$ and $dim(Y)$ are the dimensions of the state vector and of the radiances (number of channels), respectively. χ^2 allows to evaluate the quality of the retrieval by combining the calculated residuals relative to the observations error covariance matrix and the difference between the estimated and the a priori profiles relative to the a priori error covariance matrix. In our case, we performed simultaneous retrievals for both N_2O_B1 and N_2O_B2. Therefore, the χ^2 derived from the optimal estimation theory is a quality control parameter for the whole retrieved state vectors which include N_2O profiles and the other interfering parameters. In addition to χ^2, we computed another variable to assess the quality of the retrieved tropospheric N_2O profile which is our target species. Thus, we calculate the difference between the a priori and the retrieved N_2O relative to the N_2O a priori errors σ_a. This variable called $\chi^2_{N_2O}$ is defined as:

$$\chi^2_{N_2O} = \frac{\sum_{P_j<1000\ hPa}^{P_j>200\ hPa} [\hat{X}_j - X_{a_j}]^2 \beta_{a_j}}{n_p} \tag{5}$$

where $\hat{X}_j$ and X_{a_j} are the retrieved and the a priori N_2O at the pressure level P_j, respectively. β_{a_j} is the diagonal element of the a priori error precision matrix (the inverse of the a priori error covariance matrix) at the pressure level P_j and n_p is the

number of levels used for the calculation.

An upper limit for the χ^2 parameter is generally used to select good quality pixels. For instance, an upper limit of 3 on a χ^2 calculated in the radiances space was used to select good quality pixels for CH_4 retrievals from IASI measurements (Xiong et al., 2013). Following the same methodology, we applied an upper limit on $\chi^2_{N_2O}$ to select good quality pixels. After performing sensitivity studies for both N_2O_B1 and N_2O_B2, we rejected all the data with a χ^2 or a $\chi^2_{N_2O}$ greater than or equal to 4.

Moreover, to evaluate the impact of the other retrieved parameters on N_2O_B1 and N_2O_B2, we calculated the Contamination Factor (called hereafter CF) defined as follows:

$$CF(i) = \sum_j \left| \frac{\partial \hat{x}_i}{\partial c_j} \right| \frac{\Delta c_j}{\hat{x}_i} \times 100 \tag{6}$$

Here, $CF(i)$ is the contamination of the parameter c on the retrieved N_2O at the level i ($\hat{x}_i$). Δc_j is the uncertainty on the parameter c at the level j. We fixed Δc_j to the a priori error σ_a for each parameter. Then for the parameter c, we defined $CF_{tot}(c)$ as the sum of the CF over the 13 retrieval levels. CF indicates the influence of the uncertainties in the knowledge of the co-retrieved parameters on the variability of the target species N_2O retrievals. Here, the uncertainties on the co-retrieved parameters have been fixed to the a priori uncertainties. Thus, CF does not take into account the effects due to the spatial and temporal variations of these uncertainties. But CF estimates, a priori, how critical is the characterisation of each co-retrieved parameter for the quality of the N_2O retrievals. As consequence, a posteriori sensitivity studies should be performed on each critical parameter to determine which co-retrieved parameters uncertainties have the most significant impact on the quality of the N_2O retrievals.

6 Validation

In this section, we analyse the performance of our retrieval system by comparing the results with the in-situ measurements from the five HIPPO airborne campaigns (Figure 3): HIPPO 1 (January 2009), HIPPO 2 (October-November 2009), HIPPO 3 (March-April 2010), HIPPO 4 (June-July 2011) and HIPPO 5 (August-September 2011). For this purpose, we processed 26850 N_2O_B1 and N_2O_B2 profiles along the flight paths from the five HIPPO campaigns. Using a similar method as explained in Kangah et al. (2017), we used for these comparisons the measurements from the Harvard/Aerodyne Quantum Cascade Laser Spectrometer (QCLS), one of the airborne instruments of HIPPO, and the retrieved profiles selected within a collocation temporal and spatial window of $\pm$200 km and $\pm$12h, respectively. Our aim is to characterise the retrieval errors as well as the ability of the retrieval system to capture N_2O tropospheric variations.

6.1 Error Characterisation

The total retrieval errors can be divided into four components: a smoothing error, a forward model error, a model parameter error and a retrieval noise. We used a simultaneous retrieval strategy to include all the parameters which influence RTTOV in

each band and we removed RTTOV systematic biases consistently with Matricardi (2009). Therefore, the forward model and the model parameter errors can be, as a first approximation, considered as negligible compared to the smoothing error and the retrieval noise. The covariance matrix of the smoothing error (S_s) is defined as:

$$S_s = (A - I)S_e(A - I)^T \tag{7}$$

where A is the N_2O averaging kernels matrix; I is the identity matrix and S_e is the covariance matrix of the real ensemble of states consistently with Rodgers et al. (2000). For our retrieval algorithm, we use a simple "ad hoc" matrix (see Eq. 3) as a priori covariance matrix (S_a) to constrain the retrieval system. Since this matrix may or may not be representative of the variability of a real ensemble of N_2O profiles, we took S_e as the covariance matrix of HIPPO profiles.
The retrieval noise covariance matrix (S_n) is defined as:

$$S_n = GS_yG^T \tag{8}$$

where G is the gain matrix which represents the change in the vmr profile for a unit change in the observation Y. The theoretical covariance matrix of the total errors (S_{tot}) is therefore defined as:

$$S_{tot} = S_s + S_n \tag{9}$$

The theoretical covariance matrix of the total errors is then compared with an empirical total errors covariance matrix calculated using the HIPPO measurements and the retrievals along the HIPPO campaigns flight paths (namely the covariance matrix of the difference between HIPPO profiles and IASI retrieved profiles). Figure 4 shows the standard deviation errors (std errors) corresponding to all these covariance matrices (square roots of the diagonal elements of the covariance matrix) and averaged over the set of retrievals for N_2O_B1 and N_2O_B2. The empirical std error which we consider as our reference standard deviation of the total errors (σ_{tot}) is about 1.5% (∼4.8 ppbv) for N_2O_B1 and about 1.0% (∼3.2 ppbv) for N_2O_B2 in the troposphere. For N_2O_B2, the theoretical σ_{tot} is consistent with the empirical σ_{tot} but, for N_2O_B1, the theoretical σ_{tot} is about 0.5% less than the empirical σ_{tot}. This means that our hypothesis of two sources of errors to characterise the total error is correct for N_2O_B2 but is not enough for N_2O_B1 for which other sources of error should be considered (forward model errors and/or model parameter errors). Concerning the forward model errors, we removed the biases on RTTOV IASI clear sky radiances consistently with Matricardi (2009) both in the band B1 and B2. Therefore the difference between the theoretical and the empirical std errors for N_2O_B1 is certainly due to the existence of other sources of variation of the radiances in the band B1 which are not correctly taken into account in our retrieval system. The HDO absorption which is the only significant absorption band not included in the predictor parameters of RTTOV could be responsible of at least part of these unexplained variations. To summarise, we can consider that the std errors on N_2O_B1 and N_2O_B2 are on averaged about 1.5% (∼4.8 ppbv) and 1.0% (∼3.2 ppbv), respectively. However, for the users, the retrieved profiles will be given with the empirical S_{tot} together with the theoretical S_{tot} associated with each retrieval.

6.2 Sensitivity in the observation and retrieval spaces

Figure 5 shows the averaged observed and calculated (using a priori and retrievals) radiances together with the averaged calculated residuals for both B1 and B2. In B1, the mean residual is reduced from -0.8% (using the a priori) to 0.01% (using the retrievals) whereas in B2, the mean residual is reduced from -0.5% (using the a priori) to 0.01% (using the retrievals). The differences between the a priori residuals in B1 and B2 are due to the existence of more interfering parameters in B1 than in B2. Therefore, some differences between N_2O_B1 and N_2O_B2 due to the contamination of CH_4 and H_2O are expected. Figures 6 and 7 show the mean N_2O normalized (Deeter et al., 2007) averaging kernels matrix together with the altitude of the kernels maximum and the mean CF from CH_4, temperature, surface temperature and H_2O for N_2O_B1 and N_2O_B2, respectively. Considering the averaging kernels, the maximum of sensitivity is located at the retrieval level 309 hPa for both N_2O_B1 and N_2O_B2. In addition, the averaging kernels corresponding to this level peak at 309 hPa. Therefore, retrieved vmrs at this level are the most reliable for both N_2O_B1 and N_2O_B2. For N_2O_B2, all the averaging kernels peak at the levels 309 hPa. This means that the retrieved N_2O vmr profiles are mainly sensitive to the real N_2O vmr at this level. This result is consistent with previous studies from Kangah et al. (2017) and Xiong et al. (2014). The degree of freedom (DOF), which represents the number of independent vertical pieces of information of the retrieved profile and is computed as the trace of the averaging kernels matrix, is on average equal to 1.38 and 0.93 for N_2O_B1 and N_2O_B2, respectively. The DOF for N_2O_B1 is greater than that of N_2O_B2 because the SNR is higher in B1 than in B2. Thus, more channels with better SNR are selected in B1 than in B2. Although the retrieved N_2O is impacted by temperature in the two bands, we have in B1 an additional significant impact of CH_4 and H_2O. In conclusion, we expect more contamination on N_2O_B1 than on N_2O_B2.

6.3 Retrieval accuracy

To assess the skills of the retrieval process, we applied the IASI N_2O averaging kernels to the HIPPO profiles using the following equation (Rodgers et al., 2000):

$$\hat{x} = Ax + (I - A)x_a \tag{10}$$

where x_a is the IASI a priori profile, x the HIPPO profile, $\hat{x}$ the result of the averaging kernels application (called hereafter convolved HIPPO), I the identity matrix and A the IASI N_2O averaging kernels matrix.

Figures 8 and 9 show the results from the comparisons between HIPPO measurements and N_2O_B1 and N_2O_B2 averaged within the spatial and temporal window around the HIPPO measurements, respectively. N_2O_B1 and HIPPO measurements are moderately correlated (the Pearson linear correlation coefficient R=0.42) with a low bias and standard deviation (called hereafter std) error of -1.6 ppbv ($\sim$0.5%) and 3.5 ppbv ($\sim$1.0%), respectively. However, the quality of the retrievals depends on the latitude band. The consistency between N_2O_B1 and HIPPO increases at mid-latitudes (e.g. R=0.63 for northern hemisphere mid-latitudes). We can also notice that there is a very low mean bias (-0.1 ppbv) in the northern hemisphere high-latitude regions.

Furthermore, N_2O_B1 exhibits greater biases in tropical regions (-3.7 and -4.8 ppbv in the tropical northern and southern hemispheres, respectively) than in the other regions. Figure 6 suggest that the largest CF on N_2O_B1 are from the temperature, CH_4 and H_2O, respectively. To understand the degradation in the quality of N_2O_B1 over the tropics, we examined the contamination of H_2O, CH_4 and temperature (see Eq. 6). For that purpose, we filtered N_2O_B1 over the northern hemisphere tropical regions by considering the pixels with $CF_{tot}(H_2O)$, $CF_{tot}(CH_4)$ and CF_{tot}(temperature) less than arbitrary maxima called $CF_{tot}^{max}(H_2O)$, $CF_{tot}^{max}(CH_4)$ and CF_{tot}^{max}(temperature), respectively. Then, we evaluated the mean bias (N_2O_B1 − HIPPO) using these filtered N_2O_B1. In order to have enough collocated IASI-HIPPO pixels, N_2O_B1 around the HIPPO measurements are not averaged for this sensitivity study (see Figure 10). We observe that the lower $CF_{tot}^{max}(H_2O)$, the better the bias, whereas there is no significant improvement of the bias when we used $CF_{tot}^{max}(CH_4)$ and CF_{tot}^{max}(temperature) to filter N_2O_B1. Thus, when $CF_{tot}^{max}(H_2O)$ decreases from 10 to 4, the absolute value of the mean bias decreases from 2.5 to 1.0 ppbv. Therefore, we can consider that the degradation of the quality of N_2O_B1 over the tropics is mainly due to the contamination of H_2O. Although CF_{tot}(temperature) and $CF_{tot}(CH_4)$ are greater than $CF_{tot}(H_2O)$, H_2O is actually the most critical parameter in the band B1 to retrieve N_2O in our retrieval system. H_2O has a high variability, especially over the tropical regions where maxima of H_2O vmrs are observed. This variability is more difficult to retrieve than the variability of temperature and CH_4. Thus, August et al. (2012) show that the std error on the IASI retrieved temperature at 800 hPa varies from 1 K (northern hemisphere sea) to 1.5 K (tropical land) whereas the std error on the IASI retrieved H_2O at 800 hPa varies from 1500 ppmv (northern hemisphere sea) to 3500 ppmv (tropical land). Furthermore, we evaluated the linear correlation R and the std error using the different values of $CF_{tot}^{max}(H_2O)$ (see Figure 11). When $CF_{tot}^{max}(H_2O)$ decreases from 10 to 4, R increases from 0.17 to 0.57 and the std error decreases from 3.5 to 3.0 ppbv. $CF_{tot}(H_2O)$ should therefore be considered carefully when analysing N_2O_B1 over tropical regions.

N_2O_B2 is moderately correlated with HIPPO measurements (R=0.6) with a std error of 3.2 ppbv and a very low mean bias of 0.3 ppbv. This moderate correlation is also observed when considering only data from the northern hemisphere mid-latitudes. In the northern hemisphere tropical regions, the bias is slightly higher (-1.0 ppbv) and the correlation coefficient decreases to 0.31. The worst correlation coefficient is found for the southern hemisphere mid-latitudes (R=0.11). The very small slope ($\sim$0.16) indicates that N_2O_B2 does not capture optimally the N_2O spatial and temporal variations in this region, although we observe a relatively low mean bias (1.6 ppbv) in this region. In tropical regions the correlation coefficient between N_2O_B2 and HIPPO measurements becomes very high (0.71 and 0.92 in the northern and southern hemispheres, respectively) compared to the other regions. However, the large slope from the linear regression (2.51 and 3.32 in the northern and southern hemispheres, respectively) indicates that N_2O_B2 tends to overestimate the spatial and temporal N_2O vmr gradients in this region.

In summary, N_2O_B1 and N_2O_B2 are of sufficient quality to be used to analyse N_2O variations in the mid and high latitude regions. N_2O_B2 can even be used to analyse N_2O transport processes between tropical regions and higher latitude regions whereas, for N_2O_B1, we have to analyse vmrs in the tropics taking care to reject retrievals with high $CF_{tot}(H_2O)$. The scientific users should fix $CF_{tot}^{max}(H_2O)$ to filter N_2O_B1 according to their need in terms of accuracy and/or spatial and temporal sampling. The statistics presented on Figure 11 can be used for that purpose.

7 Tropospheric variations of N_2O_B1 and N_2O_B2 related to long-range transport

Since we averaged IASI retrievals over a temporal and spatial window of ±200 km and ±12h for the validation at 309 hPa (see Section 6.3), for the following analyses, our basic pixel for both N_2O_B1 and N_2O_B2 is a daily mean within a 4° × 4° horizontal grid. Figure 12 shows maps of N_2O_B1, $CF_{tot}(H_2O)$ and N_2O_B1 filtered with $CF_{tot}^{max}(H_2O)$ equal to 4 at 309 hPa and averaged over 3 days (27-29 July 2011). The horizontal winds from the ERA-Interim reanalysis are superimposed on the N_2O_B1 maps. Figure 13 shows maps of N_2O_B2 superimposed with horizontal winds from the ERA-Interim reanalysis at 309 hPa and averaged over 4 periods of 3 days: 21-23 July, 24-26 July, 27-29 July and 30 July-01 August 2011. The maps of tropopause pressure averaged over the same 4 periods are presented on Figure 14. The horizontal distribution of N_2O_B1 at 309 hPa over the period 27-29 July 2011 (Figure 12 top) shows:

1. strong maxima (≥330 ppbv) within a band elongated from the Sahara to minor Asia and Iran with a maximum located over the North-Eastern China and

2. strong minima over Europe, the Atlantic Ocean and the Mongolian plateau with some localized minima in the equatorial/tropical band (Arabian Sea, Indian Ocean, South China Sea).

$CF_{tot}(H_2O)$ associated to N_2O_B1 over the same period (Figure 12 center) is, on average, less than 5 in the mid-latitudes but greater than 6 in the tropics, underlining the great impact of the high H_2O contamination on N_2O_B1 in the tropical band. When filtering N_2O_B1 with $CF_{tot}^{max}(H_2O)$ equal to 4, only the N_2O_B1 retrieved in the mid-latitudes is maintained (Figure 12 bottom). The so filtered N_2O_B1 shows a longitudinal distribution in the mid-latitudes. According to wind patterns, the maxima of N_2O_B1 centered around 50°E and 70°E in longitude are influenced by the N_2O-enriched air originated from the tropics whilst the minima of N_2O_B1 between 10°W and 10°E in longitude are influenced by the N_2O-depleted air originated from high latitudes.

Consistently with previous studies from Ricaud et al. (2009a) and Kort et al. (2011), the horizontal distribution of N_2O_B2 (Figure 13) over the 4 periods shows maxima (≥330 ppbv) in the tropics and minima (≤325 ppbv) in the mid-latitudes. Moreover, there are local maxima and minima of N_2O_B2 in the mid-latitudes consistent with, on the one hand, the wind patterns and, on the other hand, the variations of the tropopause pressure level (Figure 14). Thus, the minimum of N_2O_B2 in the mid-latitudes are due, on the one hand, to the influence of N_2O-depleted air from the stratosphere and on the other hand to the influence of air-masses originated from the high latitudes. The tropopause pressure levels displayed on Figure 14 show two maxima between 40°N and 50°N and within longitude bands (10°W-30°E and 80°E) consistent with the N_2O_B2 minima. The influence of stratospheric N_2O on N_2O_B2 (and also on N_2O_B1 as shown in Figure 12) is due to the width of the averaging kernel at 309 hPa with a half-maximum from ∼600 to ∼100 hPa. Kangah et al. (2017) show a connection between the high N_2O surface emissions over Asia in summer and the upper tropospheric N_2O patterns over the Mediterranean basin. Actually, high N_2O surface emissions related to high soil water content occur over Asia (especially eastern China and the Indian/Tibetan plateau region) and are transported in the upper troposphere and redistributed westward by the easterly winds associated to the Asian summer monsoon anticyclone. Wind patterns on Figure 12 show the connection between the western Asia region and the

eastern Mediterranean region. Thus, long-range transport processes between Asia and the eastern Mediterranean are expected. A maximum of N_2O_B1 ($\sim$331 ppbv) is also observed over the eastern Mediterranean as a result of these transport processes. N_2O_B1 also exhibits maxima over the eastern China ($\sim$332 ppbv) which is the result of the vertical transport to the upper troposphere of the high summertime N_2O emissions over this region. The high emissions and vertical transport are confirmed by the occurrence of relatively high convective precipitations over the eastern China region the days before (24-26 July, not shown).

To highlight these long-range transport processes, we used the HYSPLIT model (Stein et al., 2015) to perform a 4-day backtrajectory ensemble from a central point located in the upper troposphere ($\sim$306 hPa) of the northern Africa (25°N, 32°E) on 28 July 2011 at 12h00 UTC. Then, N_2O_B2 along the path of the air masses represented by the mean trajectory is evaluated. Figure 15 shows the results of the backtrajectories with air masses transported from western Asia to northern Africa. Furthermore, the mean trajectory is located on a vertical range 420-316 hPa which is in the domain of vertical sensitivity of N_2O_B2 considering the shape of the averaging kernel for the level 309 hPa (Figure 7). To study N_2O_B2 along the mean trajectory, we calculated a Hovmöller diagram using the latitudinal range of the backtrajectory ensemble from 21 to 31°N. This diagram calculated on a daily basis for the longitude range from 30 to 80°E and superimposed with zonal winds from the ERA-Interim reanalysis is presented in Figure 16. As expected, the mean daily trajectory represented by the black stars is located in an easterly wind region (delimited by the blue contours). Moreover, this diagram exhibits the transport of high N_2O_B2 maximum by the easterly wind fluxes associated to the Asian monsoon anticyclone. N_2O_B2 corresponding to the mean trajectory and averaged over the latitude range of the Hovmöller diagram are within the range 330.5-331.5 ppbv. We averaged a maximum of 3 basic ($4° \times 4°$) pixels over the latitude range of the Hovmöller diagram. Since the std error for a single N_2O_B2 pixel is about 2.8 ppbv (see Section 6.3), we can approximate the error on the retrieved N_2O_B2 over the mean trajectory by $2.8/\sqrt{3} \approx$ 1.6 ppbv. Therefore, we can conclude that N_2O_B2 allows to follow the upper tropospheric N_2O transport processes between tropical and mid-latitude regions at nearly daily time scales.

8 Conclusions

We presented and validated an inversion algorithm to retrieve N_2O profiles using IASI level 1c radiances. Consistently with previous studies, the N_2O Jacobian exhibits three N_2O absorption bands: B1 centered at $\sim$1280 cm^{-1}, B2 centered at $\sim$2220 cm^{-1} and B3 centered at $\sim$2550 cm^{-1}. We performed a sensitivity test in each band studying the radiometric noises and the signals from N_2O, temperature, surface temperature and other major absorbers including CH_4, H_2O, CO, O_3, CO_2. By maximizing the SNR and minimizing the impact from the interfering parameters in each bands, 126 channels in B1 and 103 channels in B2 were selected to retrieve N_2O profiles. We also deduced from this sensitivity study that, in addition to the impact of temperature and surface temperature, B1 is impacted by relatively strong absorption bands of CH_4 and H_2O whereas B2 has relatively strong radiometric noises. A retrieval algorithm based on the Levenberg-Marquardt optimal estimation theory was used to retrieve N_2O profiles using B1 and B2 (namely N_2O_B1 and N_2O_B2, respectively). N_2O_B1 was retrieved simultaneously with CH_4, H_2O, temperature, surface temperature and surface emissivity whereas N_2O_B2 was retrieved simultaneously

with H_2O, temperature, CO, CO_2, surface temperature and surface emissivity. Consistently with the previous studies (Xiong et al., 2014; Kangah et al., 2017), both N_2O_B1 and N_2O_B2 are sensitive to mid-to-upper troposphere with a maximum of sensitivity in the upper troposphere ($\sim$309 hPa).

We developed quality control parameters based on the standard χ^2 derived from the optimal estimation theory and on a reduced χ^2 parameter called $\chi^2_{N_2O}$. χ^2 gives a quality criteria for the whole state vector and $\chi^2_{N_2O}$ gives a quality criteria for the N_2O tropospheric profile. Besides these two parameters, another quality control parameter based on $CF_{tot}(H_2O)$ was used to assess the impact of the H_2O contamination on N_2O_B1, especially in tropical regions. N_2O_B1 and N_2O_B2 at 309 hPa are validated using HIPPO airborne in situ measurements. From these comparisons, we calculated std errors around 1.5% and 1.0% for N_2O_B1 and N_2O_B2, respectively. Besides, we calculated relatively low biases (-1.6 ppbv for N_2O_B1 and 0.3 ppbv for N_2O_B2). Apart from an overestimation of gradients in tropical regions, N_2O_B2 is of a good quality in all latitudinal bands. The quality of N_2O_B1 is good except in tropical regions where H_2O contamination characterised by high $CF_{tot}(H_2O)$ degraded the quality of the retrievals.

We studied the scientific consistency of the retrieved N_2O by focusing on transport processes. We showed that both N_2O_B1 and N_2O_B2 variations over the mid-latitudes regions are influenced by the N_2O-depleted air from high latitudes and from the stratosphere. Using backtrajectory calculations, we also showed that the transport of high Asian N_2O emissions from Asia to the Eastern Mediterranean basin by the summertime Asian monsoon anticyclone can be observed using N_2O_B2 on a daily basis. N_2O_B1 also offers good opportunities to study this N_2O transport process but with limitations due to H_2O contamination over the tropics. Thus, at this stage of our retrieval process, N_2O retrieved in bands B1 and B2 offer an unprecedented possibility to study upper tropospheric N_2O on a daily basis at global scale. This algorithm will be therefore applied to retrieve N_2O profiles at a global scale using the 10 years of IASI measurements.

References

Assonov, S., Brenninkmeijer, C., Schuck, T., and Umezawa, T.: N2O as a tracer of mixing stratospheric and tropospheric air based on CARIBIC data with applications for CO2, Atmospheric environment, 79, 769–779, https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.07.035, 2013.

August, T., Klaes, D., Schlüssel, P., Hultberg, T., Crapeau, M., Arriaga, A., O'Carroll, A., Coppens, D., Munro, R., and Calbet, X.: IASI on Metop-A: Operational Level 2 retrievals after five years in orbit, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 113, 1340–1371, https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.02.028, 2012.

Borbas, E. E. and Ruston, B. C.: The RTTOV UWiremis IR land surface emissivity module, EUMETSAT, 2010.

Bouwman, L., Daniel, J. S., Davidson, E. A., de Klein, C., Holland, E., Ju, X., Kanter, D., Oenema, O., Ravishankara, A., Skiba, U. M., et al.: Drawing down N2O to protect climate and the ozone layer. A UNEP Synthesis Report, United Nations Environment Programme (UNEP), 2013.

Butterbach-Bahl, K., Baggs, E. M., Dannenmann, M., Kiese, R., and Zechmeister-Boltenstern, S.: Nitrous oxide emissions from soils: how well do we understand the processes and their controls?, Philosophical Transactions of the Royal Society of London B: Biological Sciences, 368, 20130 122, https://doi.org/10.1098/rstb.2013.0122, 2013.

Ciais, P., Sabine, C., Bala, G., Bopp, L., Brovkin, V., Canadell, J., Chhabra, A., DeFries, R., Galloway, J., Heimann, M., et al.: Carbon and other biogeochemical cycles, in: Climate change 2013: the physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, pp. 465–570, Cambridge University Press, 2014.

Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., et al.: Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, Atmospheric Chemistry and Physics, 9, 6041–6054, https://doi.org/10.5194/acp-9-6041-2009, 2009.

Deeter, M. N., Edwards, D. P., Gille, J. C., and Drummond, J. R.: Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 112, n/a–n/a, https://doi.org/10.1029/2007JD008929, http://dx.doi.org/10.1029/2007JD008929, d24306, 2007.

Ganesan, A. L., Manning, A. J., Grant, A., Young, D., Oram, D. E., Sturges, W. T., Moncrieff, J. B., and O'Doherty, S.: Quantifying methane and nitrous oxide emissions from the UK and Ireland using a national-scale monitoring network, Atmospheric Chemistry and Physics, 15, 6393–6406, https://doi.org/10.5194/acp-15-6393-2015, http://www.atmos-chem-phys.net/15/6393/2015/, 2015.

Grieco, G., Masiello, G., Matricardi, M., and Serio, C.: Partially scanned interferogram methodology applied to IASI for the retrieval of CO, CO2, CH4 and N2O, Optics express, 21, 24 753–24 769, https://doi.org/10.1364/OE.21.024753, 2013.

Hilton, F., Armante, R., August, T., Barnet, C., Bouchard, A., Camy-Peyret, C., Capelle, V., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., et al.: Hyperspectral Earth observation from IASI: Five years of accomplishments, Bulletin of the American Meteorological Society, 93, 347–370, https://doi.org/10.1175/BAMS-D-11-00027.1, 2012.

Hocking, J., Rayer, P., Rundle, D., Saunders, R., Matricardi, M., Geer, A., Brunel, P., and Vidot, J.: RTTOV v11 Users Guide, NWP SAF, 2015.

Inness, A., Baier, F., Benedetti, A., Bouarar, I., Chabrillat, S., Clark, H., Clerbaux, C., Coheur, P., Engelen, R. J., Errera, Q., Flemming, J., George, M., Granier, C., Hadji-Lazaro, J., Huijnen, V., Hurtmans, D., Jones, L., Kaiser, J. W., Kapsomenakis, J., Lefever, K., Leitão, J., Razinger, M., Richter, A., Schultz, M. G., Simmons, A. J., Suttie, M., Stein, O., Thépaut, J.-N., Thouret, V., Vrekoussis, M., Zerefos, C., and the MACC team: The MACC reanalysis: an 8 yr data set of atmospheric composition, Atmospheric Chemistry and Physics, 13, 4073–4109, https://doi.org/10.5194/acp-13-4073-2013, http://www.atmos-chem-phys.net/13/4073/2013/, 2013.

Kangah, Y., Ricaud, P., Attié, J.-L., Saitoh, N., Hauglustaine, D. A., Wang, R., El Amraoui, L., Zbinden, R., and Delon, C.: Summertime upper tropospheric nitrous oxide over the Mediterranean as a footprint of Asian emissions, Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 122, 4746–4759, https://doi.org/10.1002/2016JD026119, http://dx.doi.org/10.1002/2016JD026119, 2016JD026119, 2017.

Kort, E., Patra, P., Ishijima, K., Daube, B., Jimenez, R., Elkins, J., Hurst, D., Moore, F., Sweeney, C., and Wofsy, S.: Tropospheric distribution and variability of N2O: Evidence for strong tropical emissions, Geophysical Research Letters, 38, https://doi.org/10.1029/2011GL047612, 2011.

Matricardi, M.: Technical Note: An assessment of the accuracy of the RTTOV fast radiative transfer model using IASI data, Atmos. Chem. Phys, 9, 6899–6913, https://doi.org/10.5194/acp-9-6899-2009, 2009.

Pougatchev, N., August, T., Calbet, X., Hultberg, T., Oduleye, O., Schlüssel, P., Stiller, B., Germain, K. S., and Bingham, G.: IASI temperature and water vapor retrievals–error assessment and validation, Atmospheric Chemistry and Physics, 9, 6453–6458, https://doi.org/10.5194/acp-9-6453-2009, 2009.

Ravishankara, A., Daniel, J. S., and Portmann, R. W.: Nitrous oxide (N2O): the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century, science, 326, 123–125, https://doi.org/10.1126/science.1176985, 2009.

Ricaud, P., Attié, J.-L., Teyssedre, H., Amraoui, L. E., Peuch, V.-H., Matricardi, M., and Schluessel, P.: Equatorial total column of nitrous oxide as measured by IASI on MetOp-A: implications for transport processes, Atmospheric Chemistry and Physics, 9, 3947–3956, https://doi.org/10.5194/acp-9-3947-2009, 2009a.

Ricaud, P., Pommereau, J.-P., Attié, J.-L., Flochmoën, E. L., Amraoui, L. E., Teyssedre, H., Peuch, V.-H., Feng, W., and Chipperfield, M.: Equatorial transport as diagnosed from nitrous oxide variability, Atmospheric Chemistry and Physics, 9, 8173–8188, https://doi.org/10.5194/acpd-9-4899-2009, 2009b.

Rodgers, C. D. et al.: Inverse methods for atmospheric sounding: theory and practice, vol. 2, World scientific Singapore, 2000.

Saunders, R., Matricardi, M., and Brunel, P.: A fast radiative transfer model for assimilation of satellite radiance observations-RTTOV-5, European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, 1999.

Sawa, Y., Machida, T., Matsueda, H., Niwa, Y., Tsuboi, K., Murayama, S., Morimoto, S., and Aoki, S.: Seasonal changes of CO2, CH4, N2O, and SF6 in the upper troposphere/lower stratosphere over the Eurasian continent observed by commercial airliner, Geophysical Research Letters, 42, 2001–2008, https://doi.org/10.1002/2014GL062734, 2015.

Seemann, S. W., Borbas, E. E., Knuteson, R. O., Stephenson, G. R., and Huang, H.-L.: Development of a global infrared land surface emissivity database for application to clear sky sounding retrievals from multispectral satellite radiance measurements, Journal of Applied Meteorology and Climatology, 47, 108–123, https://doi.org/10.1175/2007JAMC1590.1, 2008.

Sherlock, V. and Saunders, R.: ISEM-6: Infrared surface emissivity model for RTTOV-6, NWP-SAF report, 1999.

Stein, A., Draxler, R. R., Rolph, G. D., Stunder, B. J., Cohen, M., and Ngan, F.: NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system, Bulletin of the American Meteorological Society, 96, 2059–2077, https://doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1, 2015.

Syakila, A. and Kroeze, C.: The global nitrous oxide budget revisited, Greenhouse Gas Measurement and Management, 1, 17–26, https://doi.org/10.3763/ghgmm.2010.0007, 2011.

Turquety, S., Hadji-Lazaro, J., Clerbaux, C., Hauglustaine, D., Clough, S., Cassé, V., Schlüssel, P., and Mégie, G.: Operational trace gas retrieval algorithm for the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer, Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 109, https://doi.org/10.1029/2004JD004821, 2004.

Wofsy, S. et al.: HIPPO Merged 10-Second Meteorology and Atmospheric Chemistry and Aerosol Data (R_20121129), Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory and Oak Ridge and Tennessee.[Avaialble at http://dx. doi. org/10.3334/CDIAC/hippo_010,(Release 20121, 129)], 2012.

Wofsy, S. C.: HIAPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO): fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols, Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 369, 2073–2086, https://doi.org/10.1098/rsta.2010.0313, 2011.

Xiong, X., Barnet, C., Maddy, E., Gambacorta, A., King, T., and Wofsy, S.: Mid-upper tropospheric methane retrieval from IASI and its validation, Atmospheric Measurement Techniques, 6, 2255, https://doi.org/10.5194/amt-6-2255-2013, 2013.

Xiong, X., Maddy, E. S., Barnet, C., Gambacorta, A., Patra, P. K., Sun, F., and Goldberg, M.: Retrieval of nitrous oxide from Atmospheric Infrared Sounder: Characterization and validation, Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 119, 9107–9122, https://doi.org/10.1002/2013JD021406, 2014.

Parameters	σ_a **in B1**	σ_a **in B2**
N_2O	4 %	4 %
H_2O	30 %	10 %
Temperature	1 K	1 K
CH_4	2 %	not retrieved
CO	not retrieved	10 %
CO_2	not retrieved	2 %
Surface temperature	2 K	2 K
Surface emissivity	10 %	10 %

Table 1. A priori standard deviation errors (σ_a) used for each retrieved parameter in B1 and B2.

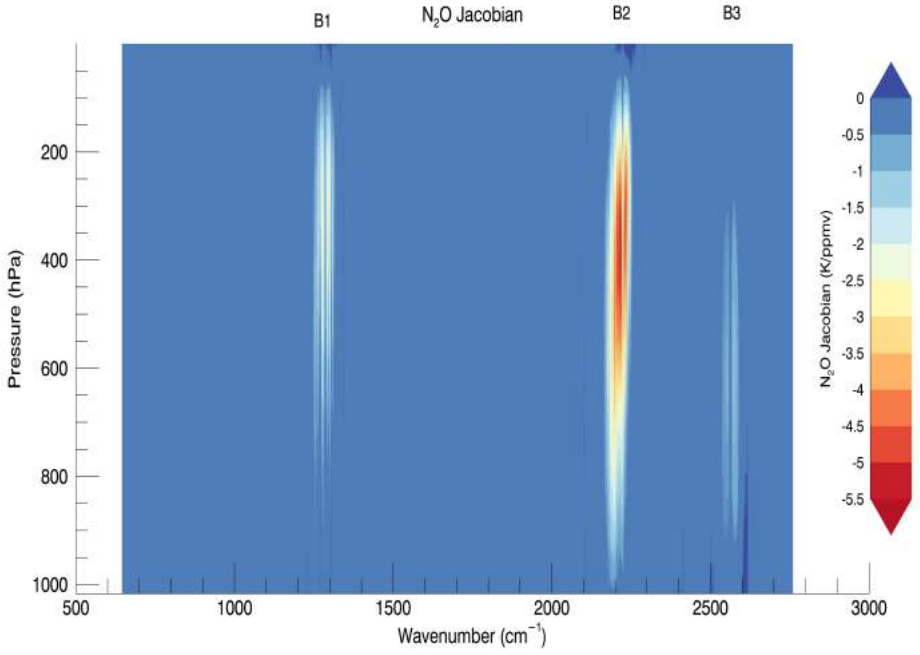


Figure 1. N_2O Jacobian in brightness temperature calculated by RTTOV over IASI spectral range and for an atmospheric situation at 142.96°W and 11.76°N.

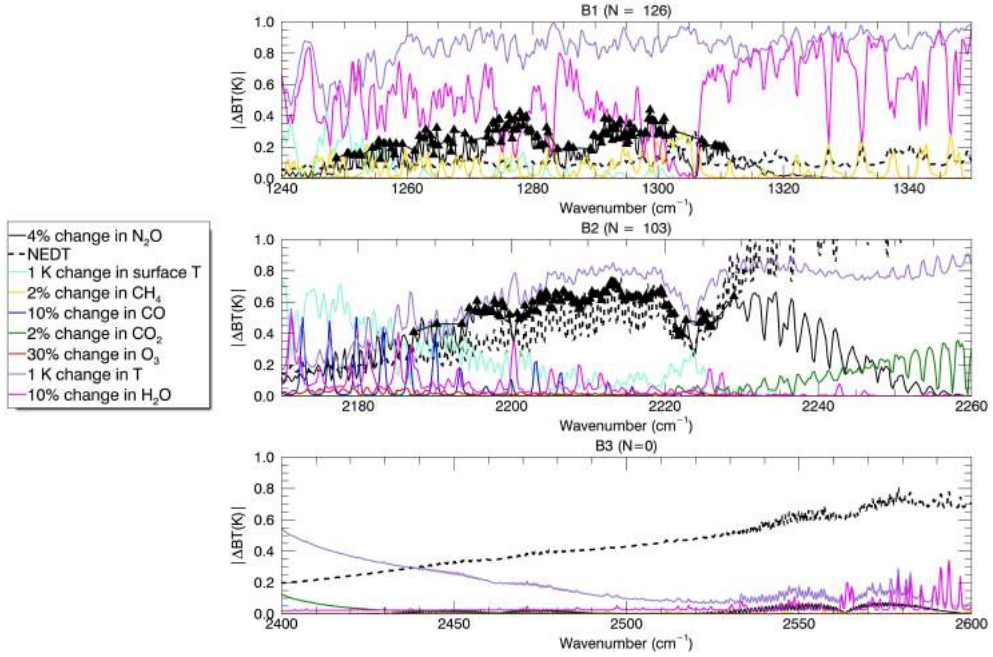


Figure 2. Absolute change of brightness temperature ($|\Delta BT|$) for 4% change in N_2O (black solid line), 10% change in H_2O (pink), 2% change in CH_4 (yellow), 10% change in CO (blue), 2% change in CO_2 (dark green), 30% change in O_3 (red), 1K change in temperature (purple) and surface temperature (light green), for the bands B1 (top), B2 (middle), B3 (bottom) at 142.96°W and 11.76°N. The black triangles mark the channels selected for the retrievals. The dashed black line represents the Noise Equivalent Delta Temperature (NEDT) of IASI level 1c measurements.

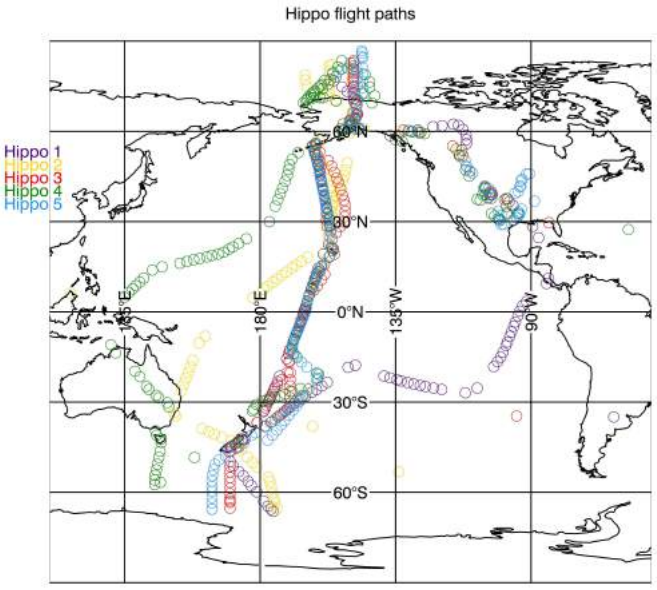


Figure 3. Flight paths of HIPPO campaigns used for GOSAT N_2O validation: HIPPO 1 (January 2009, purple), HIPPO 2 (October-November 2009, yellow), HIPPO 3 (March-April 2010,red), HIPPO 4 (June-July 2011, green) and HIPPO 5 (August-September 2011, blue).

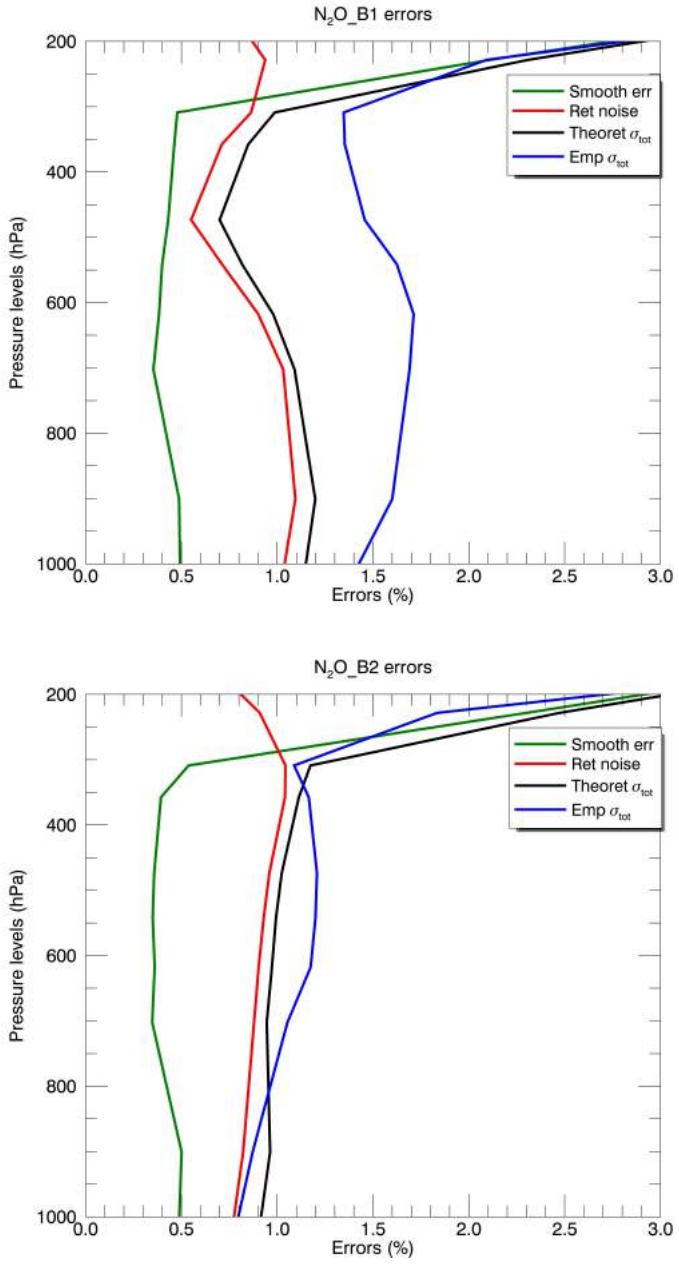


Figure 4. Top: Standard deviations of the smoothing errors (solid green line), the retrieval noise (solid red line), the theoretical total errors (solid blue line) and the empirical total errors (solid black line) on N_2O_B1 averaged over a set of 26850 retrievals along the HIPPO campaigns flight paths. Bottom: same as top but for N_2O_B2.

21

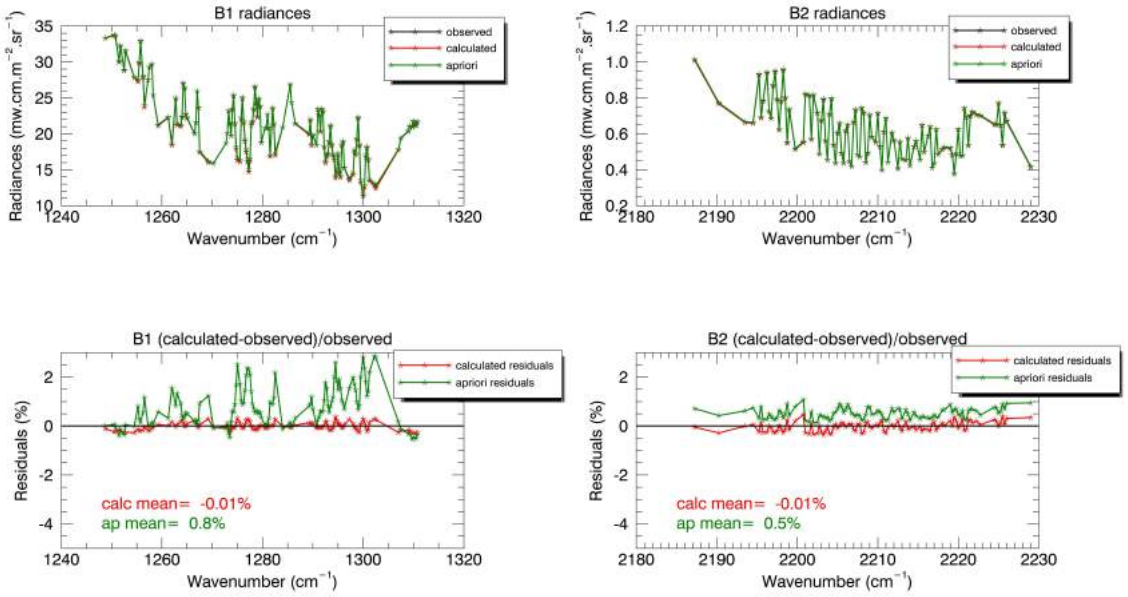


Figure 5. Top: Averaged level 1c observed radiances (black) and calculated radiances using a priori (green) and using retrievals (red) for the bands B1 (left) and B2 (right). Bottom: a priori (green) and calculated (red) residuals ((calc−obs)/obs) for the bands B1 (left) and B2 (right)).

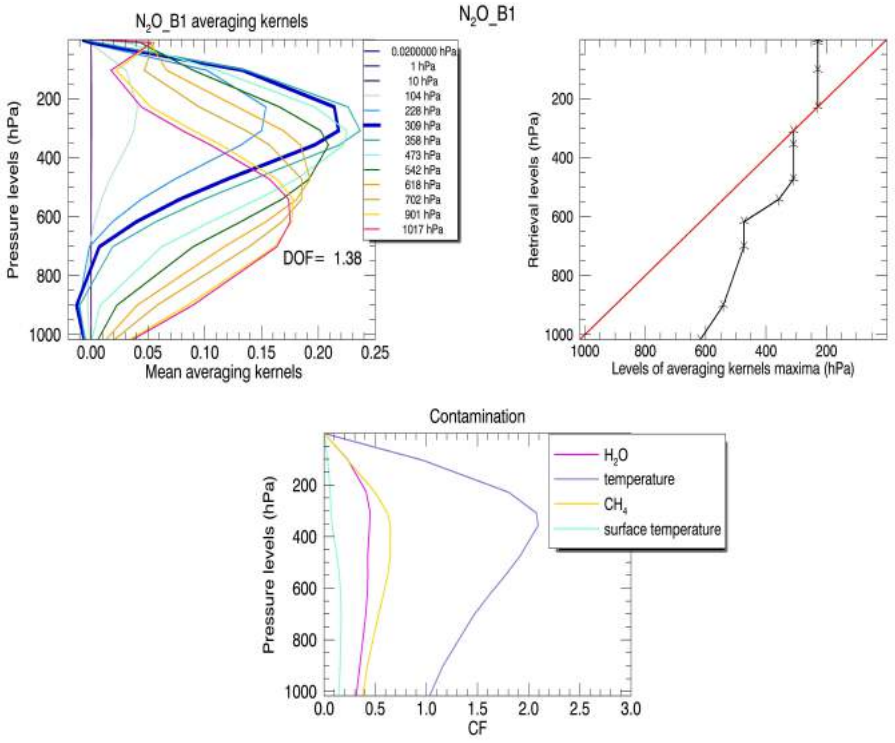


Figure 6. Top-left: Normalized averaging kernels averaged for all the N_2O_B1 over the HIPPO campaigns flight paths (26850 pixels).Top-right: levels of the averaging kernels maximum. Bottom: Mean surface temperature (green), CH_4 (yellow), temperature (purple) and H_2O (pink) CF on N_2O_B1.

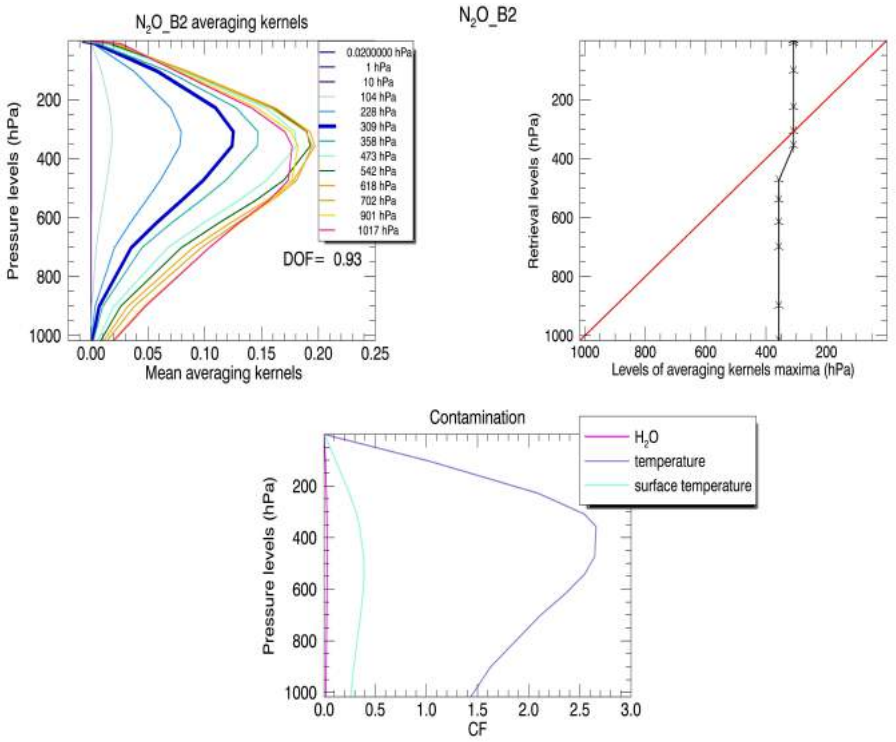


Figure 7. Same as Figure 6 for N_2O_B2.

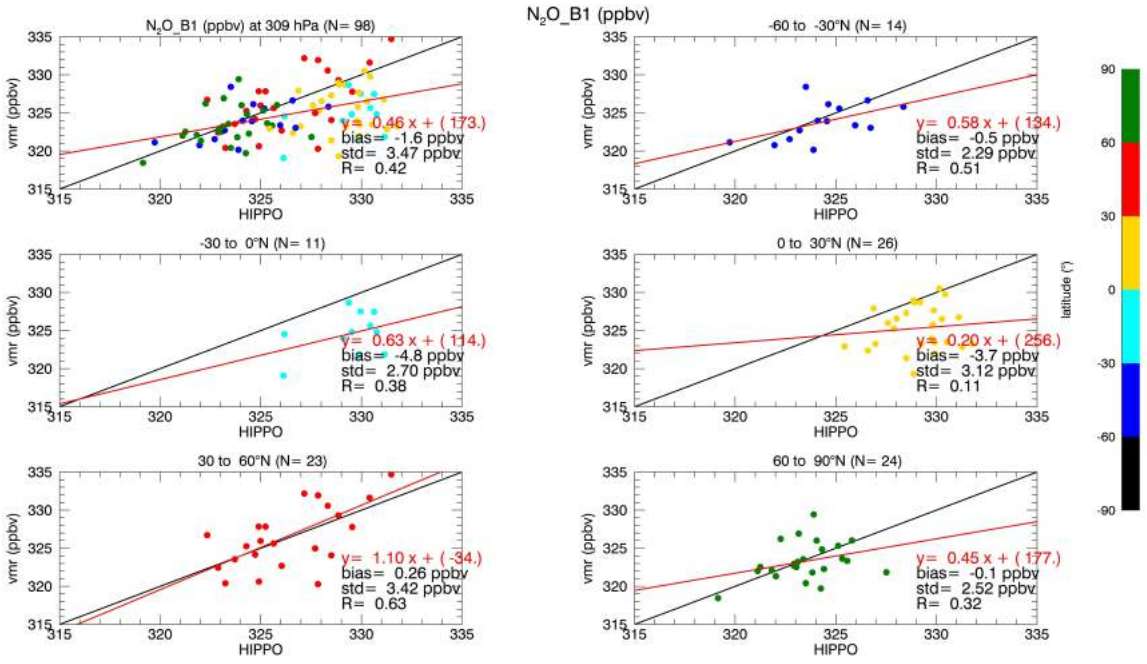


Figure 8. HIPPO N_2O measurements vs N_2O_B1 at 309 hPa averaged within a box of $\pm$ 200 km and a temporal window of $\pm$ 12h around the HIPPO measurements. The black and red lines represent the first bisector (y=x) and the linear regression line, respectively. The colorbar represents the different latitude bands of the HIPPO measurements. N is the number of collocated pixels.

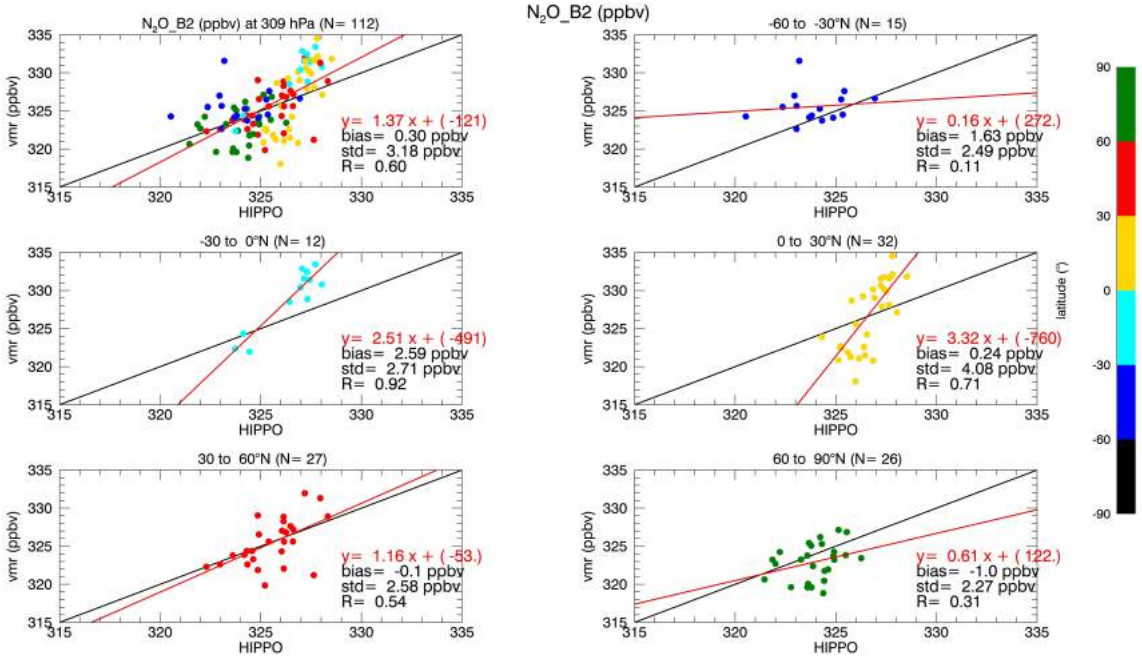


Figure 9. Same as Figure 8 but for the N_2O_B2.

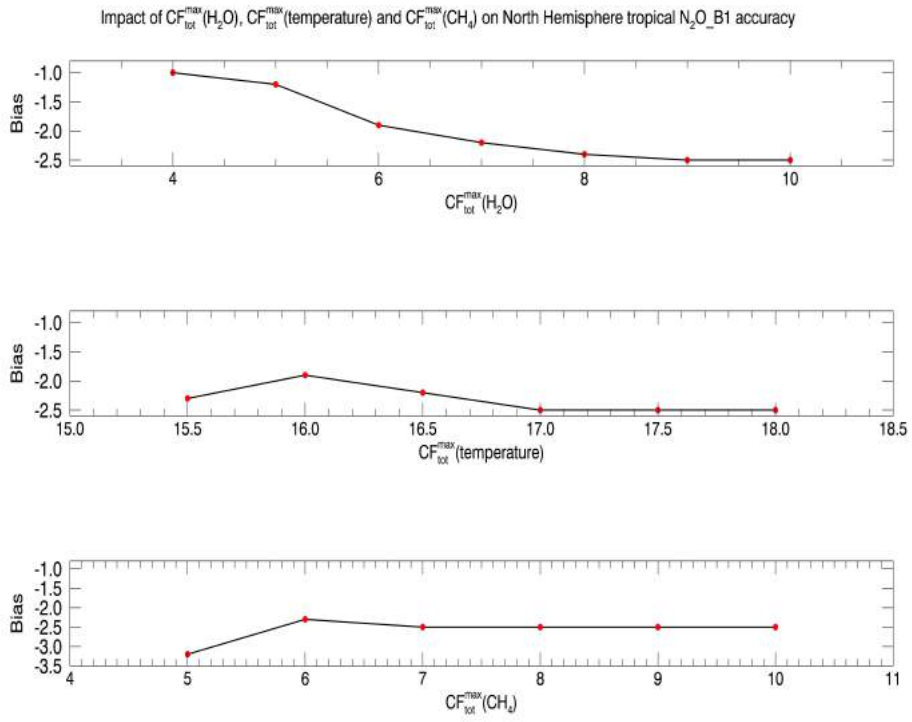


Figure 10. Mean bias corresponding to N_2O_B1-HIPPO collocated pixels in the northern hemisphere tropical regions (0-30°N) for different values of CF_{tot}^{max}(H_2O) (top), CF_{tot}^{max}(temperature) (middle) and CF_{tot}^{max}(CH_4) (bottom) .

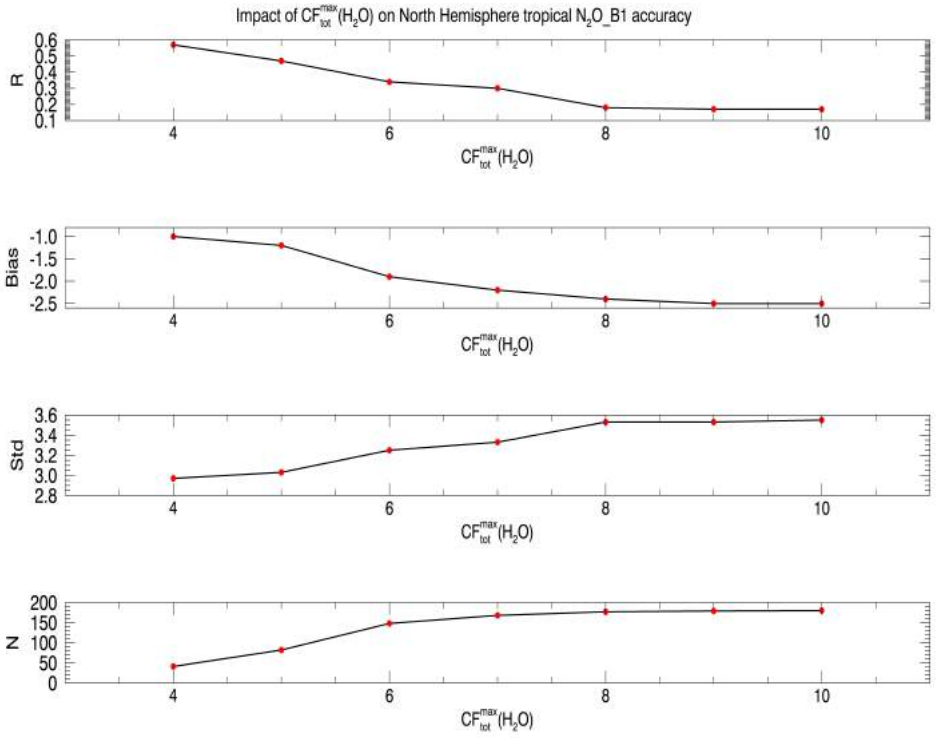


Figure 11. From top to bottom: Pearson linear correlation coefficient (R), mean bias, std error and number of IASI retrieved pixels (N) for different values of CF_{tot}^{max}(H$_2$O) corresponding to N$_2$O_B1-HIPPO collocated pixels in the northern hemisphere tropical regions (0-30°N)
.

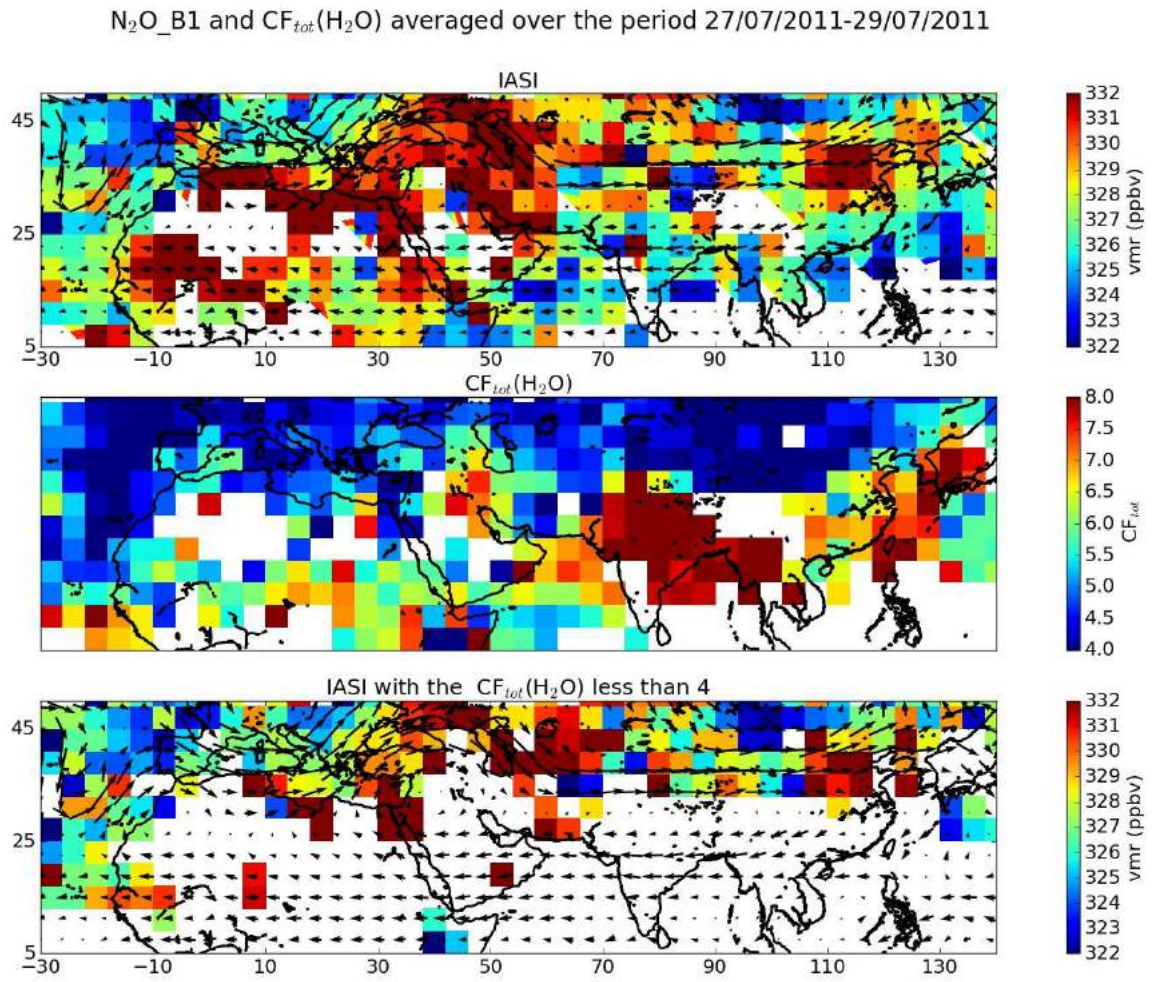


Figure 12. N_2O_B1 (top), $CF_{tot}(H_2O)$ (middle) and N_2O_B1 filtered with $CF_{tot}^{max}(H_2O)$ equal to 4 (bottom) averaged over the period 27-29 July 2011. Horizontal winds from ERA-Interim reanalysis at 300 hPa are superimposed to N_2O_B1.

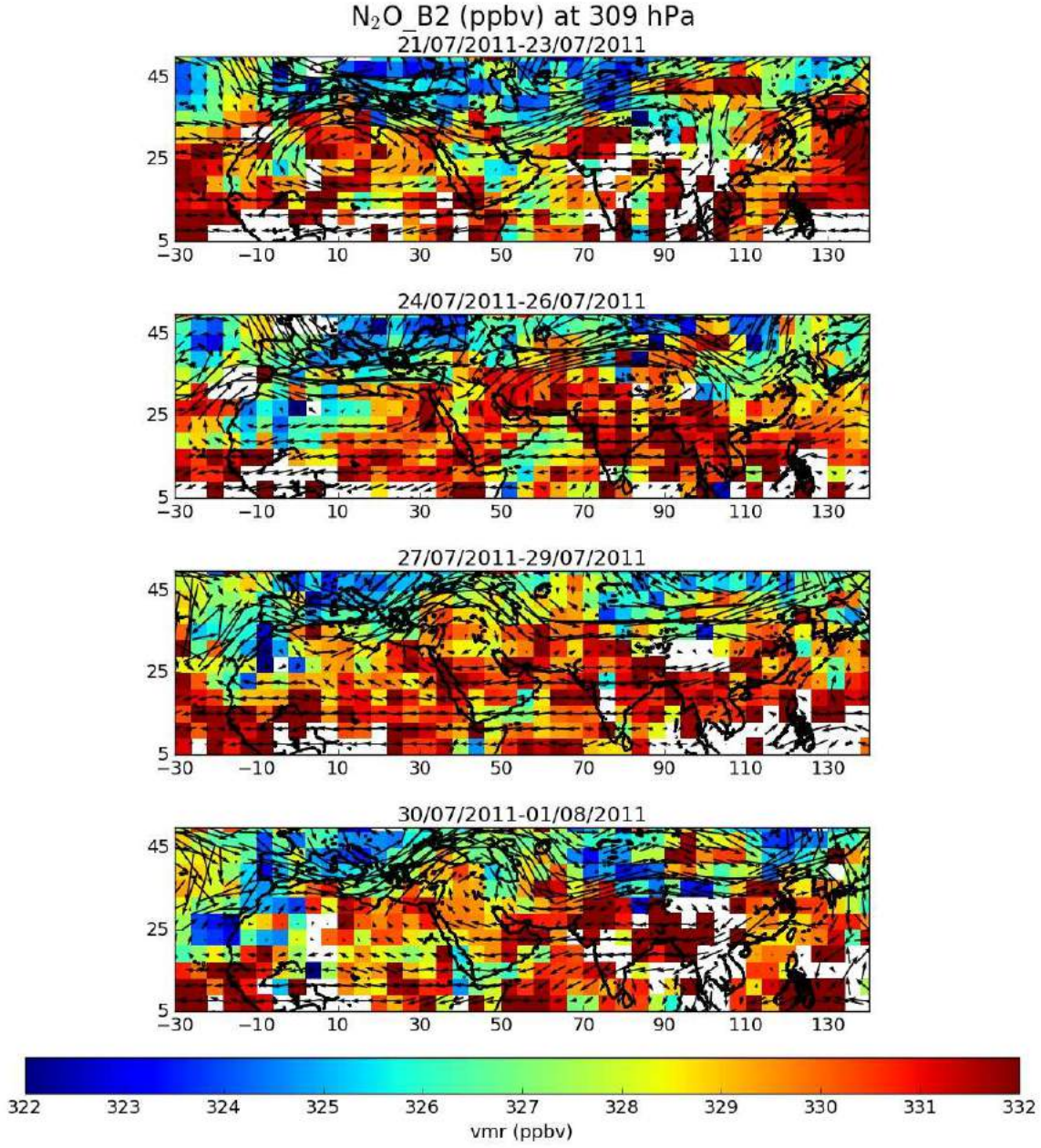


Figure 13. N_2O_B2 at 309 hPa and horizontal winds from ERA-Interim reanalysis at 300 hPa averaged over the periods (from top to bottom) 21-23 July, 24-26 July, 27-29 July and 30 July-01 August 2011.

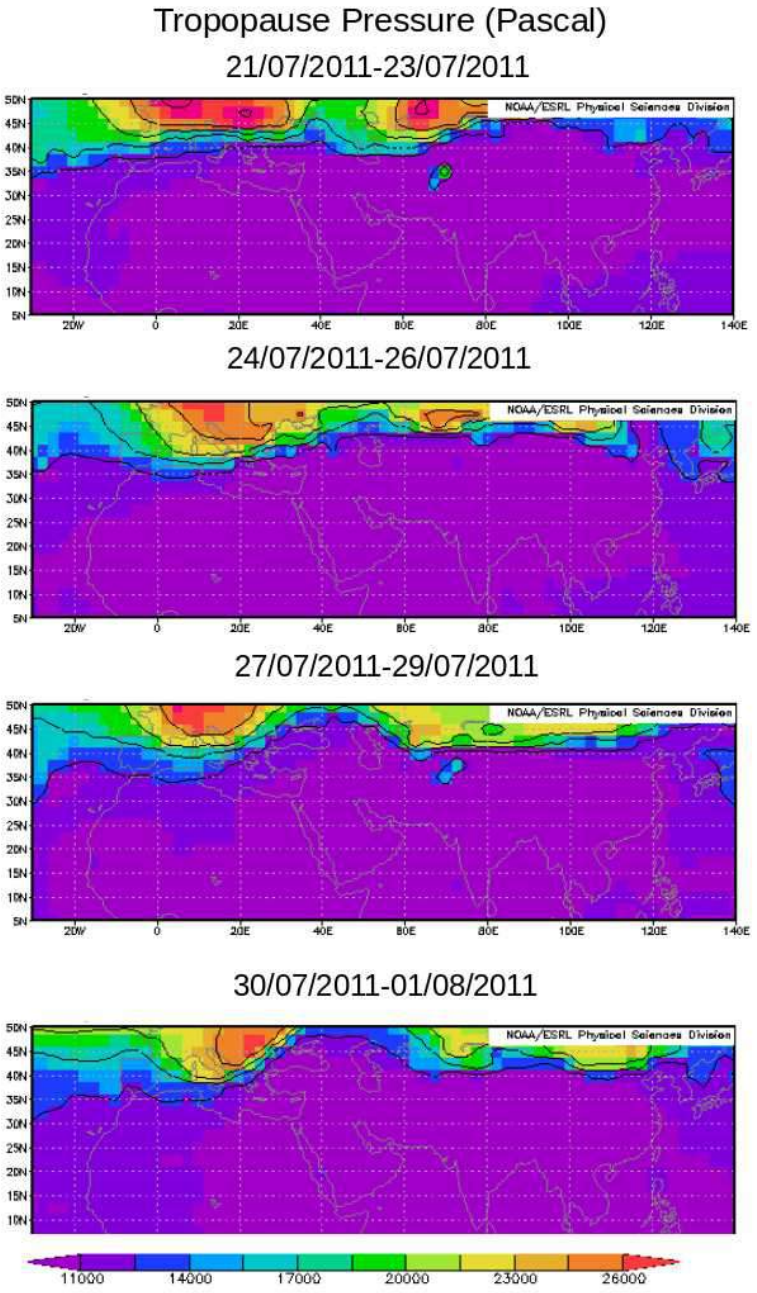


Figure 14. Tropopause pressure levels from the NCEP/NCAR 40-year reanalysis averaged over the periods (from top to bottom) 21-23 July, 24-26 July, 27-29 July and 30 July-01 August 2011.

31

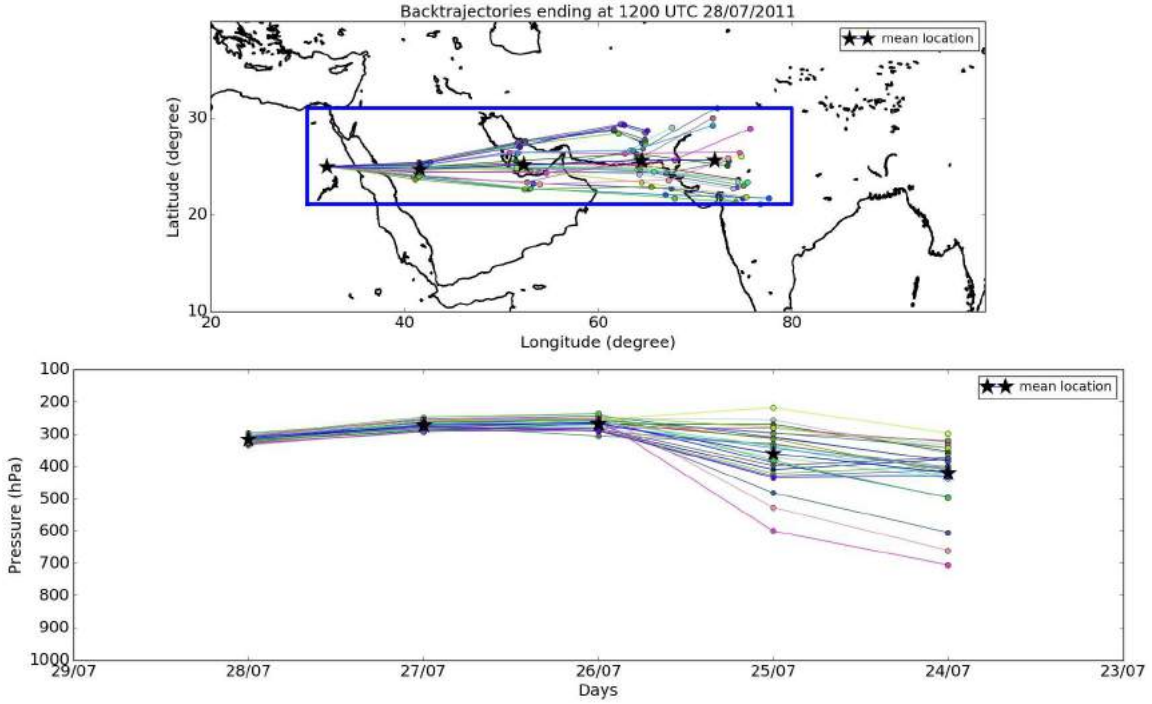


Figure 15. Top: Spatial evolution of a backtrajectory ensemble calculation performed with the HYSPLIT model and ending on 28 July 2011 at 12h00 UTC. Each member is calculated by offsetting a central point at 25°N, 32°E and 9100 m of altitude (∼306 hPa). The offset is 0.5 degree in the horizontal and 1 sigma unit in the vertical. The black stars represent the mean trajectory and the blue box which represents the latitude range of the trajectories is used to calculate an Hovmöller diagram along the longitudinal path of the air mass (see Figure 16). Bottom: The same backtrajectories presented above but as a function of pressure and time.

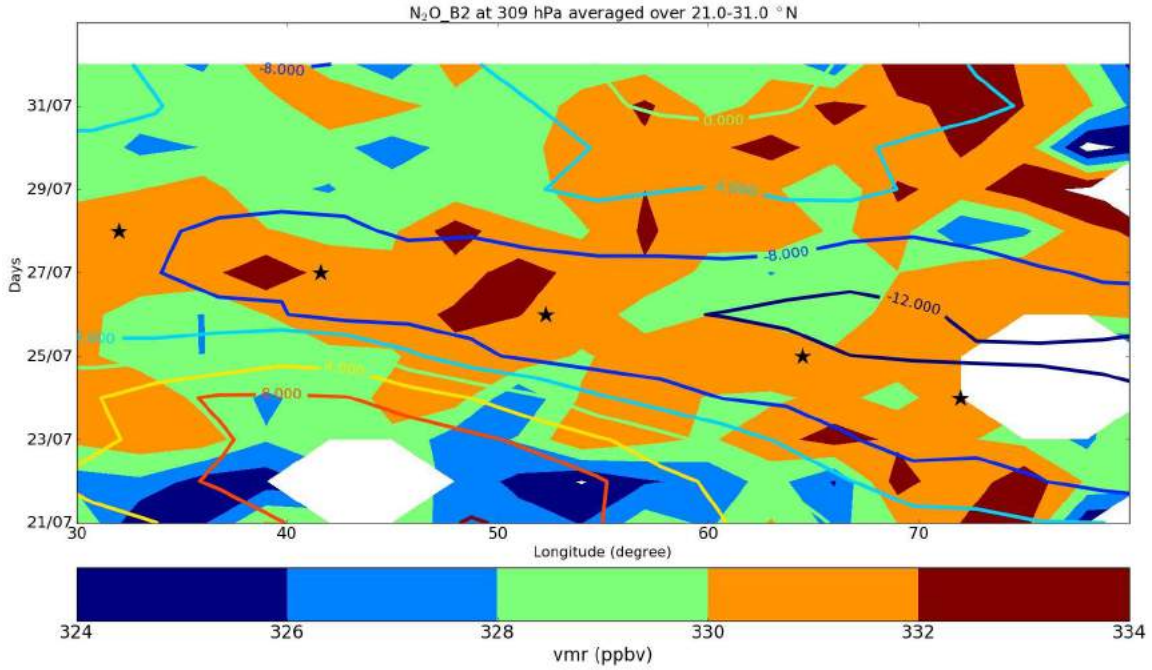


Figure 16. Hovmöller diagram showing N_2O_B2 at 309 hPa superimposed with zonal winds from ERA-Interim at 300 hPa (solid line contour) calculated by averaging the retrievals over the latitude range 21-31 °N (blue rectangle from figure 15) and on a daily basis. The black stars represent the mean trajectory of the backtrajectory ensemble (see Figure 15).

Code and data availability. The presented IASI N_2O retrievals (for the months June and July 2011 and over the spatial domain studied in this paper) are available by request to the author. A database with global N_2O retrievals on a daily basis is currently in preparation. The HIPPO data can be freely downloaded at http://hippo.ucar.edu/. IASI L1C and L2 data are available at the EUMETSAT Data Centre (www.eumetsat.int.). The MIPAS reference atmosphere profiles can be downloaded from http://www.atm.ox.ac.uk/RFM/atm/. The RTTOV software can be downloaded at https://www.nwpsaf.eu/site/software/rttov/download/ after registration.

Acknowledgements. We would like to thank the following institutes and programs for funding our study: Centre National de la Recherche Scientifique-Institut National des Sciences de l'Univers (CNRS-INSU), Centre National des Etudes Spatiales (CNES), Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) through the program the Mediterranean Integrated Studies at Regional And Local Scales (MISTRALS), Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment (ChArMEx), Météo-France, and Airbus Defense and Space for funding Y. Kangah's PhD thesis. We would like to thank also the NOAA/OAR/ESRL PSD, Boulder, Colorado, USA, for provided the NCEP Reanalysis data via their Web site at http://www.esrl.noaa.gov/psd/.

Chapitre 5

Intercomparaison entre les capteurs IASI et IASI-NG pour la mesure du N_2O

Dans ce chapitre, nous nous proposons de comparer les aptitudes à mesurer le protoxyde d'azote des capteurs IASI et IASI-NG. Après avoir présenté la méthodologie employée pour cette comparaison, nous allons étudier les performances de IASI-NG par rapport à celles de IASI dans un contexte de restitution simultanée avec une sélection de canaux analogue à celle qui a été réalisée pour IASI dans chacune des bandes B1 et B2. Nous nommerons repectivement IASI_N_2O_B1, IASI-NG_N_2O_B1, IASI_N_2O_B2 et IASI-NG_N_2O_B2 les estimations de N_2O réalisées à partir des observations synthétiques de IASI et IASI-NG dans les bandes B1 et B2. A titre d'information, dans l'Annexe B de cette thèse figurent les résultats de simulations analogues à celles réalisées dans ce chapitre mais pour un capteur théorique (que nous nommerons P_IASI) ayant la résolution spectrale de IASI et le rapport signal sur bruit de IASI-NG.

5.1 Méthodologie

Le principe de cette intercomparaison est d'étudier des restitutions de N_2O à partir d'observations simulées en utilisant une atmosphère théorique (supposée représenter l'atmosphère réelle) que nous appellerons nature-run. La figure 5.1 est une représentation schématique de la procédure de réalisation de ces restitutions théoriques. Les vecteurs d'états sont les mêmes

que ceux utilisés pour les inversions d'observations réelles IASI (cf. Chapitre 4). Les profils de N_2O utilisés comme nature-runs proviennent de simulations tri-horiaires du modèle ACTM (cf. Chapitre 1) pour la journée du 06 août 2013. Elles ont ensuite été interpolées spatialement et temporellement sur les orbites IASI de cette journée. Pour cette intercomparaison, nous avons utilisé une orbite en particulier dont la trace au sol est représentée sur la figure 5.2.

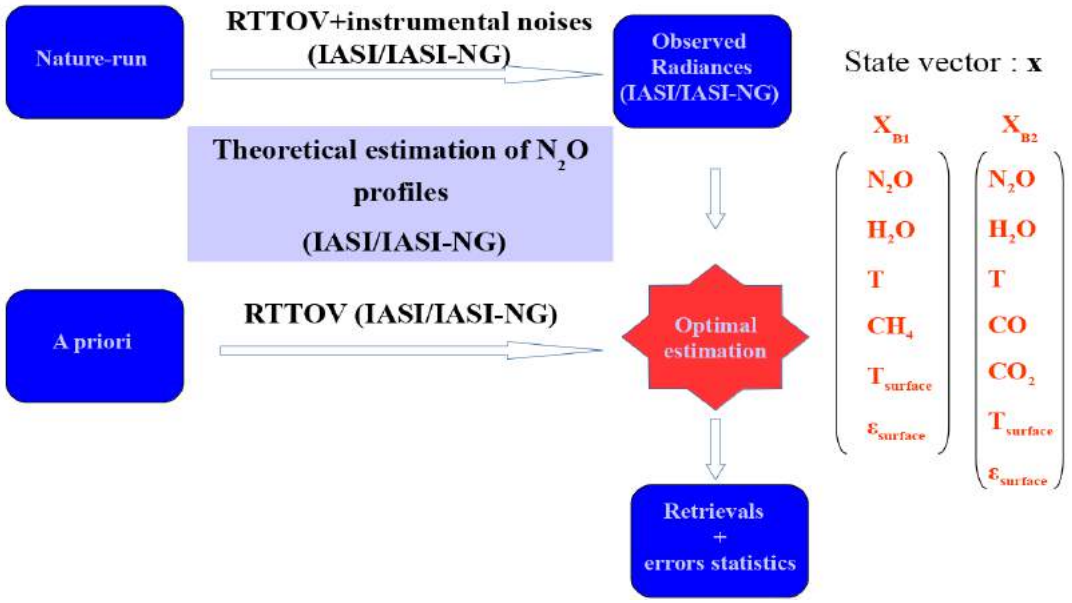


FIGURE 5.1 – A gauche : Schéma de principe des restitutions théoriques de N_2O à partir d'observations synthétiques IASI et IASI-NG. A droite : vecteur d'état restitué dans les deux bandes B1 et B2.

Les autres paramètres d'état de l'atmosphère utilisés comme nature-run pour la création des observations synthétiques proviennent d'une base de données de Météo-France spécialement créée en vue de la réalisation de futures expériences de simulation de systèmes d'observation ou OSSEs (Observing System Simulation Experiments) pour l'étude des performances théoriques du capteur IASI-NG (Andrey-Andrés et al., 2016). Par soucis de cohérence, le profil a priori de N_2O est le même que celui utilisé pour les inversions d'observations IASI réelles (cf. Chapitre 4). Cependant, l'écart-type de l'erreur sur l'a priori de N_2O est fixé à 2% en lieu et place des 4% précédemment utilisés du fait de la relative faible variabilité du N_2O calculé par le modèle ACTM. Quant aux autres paramètres du vecteur d'état, les profils a priori ont été conçus en

appliquant aux valeurs des nature-runs, des erreurs gaussiennes de moyennes nulles et d'écarts types correspondant aux écarts-types a priori utilisés au chapitre 4 (cf. Tableau 5.1). Puisque l'émissivité de surface est utilisée comme paramètre puits, nous avons gardé comme a priori les valeurs du nature-run pour ce paramètre. De même, les matrices de covariance des erreurs a priori sont construites de manière similaire au chapitre 4.

Paramètres	**Ecarts type des erreurs a priori (σ_a)**	
	IASI_N_2O_B1	IASI_N_2O_B2
N_2O	2 %	2 %
H_2O	30 %	10 %
Température	1 K	1 K
CH_4	2 %	pas estimé
CO	pas estimé	10 %
CO_2	pas estimé	2 %
Température de surface	2 K	2 K

TABLE 5.1 – Ecarts type d'erreur a priori (σ_a) utilisés pour chaque paramètre restitué.

Une étude menée par Crevoisier et al. (2014) montre que IASI-NG pourrait apporter des améliorations par rapport à IASI en termes d'erreurs sur la mesure de certains paramètres tels que la température, la température de surface, le CH_4, le CO et le CO_2. En nous inspirant de cette étude, nous avons appliqué pour ces paramètres des coefficients d'amélioration (cf. Tableau 5.2) des incertitudes a priori de IASI-NG par rapport à IASI.

Pour cette intercomparaison, nous nous placerons dans le cadre de l'approximation gaussienne linéaire de la théorie de l'estimation optimale (Rodgers, 2000) (cf. Chapitre 2, section 2.4.2). Dans cette approximation, l'erreur sur le vecteur d'état correspondant à la restitution simultanée des paramètres d'influence du modèle de transfert radiatif peut se décomposer en trois composantes : l'erreur de lissage, l'erreur de modélisation et le bruit d'estimation. Nous considérerons comme négligeable l'erreur de modélisation. Nous n'avons introduit aucune erreur de

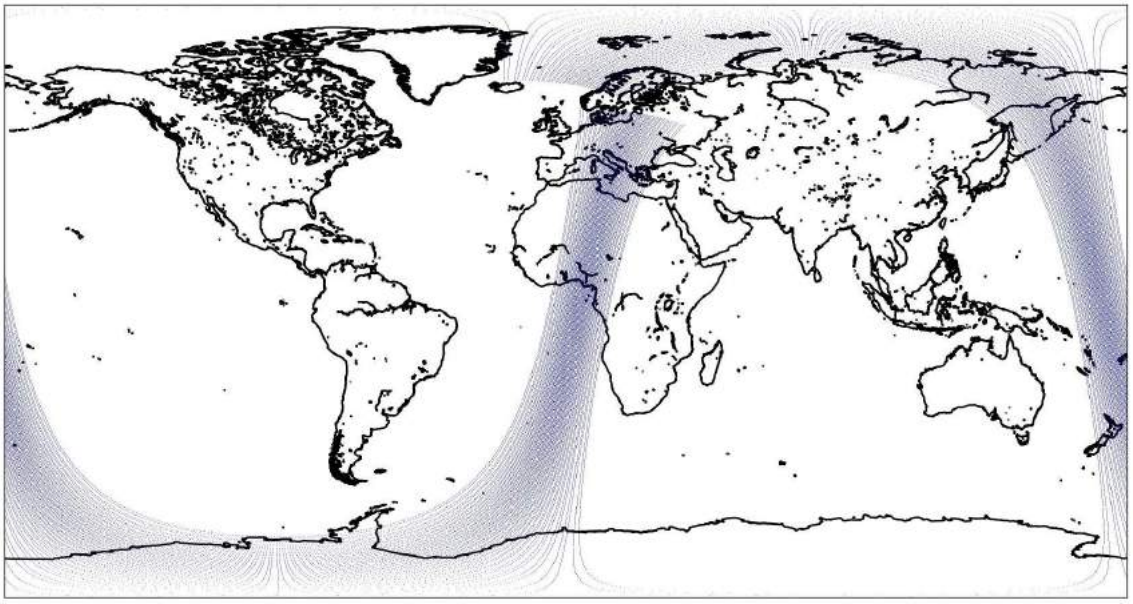


FIGURE 5.2 – Trace au sol de l'orbite IASI correspondant aux configurations terrestres et atmosphériques du nature run utilisé pour les simulations des radiances observées théoriques IASI et IASI-NG.

modélisation au niveau du transfert radiatif, la différence entre les observations synthétiques et les radiances simulées relève donc exclusivement du bruit instrumental. Dès lors, l'erreur d'estimation peut s'écrire (voir Chapitre 2, équations 2.21 et 2.23) :

$$\begin{aligned} \hat{x} - x = \quad & (A - I)(x - x_a) && \text{erreur de lissage} \\ & + G\epsilon && \text{bruit d'estimation} \end{aligned} \tag{5.1}$$

Dès lors, ce que nous appellerons estimation ($\hat{x}$) tout au long de ce chapitre correspondra à l'addition de ces deux sources d'erreurs (lissage et bruit d'estimation) au nature-run (x). Nous comparerons les performances relatives des deux capteurs IASI et IASI-NG en les mettant en perspective avec les performances obtenues précedemment pour les inversions réelles IASI.

De manière analogue aux canaux sélectionnés pour les estimations de profils de N_2O à

Paramètres	$\frac{\sigma_{a_{iasi-ng}}}{\sigma_{a_{iasi}}}$
Température	88%
CH_4	66%
CO	61%
CO_2	65%
Température de surface	88%

TABLE 5.2 – Rapport entre les écarts-types d' erreurs a priori utilisés pour les simulations IASI-NG ($\sigma_{a_{iasi-ng}}$) et ceux utilisés pour les simulations IASI ($\sigma_{a_{iasi}}$).

partir des observations IASI au chapitre 4, nous avons sélectionné des canaux IASI-NG dans chacune des bandes B1 et B2. En effet, les canaux IASI-NG ont été selectionnés afin d'obtenir des maxima de bruit et d'absorption des paramètres contaminants similaires à ceux des canaux IASI sélectionnés dans chacune des bandes B1 et B2. Ainsi, pour les estimations des profils de N_2O à partir des radiances IASI-NG, 393 canaux sont utilisés dans B1 (contre 126 avec IASI) et 254 dans B2 (contre 103 avec IASI). IASI-NG ayant un rapport signal sur bruit égal à 2 fois celui de IASI et une résolution spectrale égale à la moitié de celle de IASI, cela explique le fait que plus de canaux IASI-NG aient été sélectionnés dans chacune des bandes.

5.2 Sensibilité verticale

Les estimations de N_2O à partir des observations réelles IASI (voir Chapitre 4) ont une sensibilité verticale maximum de la moyenne à la haute troposphère avec un pic en haute troposphère à environ 300 hPa ($\sim$9-10 km d'altitude). Ainsi, pour une analyse scientifique des variations spatio-temporelles de N_2O à partir de ces estimations, on se contentera d'utiliser les champs estimés en haute troposphère ($\sim$300 hPa) puisque seules les fonctions de balayage

correspondant à cette partie de l'atmosphère (voir chapitre 4, figures 6 et 7) ont des maxima de sensibilité cohérents (ex : la fonction de balayage correspondant au niveau 309 hPa a son maximum à 309 hPa). On parlera dans ce cas d'une utilisation directe des estimations de N_2O en haute troposphère. Les autres fonctions de balayage ayant des maxima incohérents (ex : la fonction de balayage de IASI_N_2O_B1 correspondant au niveau 540 hPa a son maximum à 340 hPa), il est donc impossible d'interpréter directement les estimations de N_2O à ces niveaux. Par ailleurs, à travers des techniques d'assimilations de données et d'inversions de source on pourrait remonter jusqu'aux sources d'émission de N_2O en supposant le transport atmosphérique bien représenté dans les modèles. Dès lors, puisque ces techniques sont intrinsèquement liées aux capacités de modélisation de la dynamique atmosphérique (notammment des mouvements verticaux), on cherchera donc à avoir des mesures le plus proche possible de la surface. Dans ce qui suit, nous dégagerons l'apport de IASI-NG par rapport à IASI en termes de sensibilité verticale pour la mesure du N_2O en gardant en ligne de mire à la fois l'exploitation directe de ces mesures (pour des analyses scientifiques par exemple) ainsi que leur utilisation indirecte dans le cadre de l'estimation des sources d'émission de N_2O.

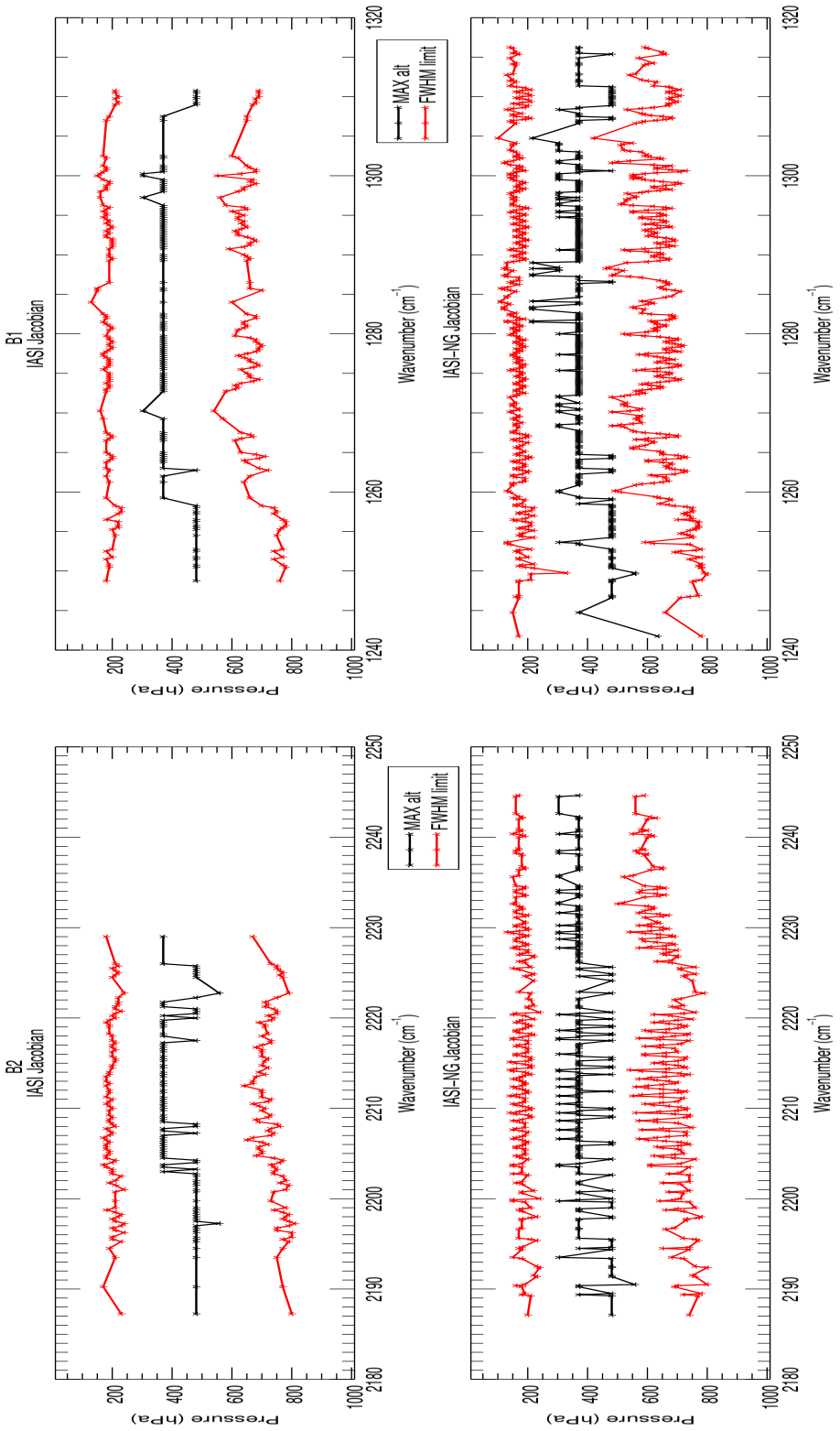


FIGURE 5.3 – Altitude du maximum (en noir) et des limites de la largeur à mi-hauteur (en rouge) des Jacobiens de N_2O moyennés sur les pixels de l'orbite de référence (cf. Figure 5.2) pour IASI (à gauche) et IASI-NG (à droite) dans les bandes B1 (en haut) et B2 (en bas).

La figure 5.3 présente l'altitude du maximum ainsi que la largeur à mi-hauteur du Jacobien moyen de N_2O correspondant aux capteurs IASI et IASI-NG dans chacune des bandes B1 et B2. La largeur à mi-hauteur suggère une sensibilité de 800 à 200 hPa pour les deux instruments et dans les deux bandes. Concernant les maxima, ils se situent essentiellement autour de 500 et 300 hPa pour les deux instruments et dans les deux bandes. La sensibilité verticale en termes de fonctions de balayage pour IASI_N_2O_B1 et IASI-NG_N_2O_B1 est représentée sur la figure 5.4 et celle pour IASI_N_2O_B2 et IASI-NG_N_2O_B2 sur la figure 5.6.

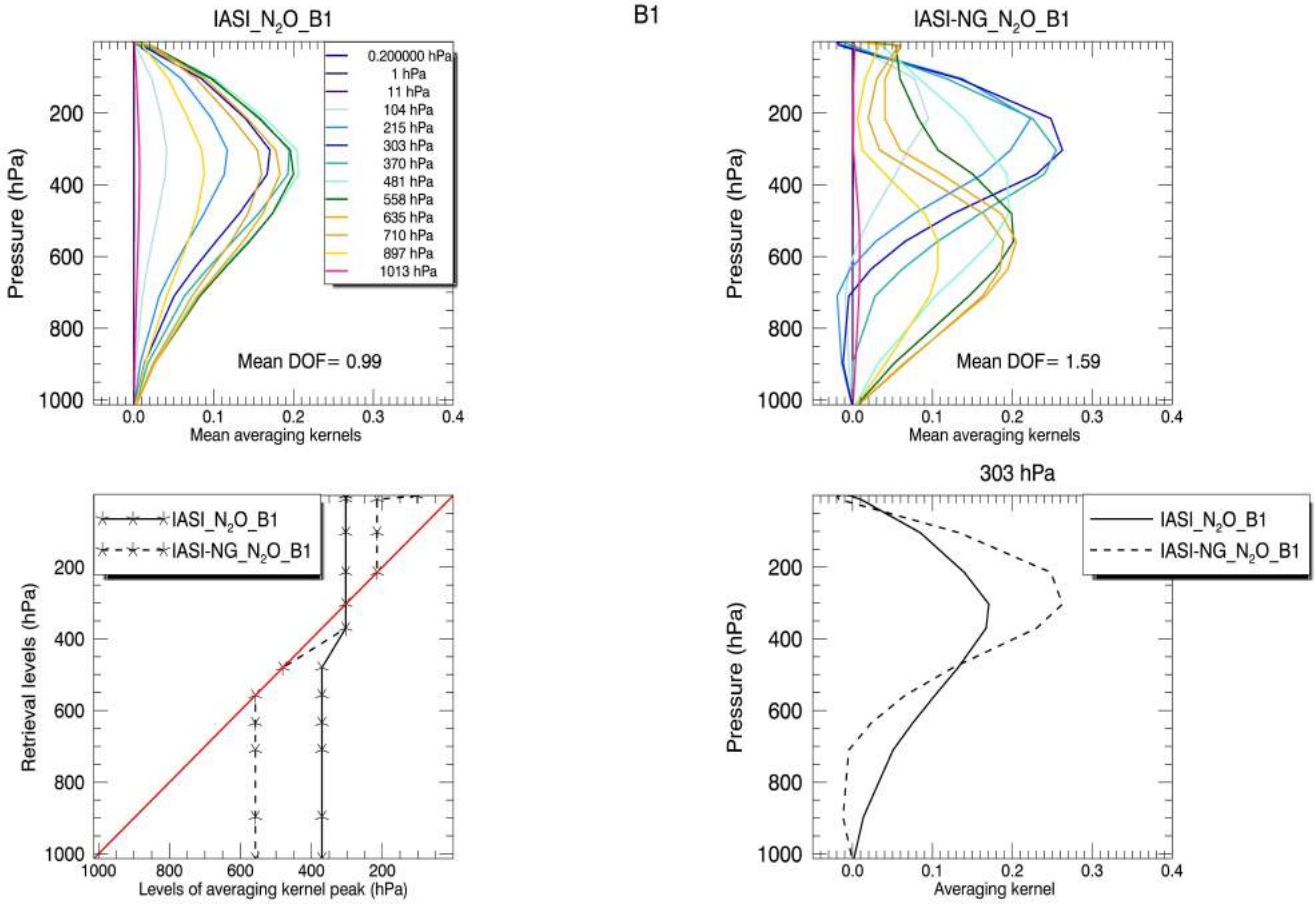


FIGURE 5.4 – Fonctions de balayage (en haut) de N_2O moyennées sur l'orbite de référence pour IASI_N_2O_B1 (à gauche) et IASI-NG_N_2O_B1 (à droite). Altitudes des maxima des fonctions de balayage moyens (en bas à gauche) et fonctions de balayage moyens du niveau 303 hPa (en bas à droite) pour IASI_N_2O_B1 (traits pleins) et IASI-NG_N_2O_B1 (tirets).

On a une augmentation du DOF moyen de 60% pour IASI-NG_N_2O_B1 (1.59) par rapport à IASI_N_2O_B1 (0.99). En analysant les maxima des fonctions de balayage, on constate que

cet apport en DOF se traduit par un deuxième niveau d'information autour de 558 hPa ($\sim$ 5 km d'altitude) en moyenne sur tout le globe et autour de 635 hPa ($\sim$ 3.8 km d'altitude) dans les tropiques sur terre et de jour (cf. Figure 5.5), du fait du contraste thermique élevé entre la surface et les premières couches de l'atmosphère (Hache et al., 2014). Les estimations IASI-NG_N_2O_B1 permettraient donc d'avoir directement de l'information sur le N_2O en moyenne troposphère (jusqu'à 3.8 km d'altitude) ce que ne permettait pas IASI_N_2O_B1. Par ailleurs, la fonction de balayage correspondant au niveau 303 hPa de IASI-NG_N_2O_B1 a un maximum d'environ 50% plus prononcé que celui de IASI_N_2O_B1. Cela signifie que l'on observera beaucoup plus nettement ce niveau avec IASI-NG_N_2O_B1 qu'avec IASI_N_2O_B1.

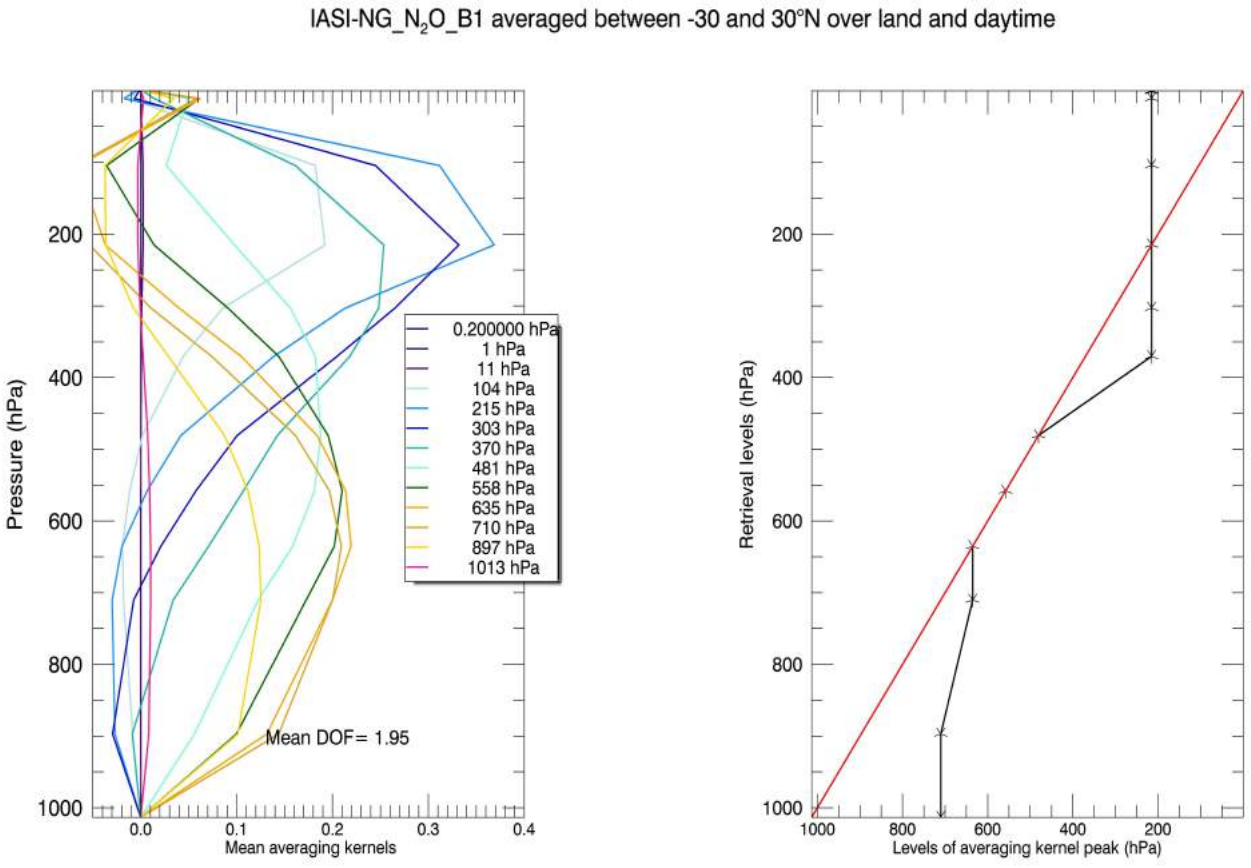


FIGURE 5.5 – A gauche : fonctions de balayage de N_2O pour IASI-NG_N_2O_B1 moyennées sur les pixels terrestres de jour et entre -30 et +30°N sur l'orbite de référence. A droite : altitudes des maxima des fonctions de balayage moyens

En ce qui concerne IASI-NG_N_2O_B2, on a une augmentation du DOF moyen d'environ

35% par rapport à IASI_N_2O_B2. Cette augmentation se traduit par une amélioration de la sensibilité de la mesure dans la haute troposphère. On n'a cependant pas de niveau supplémentaire d'information dans la moyenne troposphère. Puisque nous voulons évaluer les performances relatives de IASI et de IASI-NG pour la mesure du N_2O, nous limiterons notre analyse au niveau d'estimation commun au deux capteurs à savoir la haute troposphère. Les graphiques correspondant aux performances de IASI-NG pour l'estimation du N_2O dans la moyenne troposphère sont néanmoins disponibles dans l'Annexe B.

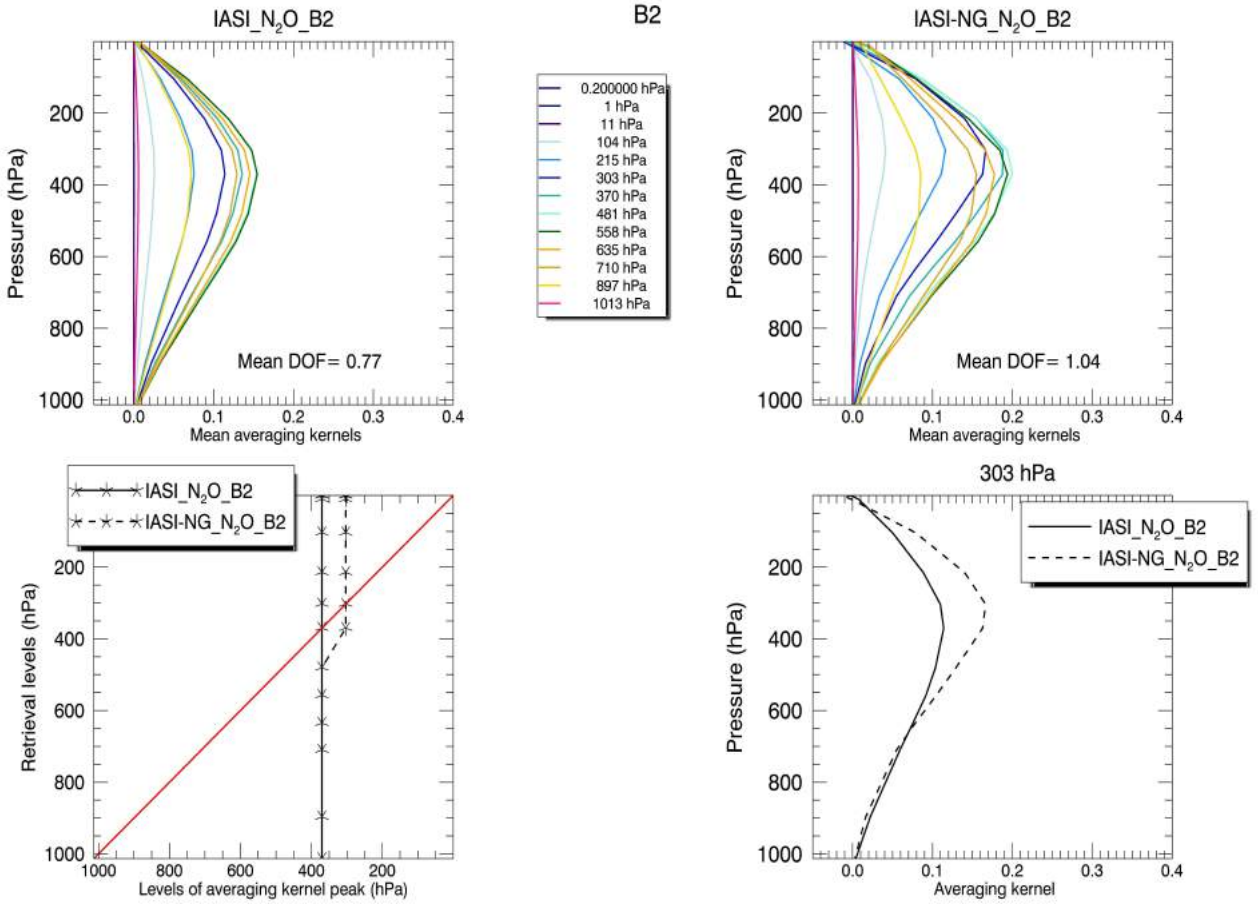


FIGURE 5.6 – Fonctions de balayage (en haut) de N_2O moyennées sur l'orbite de référence pour IASI_N_2O_B2 (à gauche) et IASI-NG_N_2O_B2 (à droite). Altitudes des maxima des fonctions de balayage moyens (en bas à gauche) et fonctions de balayage moyens du niveau 303 hPa (en bas à droite) pour IASI_N_2O_B2 (traits pleins) et IASI-NG_N_2O_B2 (tirets).

5.3 Facteurs de contamination sur l'estimation de N_2O

Nous étudierons dans ce qui suit les facteurs de contamination que nous continuerons à nommer CF (cf. équation 6 du chapitre 4) des principaux paramètres restitués simultanément sur les estimations de N_2O correspondant aux deux instruments IASI et IASI-NG.

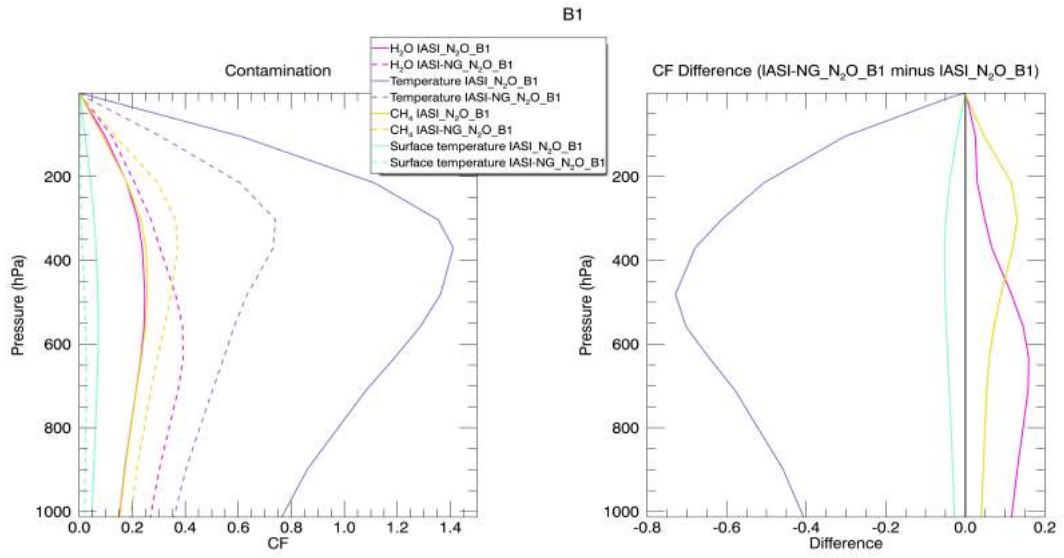


FIGURE 5.7 – A gauche : facteurs de contamination (CF) moyens sur les profils estimés IASI_N_2O_B1 (traits pleins) et IASI-NG_N_2O_B1 (tirets) des principaux paramètres restitués simultanément : CH_4 (jaune), H_2O (rose), température (violet) et température de surface (vert). A droite : différences des CF entre IASI-NG_N_2O_B1 et IASI_N_2O_B1.

Les figures 5.7 et 5.8 présentent les CF correspondant respectivement aux estimations utilisant les bandes B1 et B2. Pour IASI-NG_N_2O_B1, on a, d'une part, une diminution de moitié des CF de la température et de la température de surface et d'autre part jusqu'à 50% d'augmentation des CF du CH_4 et du H_2O par rapport à IASI_N_2O_B1. En ce qui concerne IASI-NG_N_2O_B2, on a jusqu'à 100% d'augmentation du CF de la température par rapport à IASI_N_2O_B2 tandis qu'on a pratiquement les même valeurs de CF correspondant aux autres paramètres (température de surface et H_2O) pour IASI_N_2O_B2 et IASI-NG_N_2O_B2. Les facteurs de conta-

mination rendent compte de l'erreur induite par les autres paramètres d'influence du modèle de transfert radiatif dans la bande spectrale d'absorption du N_2O. Ainsi, un meilleur rapport signal sur bruit signifie une meilleure détection du N_2O mais aussi des autres paramètres ce qui peut, in fine, induire une meilleure estimation des profils de N_2O mais aussi plus de contamination. Une meilleure résolution spectrale permet de mieux caractériser les raies spectrales et donc éventuellement de mieux séparer les signatures spectrales des différents paramètres ce qui peut aboutir à une diminution de la contamination. La diminution des incertitudes a priori peut également conduire à une diminution de la contamination. Ainsi, la variation des CF entre les estimations IASI et IASI-NG sont la résultante des gains éventuels apportés par l'amélioration de la résolution spectrale et par l'amélioration des incertitudes a priori et des pertes éventuelles dues à un meilleur rapport signal sur bruit. Nous retiendrons ici l'augmentation du CF de la vapeur d'eau dans IASI-NG_N_2O_B1 par rapport à IASI_N_2O_B1. En effet, dans le chapitre précédent, nous avions mis en évidence le rôle critique de ce paramètre pour les estimations IASI_N_2O_B1 dans les tropiques. Dès lors, on peut affirmer qu'une diminution du CF du H_2O pour de meilleures estimations IASI_N_2O_B1 dans les tropiques ne passera pas nécéssairement par une amélioration des caractéristiques instrumentales mais passera avant tout par une amélioration du système d'inversion en ce qui concerne d'une part les a priori de H_2O et les contraintes a priori associées (par exemple utiliser comme a priori le H_2O des résultats d'assimilation au lieu des données officielles de niveaux 2 de l'instrument IASI) et d'autre part la prise en compte de l'impact du HDO sur les radiances observées dans la bande B1.

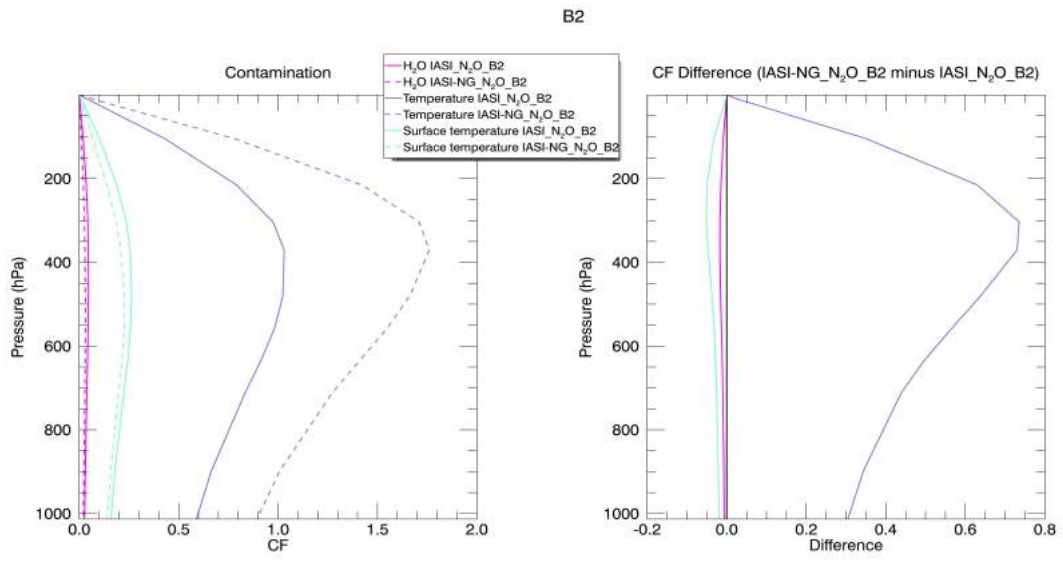


FIGURE 5.8 – A gauche : facteurs de contamination (CF) moyens sur les profils estimés IASI_N_2O_B2 (traits pleins) et IASI-NG_N_2O_B2 (tirets) des principaux paramètres restitués simultanément : CH_4 (jaune), H_2O (rose), température (violet) et température de surface (vert). A droite : différences des CF entre IASI-NG_N_2O_B2 et IASI_N_2O_B2.

5.4 Caractérisation des erreurs

Intéressons-nous maintenant aux erreurs relatives aux estimations correspondant aux deux instruments. Les figures 5.9 et 5.10 présentent pour IASI et IASI-NG les distributions des erreurs relatives aux estimations utilisant respectivement les bandes B1 et B2. L'erreur totale sur IASI-NG_N_2O_B1 (Figure 5.9) présente une moyenne (0.56%) 4 fois plus élevée que sur IASI_N_2O_B1 (0.14%). Ce biais moyen plus élevé au niveau de l'erreur totale est le reflet d'un biais moyen 10 fois plus élevé sur IASI-NG_N_2O_B1 par rapport à IASI_N_2O_B1 au niveau de l'erreur de lissage. Les écarts-types des erreurs sur IASI-NG_N_2O_B1 sont légèrement inférieurs mais de même ordre de grandeur que sur IASI_N_2O_B1. Concernant IASI-NG_N_2O_B2 (Figure 5.10), on a à la fois sur le bruit d'estimation et sur l'erreur de lissage l'apparition, certes faiblement (0.48%) d'un biais moyen quasi inexistant sur IASI_N_2O_B2 et une augmentation de près de 50% par rapport à IASI_N_2O_B2 de l'écart-type de l'erreur de lissage. L'écart-type du bruit d'estimation sur IASI-NG_N_2O_B2 est cependant équivalent à celui du bruit d'estimation sur IASI_N_2O_B2. L'erreur de lissage est en partie liée à la forme et aux valeurs de la fonction de balayage. Ainsi, les fonctions de balayage à 303 hPa (cf. Figures 5.4 et 5.6) suggère une moindre influence de l'a priori et des autres niveaux d'estimation sur les estimations IASI-NG comparées aux estimations IASI à 303 hPa. Ainsi, à 303 hPa on a sur les estimations IASI-NG un effet de lissage moindre que sur les estimations IASI. Dès lors, il vient que les estimations IASI-NG à 303 hPa sont plus représentatives du N_2O réel à ce niveau. Par ailleurs, comme nous l'avions évoqué au chapitre 4, dans une configuration de restitution simultanée de plusieurs paramètres, l'erreur de lissage intègre indirectement l'information sur la contamination des autres paramètres sur le paramètre cible ce qui peut induire une augmentation des erreurs. Quant au bruit d'estimation, il combine à la fois les effets de la contamination et du lissage (à travers la matrice de gain) et les effets dus au bruit instrumental.

Pour résumer, les estimations avec IASI-NG sont plus sensibles au N_2O à 303 hPa que celles avec IASI mais avec des erreurs plus élevées en termes de biais (néanmoins inférieurs à 1%) sur IASI-NG_N_2O_B1 et IASI-NG_N_2O_B2 et même en termes d'écarts-types (augmentation d'environ 30%) sur IASI-NG_N_2O_B2. Ainsi le biais moyen sur IASI-NG_N_2O_B1 augmente

par rapport à IASI_N_2O_B1 à cause de l'augmentation des facteurs de contamination du H_2O et du CH_4 tandis que l'écart-type des erreurs diminue du fait de l'amélioration du rapport signal sur bruit. En ce qui concerne sur IASI-NG_N_2O_B2, on a à la fois une augmentation du biais moyen et de l'écart-type des erreurs d'une part à cause de l'augmentation de la contamination de la température et d'autre part à cause du rapport signal sur bruit qui reste néanmoins relativement élevé malgré sa diminution d'un facteur 2 par rapport à celui de IASI_N_2O_B2. En effet, l'utilisation de plus de canaux entraine certes une amélioration de la sensibilité mais peu également induire une augmentation du bruit d'estimation si le bruit reste relativement élevé par rapport au signal spectral du N_2O.

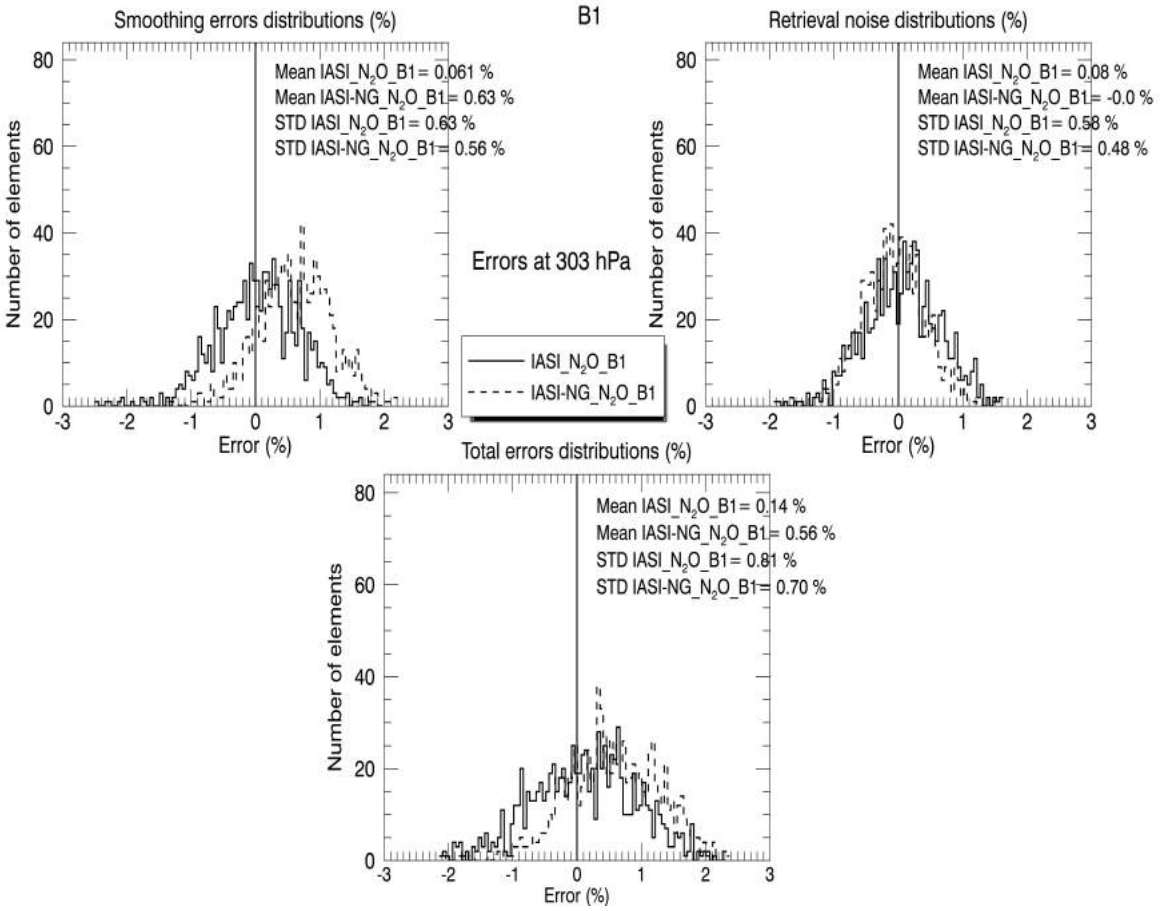


FIGURE 5.9 – Distribution de l'erreur de lissage (en haut, à gauche), du bruit d'estimation (en haut, à droite) et de l'erreur totale (en bas) correspondant à IASI_N_2O_B1 (traits pleins) et IASI-NG_N_2O_B1 (tirets) à 303 hPa.

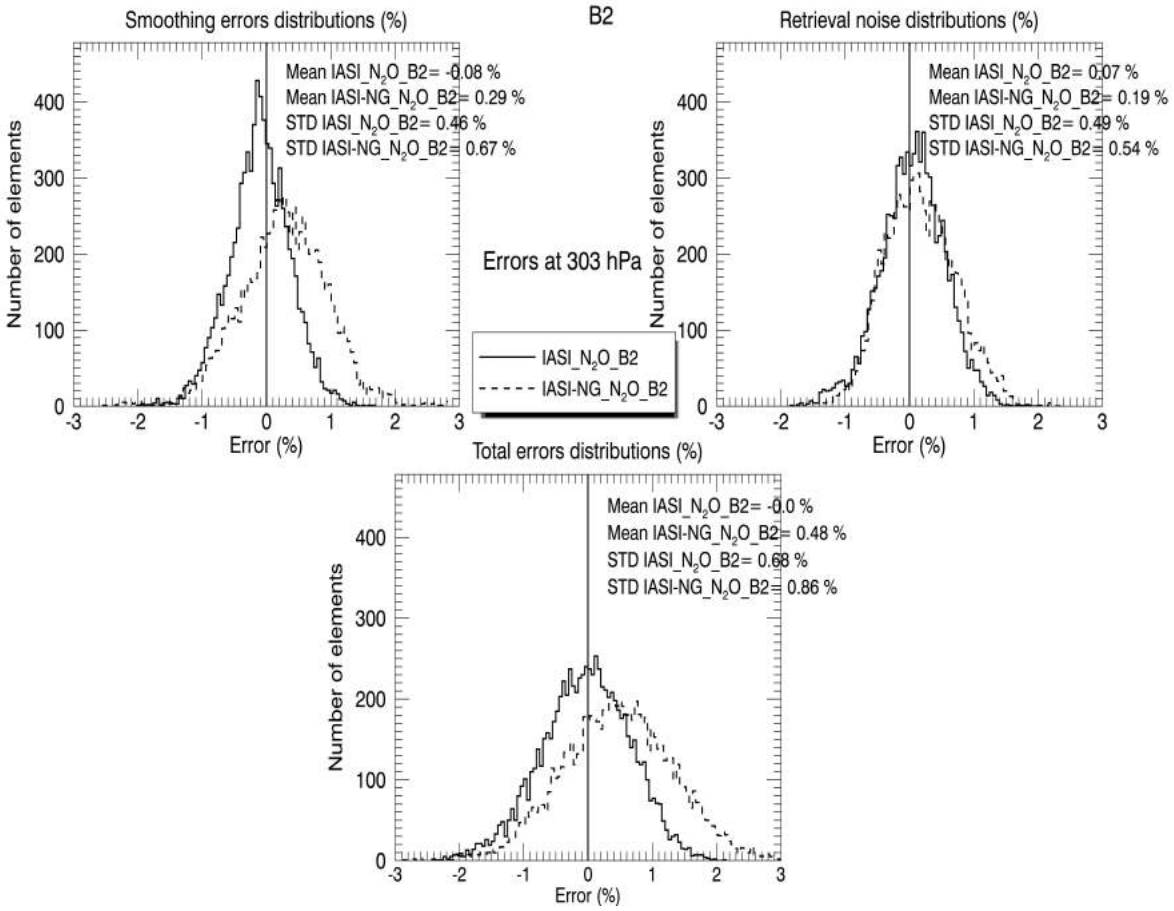


FIGURE 5.10 – Distribution de l'erreur de lissage (en haut, à gauche), du bruit d'estimation (en haut, à droite) et de l'erreur totale (en bas) correspondant à IASI_N_2O_B2 (traits pleins) et IASI-NG_N_2O_B2 (tirets) à 303 hPa.

5.5 Comparaison des estimations à 303 hPa

IASI et IASI-NG ayant leur maximum de sensibilité en haute troposphère ce qui correspond au niveau d'estimation 303 hPa, nous nous proposons d'évaluer les aptitudes relatives de ces deux instruments à restituer les variations de N_2O à ce niveau. Puisque nous avions évalué au chapitre 4 les estimations IASI moyennées sur une grille horizontale de $4° \times 4°$ de résolution, nous utilisons une démarche similaire tout en évaluant aussi les estimations brutes c'est-à-dire provenant des pixels IASI et IASI-NG à leur résolution d'origine (soit 12 km de diamètre au nadir). Les figures 5.11 et 5.12 présentent les résultats des comparaisons entre les estimations

utilisant respectivement les bandes B1 et B2, et les nature-runs (réalités théoriques). Les biais et les écarts-types d'erreur sont cohérents avec la caractérisation des erreurs précédemment effectuée. Les pentes des droites de régression ainsi que les valeurs de corrélation linéaires de Pearson (R) donnent de nouvelles indications sur les estimations. En effet, on observe des corrélations relativement élevées pour IASI-NG_N_2O_B1 à la fois sur les pixels bruts (R=0.64) et sur les pixels moyennés (R=0.73). On a même une pente plus proche de 1 avec les pixels bruts (1.53) qu'avec les estimations moyennées (1.83). Par contre, en ce qui concerne IASI_N_2O_B1, on a des taux de corrélations relativement faible à la fois sur les pixels bruts (R=0.16) et sur les pixels moyennés (R=0.3). Ainsi comme prévu, on observe que IASI-NG_N_2O_B1 restitue de façon assez fidèle les variations de N_2O à 303 hPa contrairement à IASI_N_2O_B1 sur lequel l'effet de lissage limite fortement les capacités d'observation à ce niveau d'altitude. IASI-NG_N_2O_B1 fournit même des champs de N_2O de bonne qualité à la résolution horizontale de base du pixel d'observation du capteur (12 km au nadir). IASI-NG_N_2O_B1 à cette résolution est même bien meilleur en termes de corrélation (0.64 contre 0.28) et de pente (1.53 contre 0.21) que IASI_N_2O_B1 moyennés sur des grilles de résolution $4° \times 4°$.

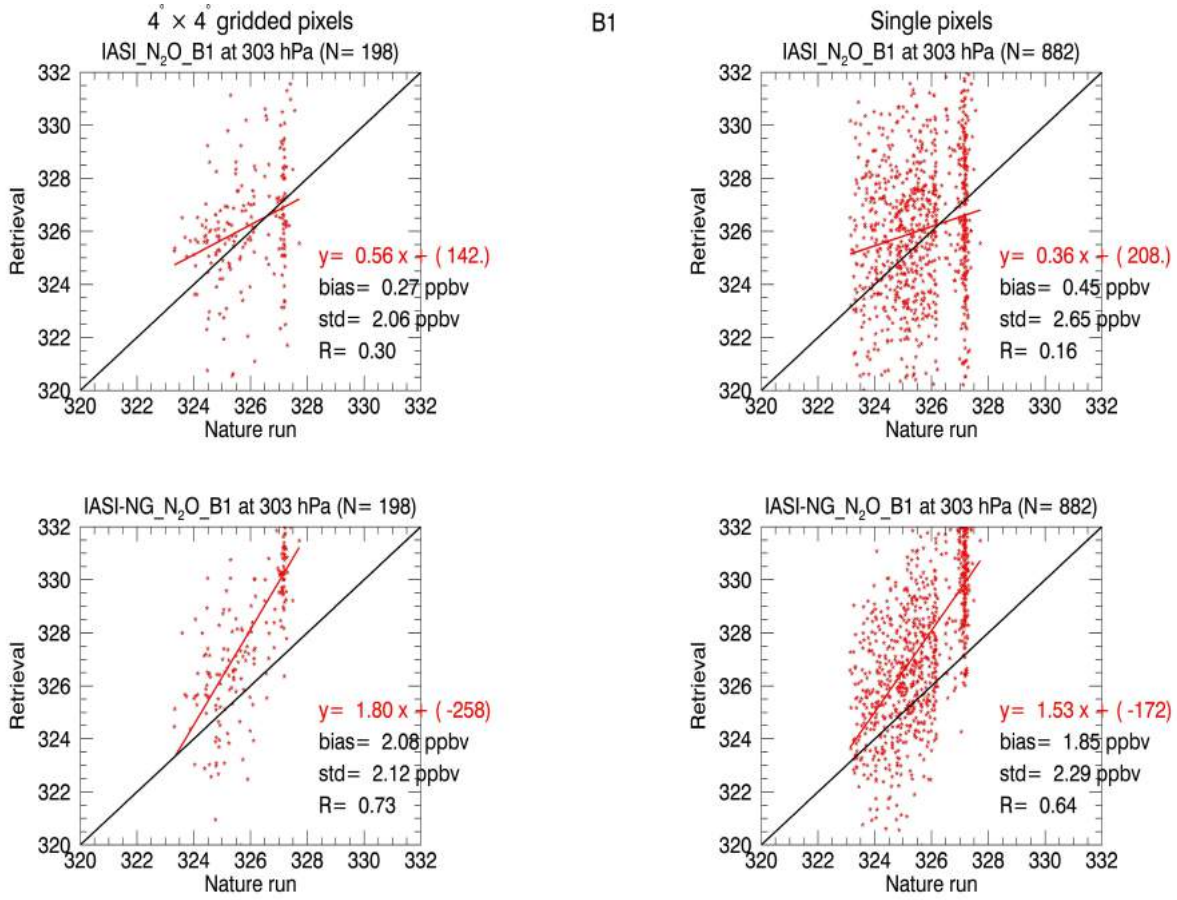


FIGURE 5.11 – En haut (resp en bas) : nature-run vs IASI_N_2O_B1 (resp IASI-NG_N_2O_B1) avec les pixels individuels (à droite) et moyennés sur une grille horizontale de $4° \times 4°$ de résolution (à gauche). Sur chaque graphique, la droite rouge représente la droite de régression linéaire dont l'équation est écrite en rouge et la droite noire représente la première bissectrice.

Concernant IASI-NG_N_2O_B2, on observe une corrélation linéaire avec le nature-run modérée sur les pixels moyennés (R=0.41) et faible sur les pixels bruts (R=0.25). De plus, IASI_N_2O_B2 ne commence à être correlé (certes faiblement, R=0.17) avec le nature-run que lorsque les pixels sont moyennés sur les grilles de résolution $4° \times 4°$. Ainsi, IASI-NG_N_2O_B2 par rapport à IASI_N_2O_B2 permet de simplement mieux restituer les variations du N_2O en haute troposphère avec une résolution spatiale de l'ordre de quelques centaines de kilomètres.

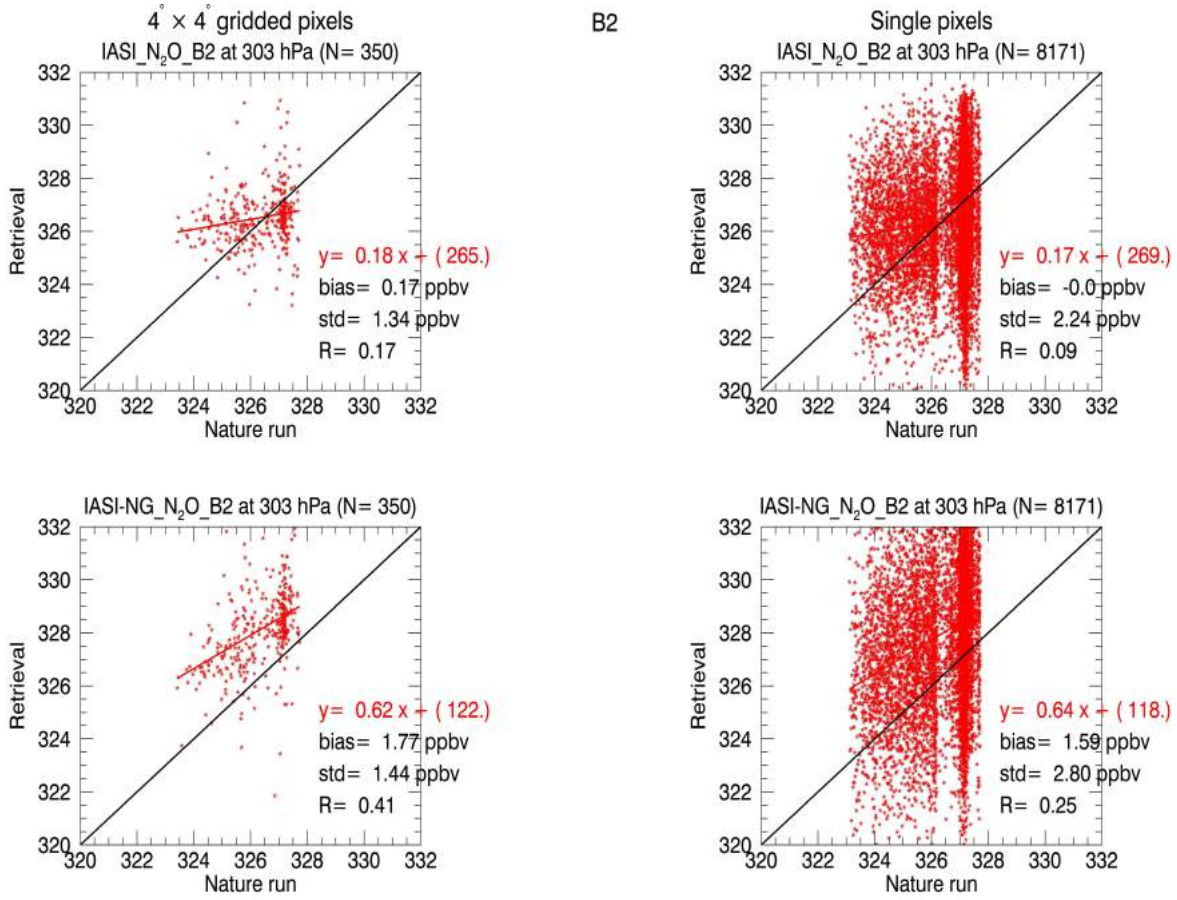


FIGURE 5.12 – En haut (resp en bas) : nature-run vs IASI_N_2O_B2 (resp IASI-NG_N_2O_B2) avec les pixels individuels (à droite) et moyennés sur une grille horizontale de $4° \times 4°$ de résolution (à gauche). Sur chaque graphique, la droite rouge représente la droite de régression linéaire dont l'équation est écrite en rouge et la droite noire représente la première bissectrice.

5.6 Conclusions

Nous avons dans ce chapitre mis en évidence l'apport théorique de IASI-NG par rapport à IASI pour la mesure du N_2O troposphérique en réalisant des estimations synthétiques sur une orbite IASI dans le cadre simplifié de l'approximation gaussienne linéaire. Les canaux utilisés dans chacune des bandes B1 et B2 sont cohérents pour les deux instruments notamment en ce qui concerne le rapport signal sur bruit ce qui implique l'utilisation de bien plus de canaux avec IASI-NG qu'avec IASI dans chacune des bandes B1 (393 canaux pour IASI-NG contre 126

canaux pour IASI) et B2 (254 canaux pour IASI-NG contre 103 canaux pour IASI). Pour les deux instruments, les Jacobiens de N_2O indiquent une sensibitité entre 800 et 200 hPa avec des maxima en moyenne ($\sim$500 hPa) et en haute troposphère ($\sim$300 hPa). La figure 5.13 récapitule les apports de IASI-NG par rapport à IASI en ce qui concerne la sensibilité verticale des profils estimés. L'un des apports principaux de IASI-NG dans la bande B1, c'est d'avoir des estimations de N_2O cohérentes et directement exploitables dans la haute troposphère et dans la moyenne troposphère (jusqu'à $\sim$3.8 km d'altitude) là où IASI_N_2O_B1 ne permettait une estimation cohérente de N_2O qu'en haute troposphère. En plus, du fait d'un effet de lissage plus faible avec IASI-NG comparé à IASI, une meilleure estimation du N_2O en haute troposphère serait atteinte dans les deux bandes en témoigne des corrélations linéaires entre le nature-run et les estimations synthétiques deux à trois fois plus élevées pour IASI-NG par rapport à IASI. On aurait même la possibilité avec IASI-NG_N_2O_B1 d'avoir des champs de N_2O à la résolution horizontale de base du capteur (soit 12 km de diamètre au nadir) là où les champs de N_2O de IASI ne semblent être directement exploitables que lorsqu'ils sont moyennés sur des grilles horizontales de résolution plus faible. Une telle résolution horizontale (12 km de diamètre) couplée à la capacité d'estimation du N_2O en moyenne troposphère (jusqu'à $\sim$3.8 km d'altitude) permettrait une amélioration significative des champs de N_2O de surface à travers des méthodes telles que l'assimilation de données et la modélisation inverse. En revanche, il est à noter que l'amélioration des estimations en termes de variabilité en haute troposphère devrait s'accompagner d'une augmentation du biais moyen (qui reste néanmoins inférieur à 1%) sur IASI-NG_N_2O_B1 et IASI-NG_N_2O_B2 et même de l'écart-type d'erreur d'estimation (augmentation d'environ 30%) sur IASI-NG_N_2O_B2. On constate par ailleurs, une augmentation (de près de 50 %) du facteur de contamination du H_2O sur IASI-NG_N_2O_B1 par rapport à IASI_N_2O_B1. Etant donné que le CF du H_2O était déjà un paramètre clé pour les estimations IASI_N_2O_B1 au niveau des tropiques, cela signifie que sur IASI-NG_N_2O_B1, il faudra d'une part accorder une attention particulière aux contraintes a priori relatives au H_2O afin d'en minimiser les effets sur les estimations de N_2O et d'autre part améliorer la caractérisation de l'influence du HDO dans la bande B1.

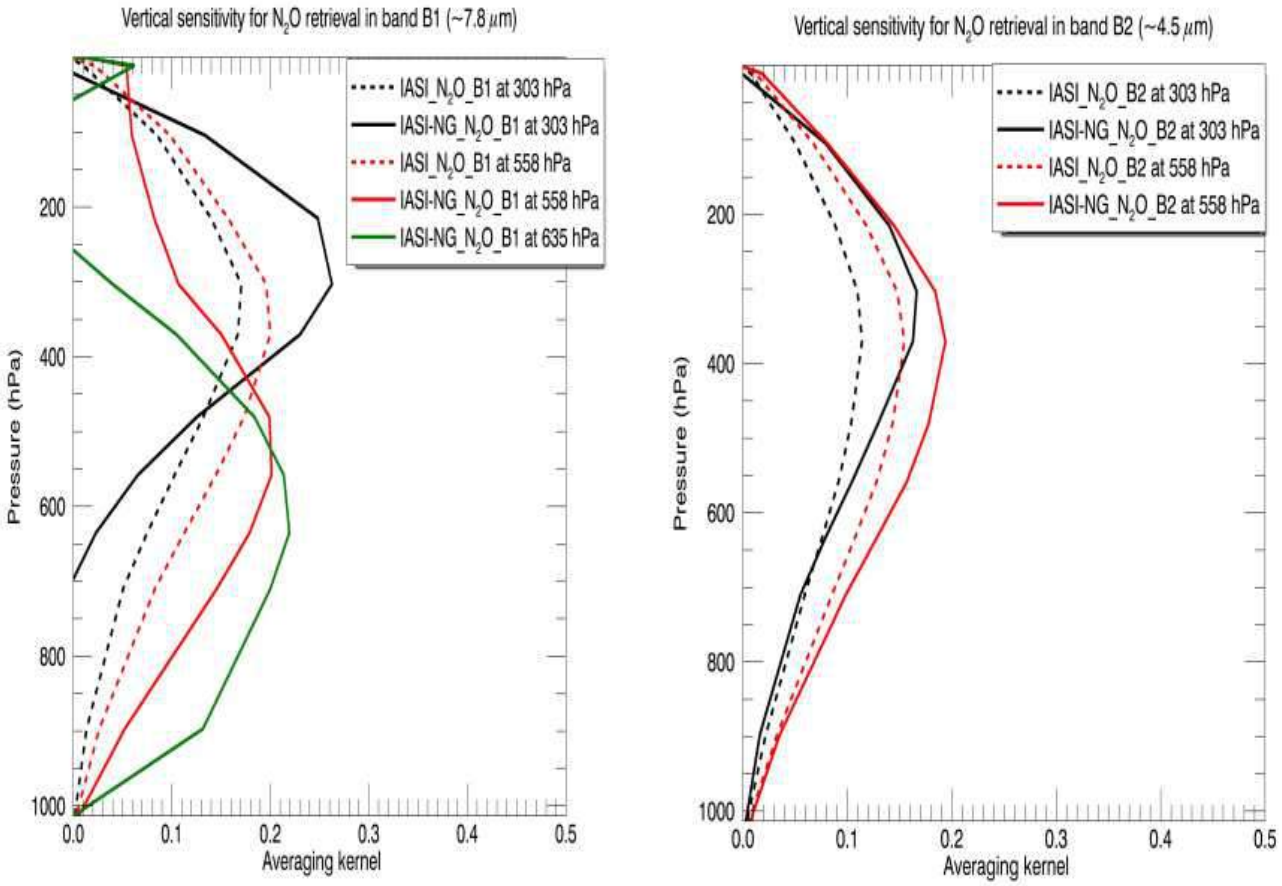


FIGURE 5.13 – Fonctions de balayage de N_2O correspondant aux niveaux moyens d'information pour IASI (tirets) et IASI-NG (traits pleins). La fonction de balayage à 635 hPa (verte) correspond au niveau moyen atteint avec IASI-NG dans la bande B1, dans les tropiques, de jour et sur terre.

Conclusion générale et perspectives

Avec le CO_2 et le CH_4, le N_2O troposphérique est l'un des trois principaux gaz à effet de serre à longue durée de vie. Cependant contrairement au CH_4 et au CO_2, la restitution de profils troposphériques de N_2O à partir de mesures de capteurs spatiaux reste encore insuffisamment explorée. On ne dispose donc que de très peu de mesures de profils de N_2O troposphérique à l'échelle globale. Ainsi, cette thèse contribue à l'exploration des possibilités qu'offrent des capteurs existants (TANSO-FTS et IASI) et futurs (IASI-NG) pour la restitution des profils de N_2O troposphériques à l'échelle globale. Ces observations pouvant par la suite servir d'une part à comprendre les phénomènes de transports de polluants sur de longues distances et d'autre part à fournir des sources d'informations supplémentaires dans le cadre des techniques de modélisation inverse des sources d'émission de N_2O en vue de l'amélioration des cadastres d'émission à l'échelle régionale.

Dans un premier temps, nous avons étudié le transport de N_2O des surfaces asiatiques à la haute troposphère au-dessus du bassin méditerranéen pendant la mousson asiatique d'été en utilisant sur la période 2010-2013 les mesures du capteur TANSO-FTS sensibles essentiellement au N_2O en haute troposphère ($\sim$314 hPa) et des champs de N_2O simulés par le modèle LMDz-Or-INCA. Il ressort de cette étude que les fortes précipitations liées à la mousson asiatique en Asie sont à l'origine de fortes émissions de N_2O principalement sur le sous-continent indien et sur l'Est de la Chine qui sont ensuite transportées jusqu'à la haute troposphère de l'Est du bassin méditerranéen par la circulation liée à l'anticyclone de la mousson asiatique. L'arrivée de ces masses d'air enrichies en N_2O crée un maximum en juillet de la différence de concentration en N_2O entre l'Est et l'Ouest du bassin méditerranéen. Ce maximum est observé par TANSO-FTS et simulé par LMDz-Or-INCA avec des amplitudes respectives de 1.4 ppbv et de

0.8 ppbv. Ces différences d'amplitudes entre le modèle et les observations sont dues d'une part à une sous-estimation par le modèle des émissions de N_2O sur l'Asie et d'autre part à la résolution horizontale relativement faible du modèle. Ainsi, les mesures à partir de capteurs spatiaux de N_2O au-dessus du bassin méditerranéen peuvent permettre indirectement d'évaluer les fortes émissions estivales de N_2O en Asie durant la mousson d'été.

Dans un deuxième temps, nous avons développé et validé un système de restitution des profils troposphériques de N_2O à partir des mesures du capteur spatial IASI. Ce système basé sur le schéma itératif de Levenberg-Marquardt et sur le modèle de transfert radiatif RTTOV permet d'effectuer des estimations de N_2O en utilisant des observations réelles de IASI dans les bandes B1 (7.6-8.0 μm) et B2 (4.4-4.6μm). Les estimations des profils de N_2O à partir des mesures IASI dans B1 et B2 (nommés respectivement N_2O_B1 et N_2O_B2) sont effectuées simultanément avec les paramètres de surface (température et émissivité) ainsi que les profils de H_2O et de température. De plus, N_2O_B1 est restitué simultanément avec les profils de CH_4 tandis que N_2O_B2 est restitué simultanément avec les profils de CO_2 et de CO. Nous avons ensuite effectué une validation de N_2O_B1 et N_2O_B2 en les comparant aux mesures in-situ des campagnes aéroportées HIPPO. Cette validation a permis de calculer des écarts-type d'erreur sur les profils N_2O_B1 et N_2O_B2 respectivement de 1.5% ($\sim$4.8 ppbv) et de 1% ($\sim$3.2 ppbv). Cependant, de même que les mesures du capteur TANSO-FTS, N_2O_B1 et N_2O_B2 sont essentiellement sensibles à la haute troposphère ($\sim$ 309 hPa). A cette altitude, N_2O_B1 et N_2O_B2 montrent une bonne cohérence avec les données in-situ notamment aux moyennes latitudes avec des taux de corrélation supérieurs à 0.5 et des biais moyens quasi inexistants (< 0.3 ppbv). Cependant dans les tropiques, N_2O_B1 est perturbé par les effets de la contamination du H_2O tandis que N_2O_B2 surestime les variations de N_2O. Nous avons également montré que ces estimations de N_2O permettaient de suivre à l'échelle journalière les processus de transport de N_2O.

Dans un troisième temps, nous avons effectué une intercomparaison théorique des capteurs IASI et IASI-NG pour la restitution des profils de N_2O troposphériques en utilisant les bandes B1 et B2 nommés respectivement IASI_N_2O_B1, IASI_N_2O_B2, IASI-NG_N_2O_B1 et IASI-NG_N_2O_B2. Cette intercomparaison a été effectuée dans le cadre simplifié de l'approximation gaussienne linéaire de la théorie de l'estimation optimale. Dans le cadre de cette approximation,

nous avons considéré deux sources d'erreurs sur les estimations : l'erreur de lissage et le bruit d'estimation. IASI-NG_N_2O_B1 présente une bien meilleure sensibilité à la haute troposphère que IASI_N_2O_B1. De plus, IASI-NG_N_2O_B1 permettrait d'exploiter la résolution horizontale de base du pixel d'observation ($\sim$12 km de diamètre au nadir) alors que IASI_N_2O_B1 doit être moyenné dans des grilles de résolution plus grossières (quelques centaines de km). De plus, IASI-NG_N_2O_B1 présente également une sensibilité à la moyenne troposphère permettant ainsi d'avoir des estimations de N_2O jusqu'à $\sim$ 3.8 km d'altitude dans les tropiques. Par ailleurs, IASI-NG_N_2O_B2 présente une meilleure sensibilité que IASI_N_2O_B2 en haute troposphère permettant ainsi d'avoir des estimations plus représentatives du N_2O à ces altitudes ce qui contribuera à améliorer le suivi des phénomènes de transport de N_2O.

Ces travaux de thèse ouvrent différentes perspectives à plus ou moins moyen terme. A court terme, il s'agira de produire et d'analyser les champs de N_2O estimés à partir des observations réelles IASI à l'échelle globale sur tout ou une partie des 10 ans d'observations IASI disponibles. Par ailleurs, ces travaux ouvrent des perspectives concernant, d'une part, les aspects techniques de l'inversion des radiances IASI et, d'autre part, l'exploitation scientifique des estimations de N_2O.

Plusieurs pistes d'amélioration du système d'inversion des radiances IASI pour les estimations des profils de N_2O peuvent également être explorées. On pourrait notamment introduire des covariances d'erreurs de mesure c'est-à-dire des éléments extra-diagonaux à la matrice de covariance des erreurs de mesure (S_y). En effet, dans le système actuel, la matrice S_y est diagonale. L'ajout d'éléments extra-diagonaux pourrait permettre de réduire les oscillations au niveau des profils restitués et donc d'améliorer la qualité des estimations.

De plus, une meilleure caractérisation des contraintes a priori de H_2O pourrait permettre d'améliorer le système de restitution notamment pour la bande B1. On pourrait par exemple envisager l'utilisation en guise d'a priori de résultats d'assimilations au lieu des profils de niveau 2 du produit opérationnel d'EUMETSAT.

Une prise en compte de l'impact du HDO dans la bande B1 pourrait également permettre d'améliorer la qualité des profils estimés N_2O_B1. Il s'agira soit d'introduire le HDO comme variable prédictrice pour le calcul des coefficients de regression de RTTOV, soit d'utiliser pour la si-

mulation des radiances IASI un modèle de transfert radiatif raie par raie couplé à la fonction instrumentale de IASI.

Ces estimations pourraient être exploitées dans le cadre de méthodes dites "top-down" d'estimations des émissions de N_2O. Dans cette optique, le projet MIN_2OS (MonitorINg Nitrous Oxide Sources) se propose de définir une configuration instrumentale optimale pour la mesure depuis l'espace de composés azotés dont le protoxyde d'azote en basse troposphère (800-850 hPa). MIN_2OS sera proposé à l'Agence Spatiale Européenne (en anglais, European Space Agency-ESA-) dans le cadre de l'appel à projets EE-10 (Earth Explorer Opportunity Mission) en 2018.

ACRONYMES

AGAGE Advanced Global Atmospheric Gases Experiment. 3

AIRS Atmospheric InfraRed Sounder. 42

AOTF Acousto-Optic Tunable Filters. 110

CARIBIC Civil Aircraft for the Regular Investigation of the atmosphere Based on an Instrument Container. 3

CFC ChloroFluoroCarbures. 2

ChArMEx Chemistry and Aerosol Mediterranean Experiment. 4

CNES Centre National d'Etudes Spatiales. 110

CONTRAIL Comprehensive Observation Network for TRace gases by AirlLner. 3

DOF Degrees Of Freedom. 70

ETR l'Equation de Transfert Radiatif. 31

EUMETSAT EUropean organization for exploitation of METeorological SATellites. 36

GLAM Gradient in Longitude of Atmospheric constituents above the Mediterranean basin. 4

GOSAT Greenhouses gases Observing SATellite. 5

HCFC HydroChloroFluoroCarbures. 2

HIPPO High performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations. 3

HIRS HIgh-Resolution infrared Sounder. 42

IASI Infrared Atmospheric Sounding Interferometer. 5

IASI-NG Infrared Atmospheric Sounding Interferometer-New Generation. 5

INCA INteraction between Chemistry and Aerosol. 5

JAXA Japan Aerospace eXploration Agency. 41

LMD Laboratoire de Météorologie Dynamique. 5

MetOp Meteorological Operational. 36

NDACC Network for the Detection of Atmospheric Composition Change. 3

NOAA National Oceanic and Atmospheric Administration. 3

Or Organizing Carbon and Hydrology in Dynamic Ecosystems. 5

ORCHIDEE Organizing Carbon and Hydrology in Dynamic Ecosystems. 21

OSSEs Observing System Simulation Experiments. 73

TANSO-FTS Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation Fourier Transform Spectrometer. 4, 5

Bibliographie

Thierry AMIOT, Michel Avignon, Franck Brachet, and Laurence Buffet. *Techniques et Technologies des Véhicules Spatiaux-Volume 2-Module VII*, volume 2. CNES, 2014.

Javier Andrey-Andrés, Vincent Guidard, and Nadia Fourrié. Iasi-ng simulations for osses. Report, Météo-France, 2016.

SS Assonov, CAM Brenninkmeijer, T Schuck, and T Umezawa. N2o as a tracer of mixing stratospheric and tropospheric air based on caribic data with applications for co2. *Atmospheric environment*, 79 :769–779, 2013. doi : 10.1016/j.atmosenv.2013.07.035.

Philippe Baron. *Développement et validation du code MOLIERE : Chaine de traitement des mesures micro-ondes du Satellite Odin*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 1999.

John W Bergman, Federico Fierli, Eric J Jensen, Shawn Honomichl, and Laura L Pan. Boundary layer sources for the asian anticyclone : Regional contributions to a vertical conduit. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(6) :2560–2575, 2013. doi : 10.1002/jgrd.50142.

Denis Blumstein, Roger Fjortoft, and Carole Larigauderie. *Dossier de définition des algorithmes IASI*. CNES, 2008.

AF Bouwman and JA Taylor. Testing high-resolution nitrous oxide emission estimates against observations using an atmospheric transport model. *Global Biogeochemical Cycles*, 10(2) : 307–318, 1996. doi : 10.1029/96GB00191.

AF Bouwman, LJM Boumans, and NH Batjes. Modeling global annual n2o and no emissions from fertilized fields. *Global Biogeochemical Cycles*, 16(4), 2002.

Lex Bouwman, John S Daniel, Eric A Davidson, Cecile de Klein, Elisabeth Holland, Xiaotang Ju, David Kanter, Oene Oenema, AR Ravishankara, Ute M Skiba, et al. *Drawing down N2O to protect climate and the ozone layer. A UNEP Synthesis Report*. United Nations Environment Programme (UNEP), 2013.

vd Bouwman, AF, KW Van der Hoek, and JGJ Olivier. Uncertainties in the global source distribution of nitrous oxide. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D2) : 2785–2800, 1995.

Philippe Ciais, Christopher Sabine, Govindasamy Bala, Laurent Bopp, Victor Brovkin, Josep Canadell, Abha Chhabra, Ruth DeFries, James Galloway, Martin Heimann, et al. Carbon and other biogeochemical cycles. In *Climate change 2013 : the physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, pages 465–570. Cambridge University Press, 2014.

Cathy Clerbaux, Anne Boynard, Lieven Clarisse, Maya George, Juliette Hadji-Lazaro, Hervé Herbin, Daniel Hurtmans, Matthieu Pommier, Ariane Razavi, Solène Turquety, et al. Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared iasi/metop sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(16) :6041–6054, 2009. doi : 10.5194/acp-9-6041-2009.

Cyril Crevoisier, Cathy Clerbaux, Vincent Guidard, Thierry Phulpin, Raymond Armante, Blandine Barret, Claude Camy-Peyret, Jean-Pierre Chaboureau, Pierre-François Coheur, Laurent Crépeau, et al. Towards iasi-new generation (iasi-ng) : impact of improved spectral resolution and radiometric noise on the retrieval of thermodynamic, chemistry and climate variables. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7 :4367–4385, 2014.

Robert Delmas, Gérard Mégie, and Vincent-Henri Peuch. *Physique et chimie de l'atmosphère*. Belin, 2005.

Kl Model Developers. K1 coupled model (miroc) description. *Tokyo, Japan : Center for Climate System Research, University of Tokyo*, 2004.

David Fowler, Mhairi Coyle, Ute Skiba, Mark A Sutton, J Neil Cape, Stefan Reis, Lucy J

Sheppard, Alan Jenkins, Bruna Grizzetti, James N Galloway, et al. The global nitrogen cycle in the twenty-first century. *Phil. Trans. R. Soc. B*, 368(1621) :20130164, 2013. doi : 10.1098/rstb.2013.0164.

James N Galloway, Alan R Townsend, Jan Willem Erisman, Mateete Bekunda, Zucong Cai, John R Freney, Luiz A Martinelli, Sybil P Seitzinger, and Mark A Sutton. Transformation of the nitrogen cycle : recent trends, questions, and potential solutions. *Science*, 320(5878) : 889–892, 2008. doi : 10.1126/science.1136674.

A. L. Ganesan, A. J. Manning, A. Grant, D. Young, D. E. Oram, W. T. Sturges, J. B. Moncrieff, and S. O'Doherty. Quantifying methane and nitrous oxide emissions from the uk and ireland using a national-scale monitoring network. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(11) :6393–6406, 2015. doi : 10.5194/acp-15-6393-2015. URL `http://www.atmos-chem-phys.net/15/6393/2015/`.

Louis Giglio, James T Randerson, and Guido R Werf. Analysis of daily, monthly, and annual burned area using the fourth-generation global fire emissions database (gfed4). *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences*, 118(1) :317–328, 2013. doi : 10.1002/jgrg.20042.

Giuseppe Grieco, Guido Masiello, Marco Matricardi, and Carmine Serio. Partially scanned interferogram methodology applied to iasi for the retrieval of co, co2, ch4 and n2o. *Optics express*, 21(21) :24753–24769, 2013. doi : 10.1364/OE.21.024753.

E Hache, J-L Attié, C Tourneur, P Ricaud, L Coret, WA Lahoz, L El Amraoui, B Josse, P Hamer, J Warner, et al. The added value of a visible channel to a geostationary thermal infrared instrument to monitor ozone for air quality. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(7) : 2185–2201, 2014.

David F Herridge, Mark B Peoples, and Robert M Boddey. Global inputs of biological nitrogen fixation in agricultural systems. *Plant and Soil*, 311(1-2) :1–18, 2008. doi : 10.1007/s11104-008-9668-3.

James Hocking, Peter Rayer, David Rundle, Roger Saunders, Marco Matricardi, Alan Geer, Pascal Brunel, and Jerome Vidot. *RTTOV v11 Users Guide*. NWP SAF, 2015.

IPCC. *Climate Change 2013 : The physical science basis : Working group I contribution to the fifth assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, 2014.

Kentaro Ishijima, Prabir K. Patra, Masayuki Takigawa, Toshinobu Machida, Hidekazu Matsueda, Yosuke Sawa, L. Paul Steele, Paul B. Krummel, Ray L. Langenfelds, Shuji Aoki, and Takakiyo Nakazawa. Stratospheric influence on the seasonal cycle of nitrous oxide in the troposphere as deduced from aircraft observations and model simulations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D20) :n/a–n/a, 2010. ISSN 2156-2202. doi : 10.1029/2009JD013322. URL `http://dx.doi.org/10.1029/2009JD013322`. D20308.

Yannick Kangah, Philippe Ricaud, Jean-Luc Attié, Naoko Saitoh, Didier A. Hauglustaine, Rong Wang, Laaziz El Amraoui, Régina Zbinden, and Claire Delon. Summertime upper tropospheric nitrous oxide over the mediterranean as a footprint of asian emissions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 122(8) :4746–4759, 2017. ISSN 2169-8996. doi : 10.1002/2016JD026119. URL `http://dx.doi.org/10.1002/2016JD026119`. 2016JD026119.

Akihiko Kuze, Hiroshi Suto, Masakatsu Nakajima, and Takashi Hamazaki. Thermal and near infrared sensor for carbon observation fourier-transform spectrometer on the greenhouse gases observing satellite for greenhouse gases monitoring. *Applied optics*, 48(35) :6716–6733, 2009. doi : 10.1364/AO.48.006716.

Yingyu Law, Liu Ye, Yuting Pan, and Zhiguo Yuan. Nitrous oxide emissions from wastewater treatment processes. *Phil. Trans. R. Soc. B*, 367(1593) :1265–1277, 2012. doi : 10.1098/rstb.2011.0317.

M Matricardi. Technical note : An assessment of the accuracy of the rttov fast radiative transfer model using iasi data. *Atmos. Chem. Phys*, 9(18) :6899–6913, 2009. doi : 10.5194/acp-9-6899-2009.

K. Minschwaner, R. J. Salawitch, and M. B. McElroy. Absorption of solar radiation by o2 : Implications for o3 and lifetimes of n2o, cfcl3, and cf2cl2. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 98(D6) :10543–10561, 1993. ISSN 2156-2202. doi : 10.1029/93JD00223. URL `http://dx.doi.org/10.1029/93JD00223`.

Cynthia D Nevison, Ray F Weiss, and David J Erickson. Global oceanic emissions of nitrous oxide. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 100(C8) :15809–15820, 1995.

R Oswald, T Behrendt, M Ermel, D Wu, H Su, Y Cheng, C Breuninger, A Moravek, E Mougin, C Delon, et al. Hono emissions from soil bacteria as a major source of atmospheric reactive nitrogen. *science*, 341(6151) :1233–1235, 2013. doi : 10.1126/science.1242266.

W. J. Parton, A. R. Mosier, D. S. Ojima, D. W. Valentine, D. S. Schimel, K. Weier, and A. E. Kulmala. Generalized model for n2 and n2o production from nitrification and denitrification. *Global Biogeochemical Cycles*, 10(3) :401–412, 1996. ISSN 1944-9224. doi : 10.1029/96GB01455. URL `http://dx.doi.org/10.1029/96GB01455`.

N Pougatchev, T August, X Calbet, T Hultberg, O Oduleye, P Schlüssel, B Stiller, K St Germain, and G Bingham. Iasi temperature and water vapor retrievals–error assessment and validation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(17) :6453–6458, 2009. doi : 10.5194/acp-9-6453-2009.

Golam Rasul and GB Thapa. Shifting cultivation in the mountains of south and southeast asia : regional patterns and factors influencing the change. *Land Degradation & Development*, 14 (5) :495–508, 2003. doi : 10.1002/ldr.570.

Nani Raut, Bishal K Sitaula, Lars R Bakken, Roshan M Bajracharya, and Peter Dörsch. Higher n2o emission by intensified crop production in south asia. *Global Ecology and Conservation*, 4 :176–184, 2015. doi : 10.1016/j.gecco.2015.06.004.

AR Ravishankara, John S Daniel, and Robert W Portmann. Nitrous oxide (n2o) : the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century. *science*, 326(5949) :123–125, 2009. doi : 10.1126/science.1176985.

P Ricaud, J-L Attié, H Teyssedre, L El Amraoui, V-H Peuch, M Matricardi, and P Schluessel. Equatorial total column of nitrous oxide as measured by iasi on metop-a : implications for transport processes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(12) :3947–3956, 2009. doi : 10.5194/acp-9-3947-2009.

P Ricaud, B Sič, L El Amraoui, J-L Attié, R Zbinden, P Huszar, S Szopa, J Parmentier, N Jaidan, M Michou, et al. Impact of the asian monsoon anticyclone on the variability of mid-to-upper tropospheric methane above the mediterranean basin. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(20) :11427–11446, 2014. doi : 10.5194/acp-14-11427-2014.

Philippe Ricaud, Régina Zbinden, Valéry Catoire, Vanessa Brocchi, François Dulac, Eric Hamonou, Jean-Christophe Canonici, Laaziz El Amraoui, Sébastien Massart, Bruno Piguet, et al. The glam airborne campaign across the mediterranean basin. *Bulletin of the American Meteorological Society*, (2017), 2017.

Nils Risgaard-Petersen, Alexandra M Langezaal, Signe Ingvardsen, Markus C Schmid, Mike SM Jetten, Huub JM Op den Camp, Jan WM Derksen, Elisa Pina-Ochoa, Susanne P Eriksson, Lars Peter Nielsen, et al. Evidence for complete denitrification in a benthic foraminifer. *Nature*, 443(7107) :93–96, 2006.

Clive D Rodgers. *Inverse methods for atmospheric sounding : theory and practice*, volume 2. World scientific Singapore, 2000.

David Rundle. Rttov v11.2 performance tests. Report, EUMETSAT, 2014.

N Saitoh, M Touno, S Hayashida, R Imasu, K Shiomi, T Yokota, Y Yoshida, T Machida, H Matsueda, and Y Sawa. Comparisons between xch4 from gosat shortwave and thermal infrared spectra and aircraft ch4 measurements over guam. *SOLA*, 8 :145–149, 2012. doi : 10.2151/sola.2012-036.

Naoko Saitoh, Shuhei Kimoto, Ryo Sugimura, Ryoichi Imasu, Shuji Kawakami, Kei Shiomi, Akihiko Kuze, Toshinobu Machida, Yousuke Sawa, and Hidekazu Matsueda. Algorithm update of the gosat/tanso-fts thermal infrared co2 product (version 1) and validation of the utls

co2 data using contrail measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(5) :2119–2134, 2016. doi : 10.5194/amt-9-2119-2016.

R Saunders, Marco Matricardi, and P Brunel. *A fast radiative transfer model for assimilation of satellite radiance observations-RTTOV-5*. European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, 1999.

Yousuke Sawa, Toshinobu Machida, Hidekazu Matsueda, Yosuke Niwa, Kazuhiro Tsuboi, Shohei Murayama, Shinji Morimoto, and Shuji Aoki. Seasonal changes of CO2, CH4, N2O, and SF6 in the upper troposphere/lower stratosphere over the Eurasian continent observed by commercial airliner. *Geophysical Research Letters*, 42(6) :2001–2008, 2015. doi : 10.1002/2014GL062734.

Iurii Shcherbak, Neville Millar, and G Philip Robertson. Global metaanalysis of the nonlinear response of soil nitrous oxide (n2o) emissions to fertilizer nitrogen. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 111(25) :9199–9204, 2014. doi : 10.1073/pnas.1322434111.

Vaclav Smil. *Enriching the earth : Fritz Haber, Carl Bosch, and the transformation of world food production*. MIT press, 2004.

S Solomon, D Qin, M Manning, Z Chen, M Marquis, K Averyt, M Tignor, and H Miller. Ipcc fourth assessment report (ar4). *Climate change*, 2007a.

Susan Solomon, Dahe Qin, Martin Manning, Z Chen, M Marquis, KB Averyt, M Tignor, and HL Miller. Contribution of working group i to the fourth assessment report of the intergovernmental panel on climate change, 2007, 2007b.

Robert H Stewart. Methods of satellite oceanography. 1985.

P Suntharalingam, JL Sarmiento, and JR Toggweiler. Global significance of nitrous-oxide production and transport from oceanic low-oxygen zones : A modeling study. *Global Biogeochemical Cycles*, 14(4) :1353–1370, 2000. doi : 10.1029/1999GB900100.

Alfi Syakila and Carolien Kroeze. The global nitrous oxide budget revisited. *Greenhouse Gas Measurement and Management*, 1(1) :17–26, 2011. doi : 10.3763/ghgmm.2010.0007.

Alfi Syakila, Carolien Kroeze, and Caroline P Slomp. Neglecting sinks for n2o at the earth's surface : does it matter ? *Journal of Integrative Environmental Sciences*, 7(S1) :79–87, 2010. doi : 10.1080/1943815X.2010.497492.

Rona Louise Thompson, PK Patra, K Ishijima, E Saikawa, M Corazza, Ute Karstens, C Wilson, P Bergamaschi, E Dlugokencky, C Sweeney, et al. Transcom n2o model intercomparison–part 1 : Assessing the influence of transport and surface fluxes on tropospheric n2o variability. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(8) :4349–4368, 2014. doi : 10.5194/acp-14-4349-2014.

S Turquety, J Hadji-Lazaro, C Clerbaux, DA Hauglustaine, SA Clough, V Cassé, P Schlüssel, and G Mégie. Operational trace gas retrieval algorithm for the infrared atmospheric sounding interferometer. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D21), 2004. doi : 10.1029/2004JD004821.

Guido R van der Werf, James T Randerson, Louis Giglio, GJ Collatz, M Mu, Prasad S Kasibhatla, Douglas C Morton, RS DeFries, Y van Jin, and Thijs T van Leeuwen. Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(23) :11707–11735, 2010. doi : 10.5194/acp-10-11707-2010.

Detlef P van Vuuren, Lex F Bouwman, Steven J Smith, and Frank Dentener. Global projections for anthropogenic reactive nitrogen emissions to the atmosphere : an assessment of scenarios in the scientific literature. *Current Opinion in Environmental Sustainability*, 3(5) :359–369, 2011. doi : 10.1016/j.cosust.2011.08.014.

Bärbel Vogel, G Günther, Rolf Müller, J-U Grooß, and M Riese. Impact of different asian source regions on the composition of the asian monsoon anticyclone and of the extratropical lowermost stratosphere. *Atmospheric chemistry and physics*, 15(23) :13699–13716, 2015. doi : 10.5194/acp-15-13699-2015.

David L Williamson and Philip J Rasch. Two-dimensional semi-lagrangian transport with shape-preserving interpolation. *Monthly Weather Review*, 117(1) :102–129, 1989.

SC Wofsy et al. Hippo merged 10-second meteorology and atmospheric chemistry and aerosol data (r_20121129). *Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory and Oak Ridge and Tennessee.[Avaialble at http ://dx. doi. org/10.3334/CDIAC/hippo_010,(Release 20121, 129)]*, 2012.

Steven C Wofsy. Hiaper pole-to-pole observations (hippo) : fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 369 (1943) :2073–2086, 2011. doi : 10.1098/rsta.2010.0313.

Xiaozhen Xiong, Eric S Maddy, Chris Barnet, Antonia Gambacorta, Prabir K Patra, Fengying Sun, and Mitchell Goldberg. Retrieval of nitrous oxide from atmospheric infrared sounder : Characterization and validation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119(14) : 9107–9122, 2014. doi : 10.1002/2013JD021406.

Appendices

Annexe A

Les différents types de spectromètres

Type de spectromètres	Pouvoir de résolution spectral caractéristique	Domaine spectral caractéristique	Applications types
Disperseur à prisme	50 à 1000	350 nm à 5000 nm	Mission hyperspectrale sur surfaces continentales et marines
Disperseur à réseau	500 à 50000	100 nm à 10000 nm	Mission hyperspectrale, chimie atmosphérique, mesure des vents, astrophysiques
AOTF	100 à 2500	200 nm à 5000 nm	La compacité mise à profit des missions interplanétaires
Fabry Pérot à balayage	1.10^5 à 1.10^6	Très étroit (même ordre de grandeur que la résolution spectrale), quelque part entre 300 à 500 nm	Observation d'une ou d'un petit nombre de raies simultanément, si possible en émission. Mesure de phénomènes de fuorescence (airglow atmosphérique, plancton,...). En astrophysique, observation de raies nébulaires.
Interféromètre dynamique (Michelson)	1500 à 15000	300 nm à 25000	Acquisition de spectres d'atmosphères (inversion de profiles de température,chimie,...)

TABLE A.1 – Les principaux types de spectromètres. Source CNES (AMIOT et al., 2014)

Annexe B

Simulations théoriques

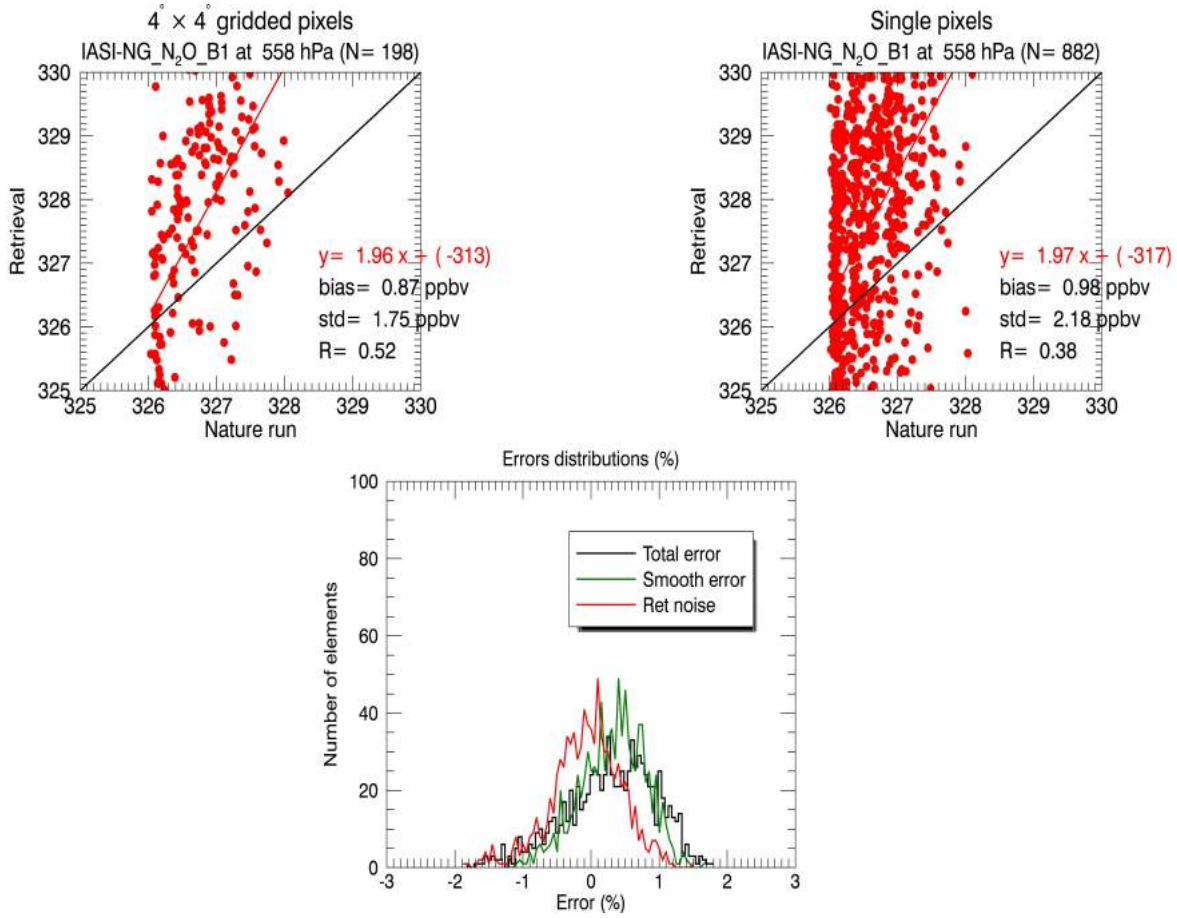


FIGURE B.1 – En haut : nature-run vs IASI-NG_N_2O_B1 à 558 hPa avec les pixels individuels (à droite) et moyennés sur une grille horizontale de 4° × 4° de résolution (à gauche). Sur les deux graphiques, la droite rouge représente la droite de régression linéaire dont l'équation est écrite en rouge et la droite noire représente la première bissectrice. En bas : les distributions de l'erreur totale (noire), de l'erreur de lissage (vert) et du bruit d'estimation (rouge).

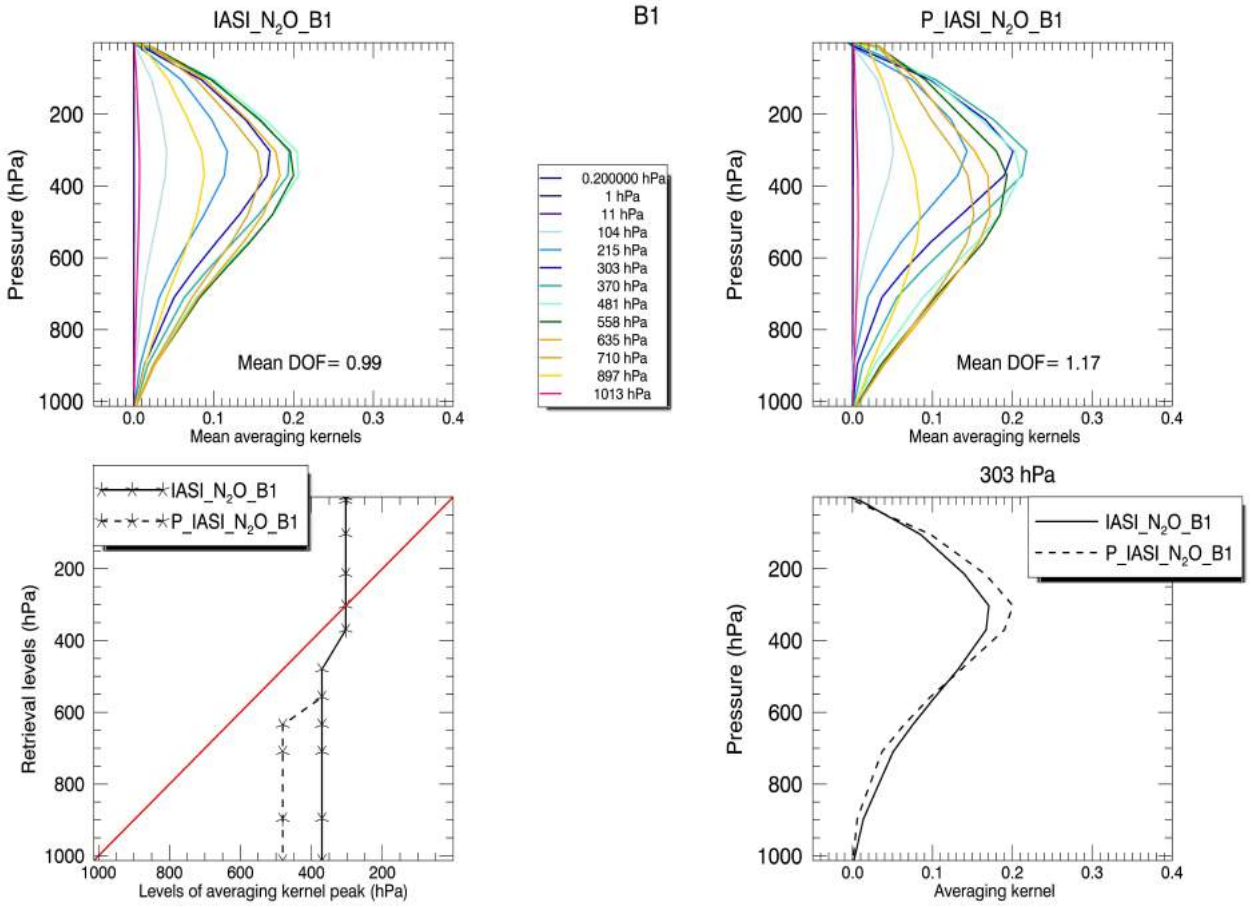


FIGURE B.2 – Fonctions de balayage (en haut) de N_2O moyennées sur l'orbite de référence pour IASI_N_2O_B1 (à gauche) et P_IASI_N_2O_B1 (à droite). Altitudes des maxima des fonctions de balayage moyens (en bas à gauche) et fonctions de balayage moyens du niveau 303 hPa (en bas à droite) pour IASI_N_2O_B1 (traits pleins) et P_IASI_N_2O_B1 (tirets).

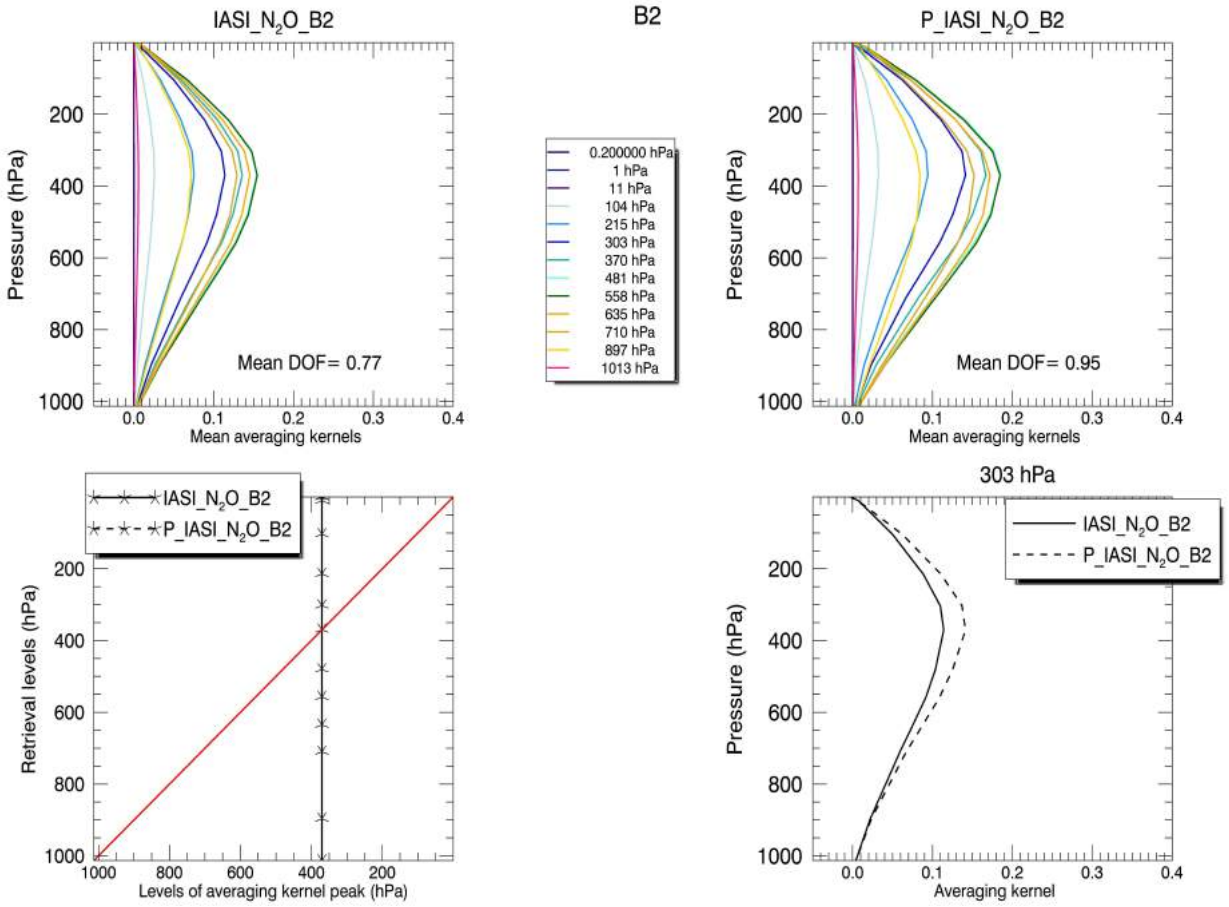


FIGURE B.3 – Fonctions de balayage (en haut) de N_2O moyennées sur l'orbite de référence pour IASI_N_2O_B2 (à gauche) et P_IASI_N_2O_B2 (à droite). Altitudes des maxima des fonctions de balayage moyens (en bas à gauche) et fonctions de balayage moyens du niveau 303 hPa (en bas à droite) pour IASI_N_2O_B2 (traits pleins) et P_IASI_N_2O_B2 (tirets).

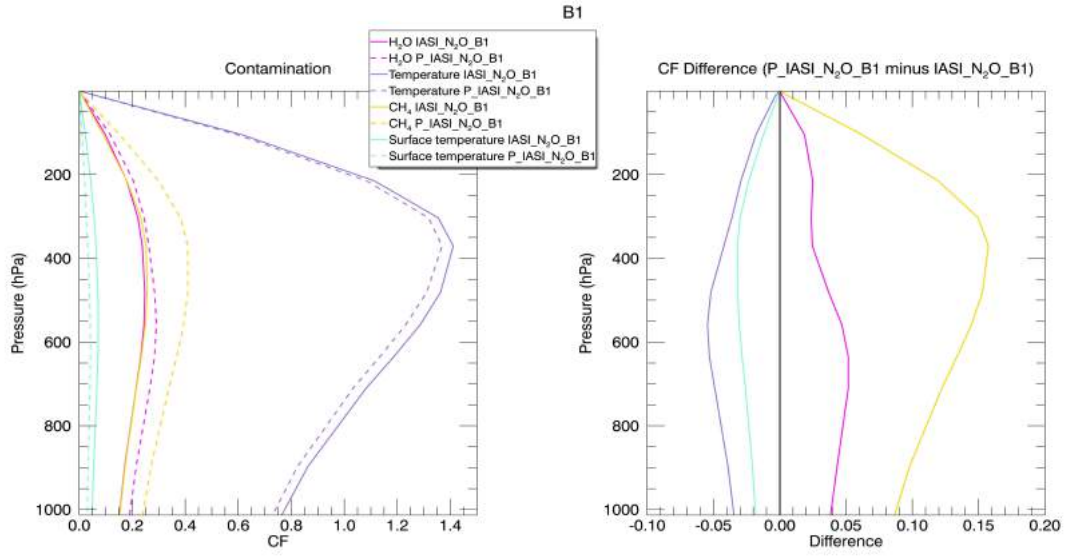


FIGURE B.4 – A gauche : facteurs de contamination (CF) moyens sur les profils estimés IASI_N_2O_B1 (traits pleins) et P_IASI_N_2O_B1 (tirets) des principaux paramètres restitués simultanément : CH_4 (jaune), H_2O (rose), température (violet) et température de surface (vert). A droite : différences des CF entre P_IASI_N_2O_B1 et IASI_N_2O_B1.

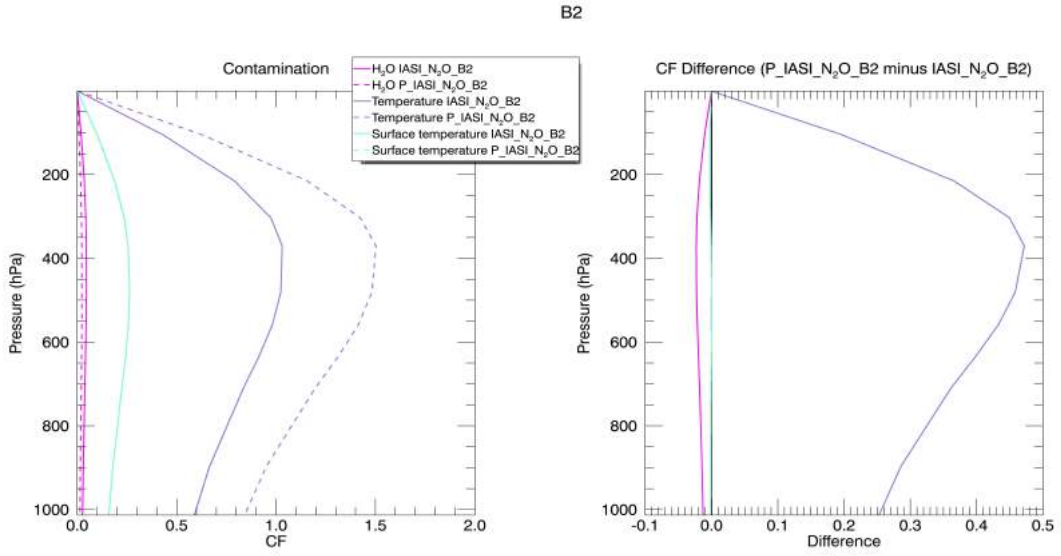


FIGURE B.5 – A gauche : facteurs de contamination (CF) moyens sur les profils estimés IASI_N_2O_B2 (traits pleins) et P_IASI_N_2O_B2 (tirets) des principaux paramètres restitués simultanément : CH_4 (jaune), H_2O (rose), température (violet) et température de surface (vert). A droite : différences des CF entre P_IASI_N_2O_B2 et IASI_N_2O_B2.

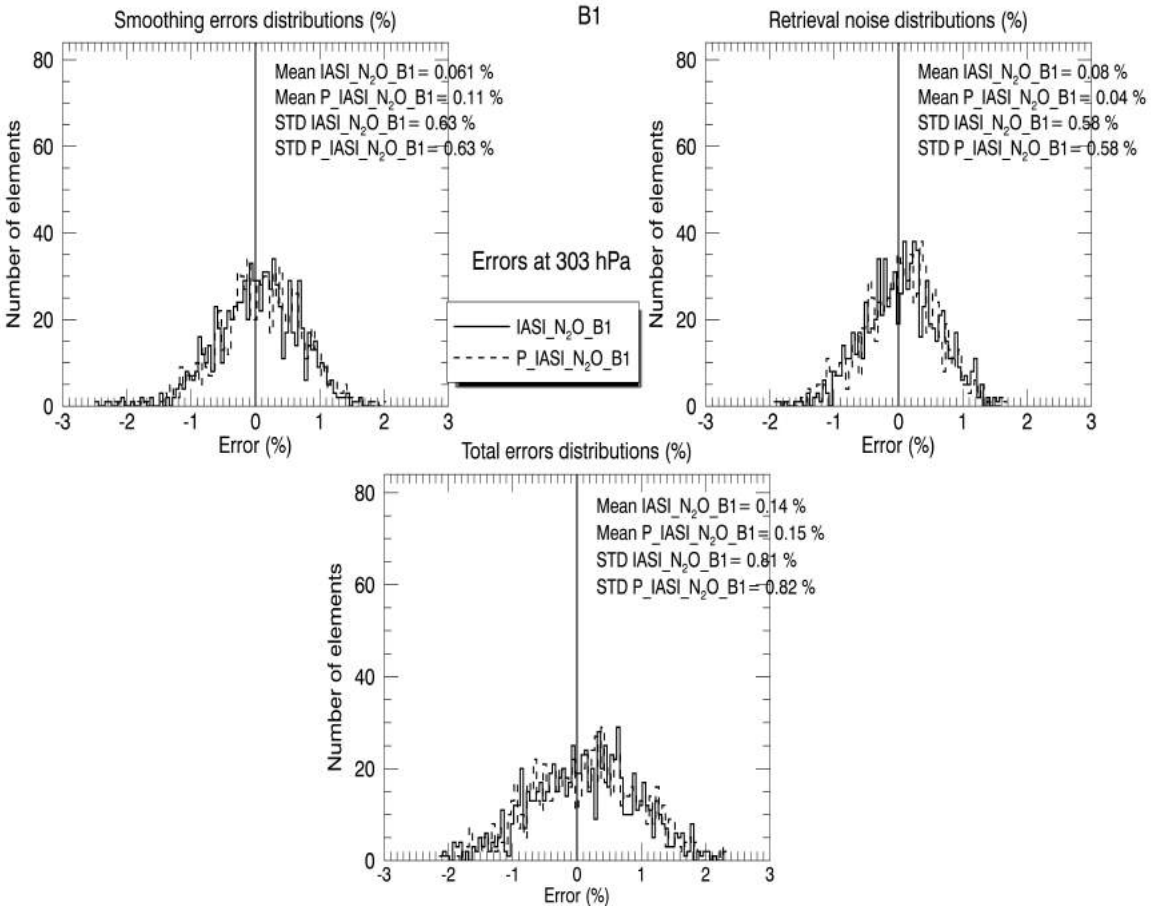


FIGURE B.6 – Distribution de l'erreur de lissage (en haut, à gauche), du bruit d'estimation (en haut, à droite) et de l'erreur totale (en bas) correspondant à IASI_N_2O_B1 (traits pleins) et P_IASI_N_2O_B1 (tirets) à 303 hPa.

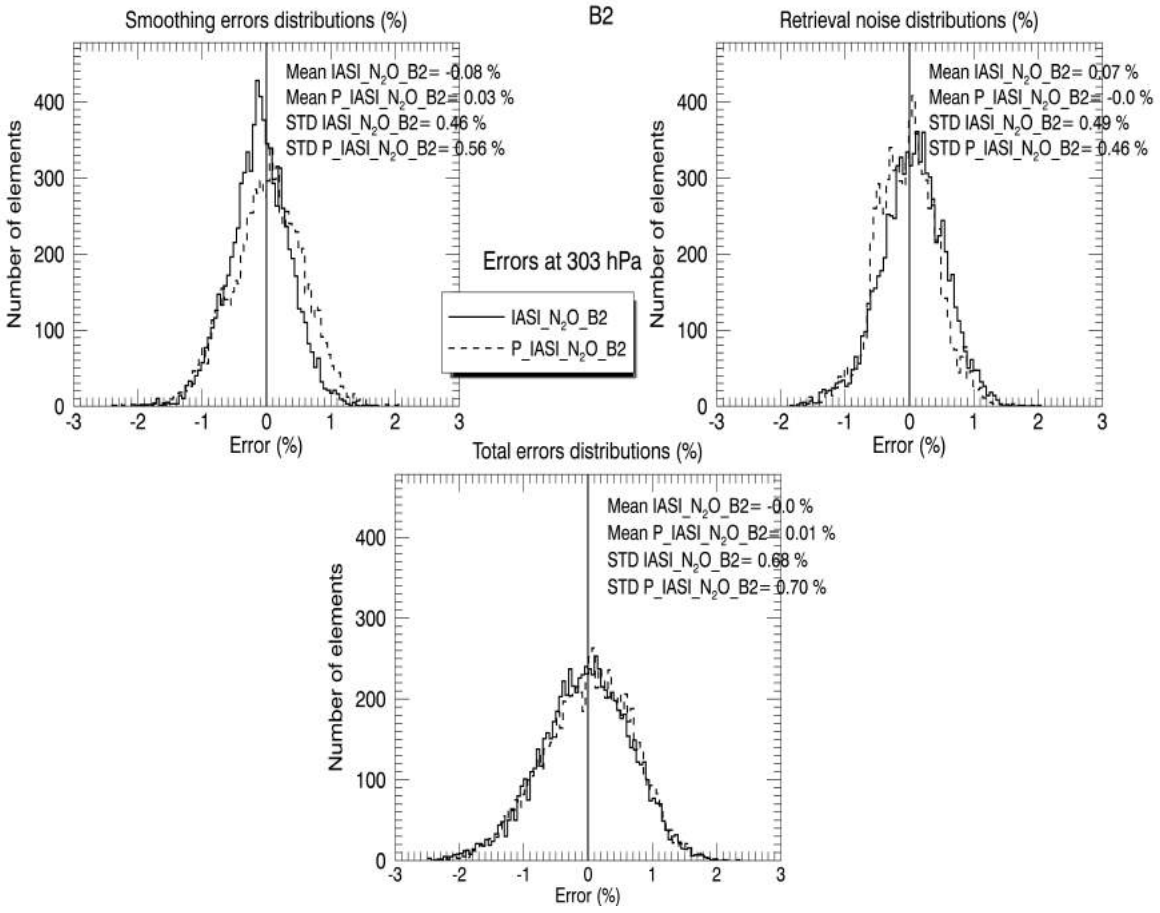


FIGURE B.7 – Distribution de l'erreur de lissage (en haut, à gauche), du bruit d'estimation (en haut, à droite) et de l'erreur totale (en bas) correspondant à IASI_N_2O_B2 (traits pleins) et P_IASI_N_2O_B2 (tirets) à 303 hPa.

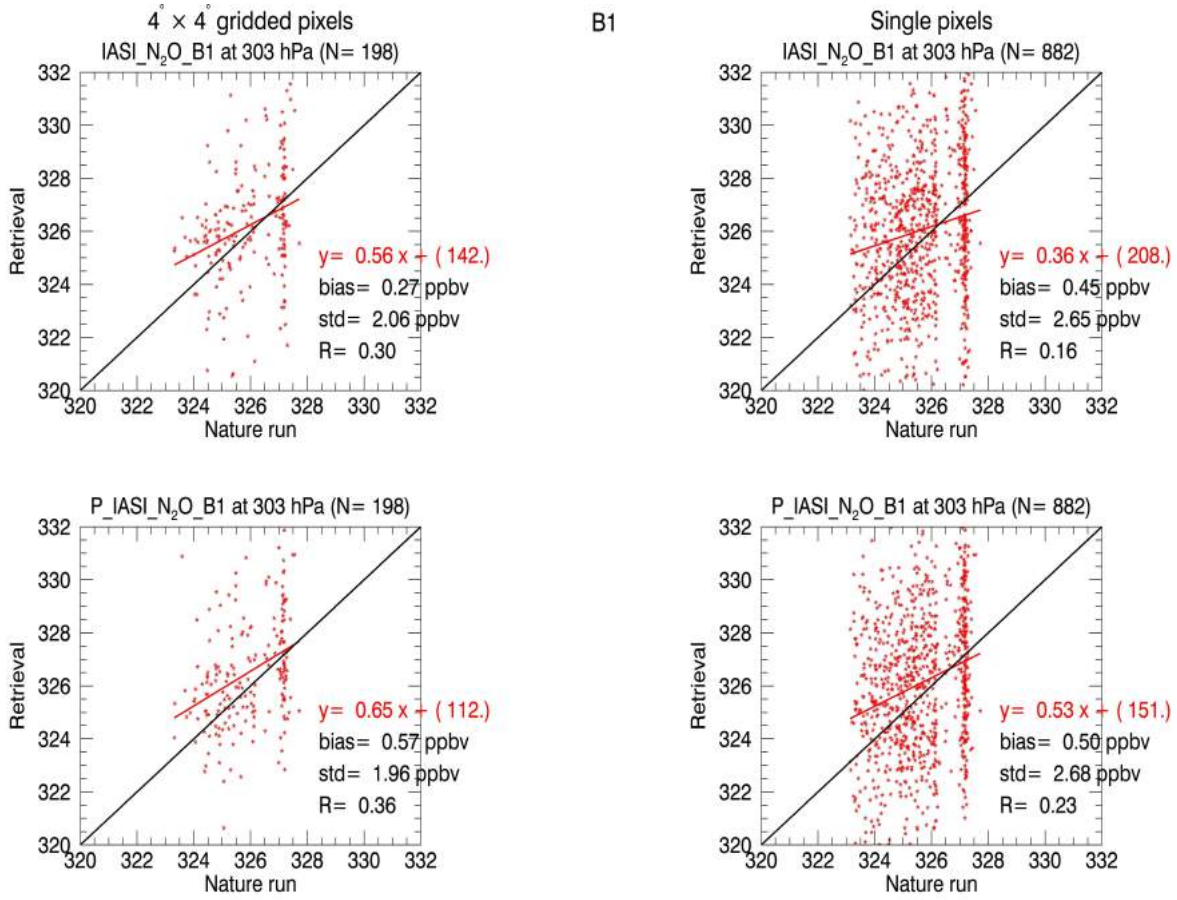


FIGURE B.8 – En haut (resp en bas) : nature-run vs IASI_N_2O_B1 (resp P_IASI_N_2O_B1) avec les pixels individuels (à droite) et moyennés sur une grille horizontale de $4° \times 4°$ de résolution (à gauche). Sur chaque graphique, la droite rouge représente la droite de régression linéaire dont l'équation est écrite en rouge et la droite noire représente la première bissectrice.

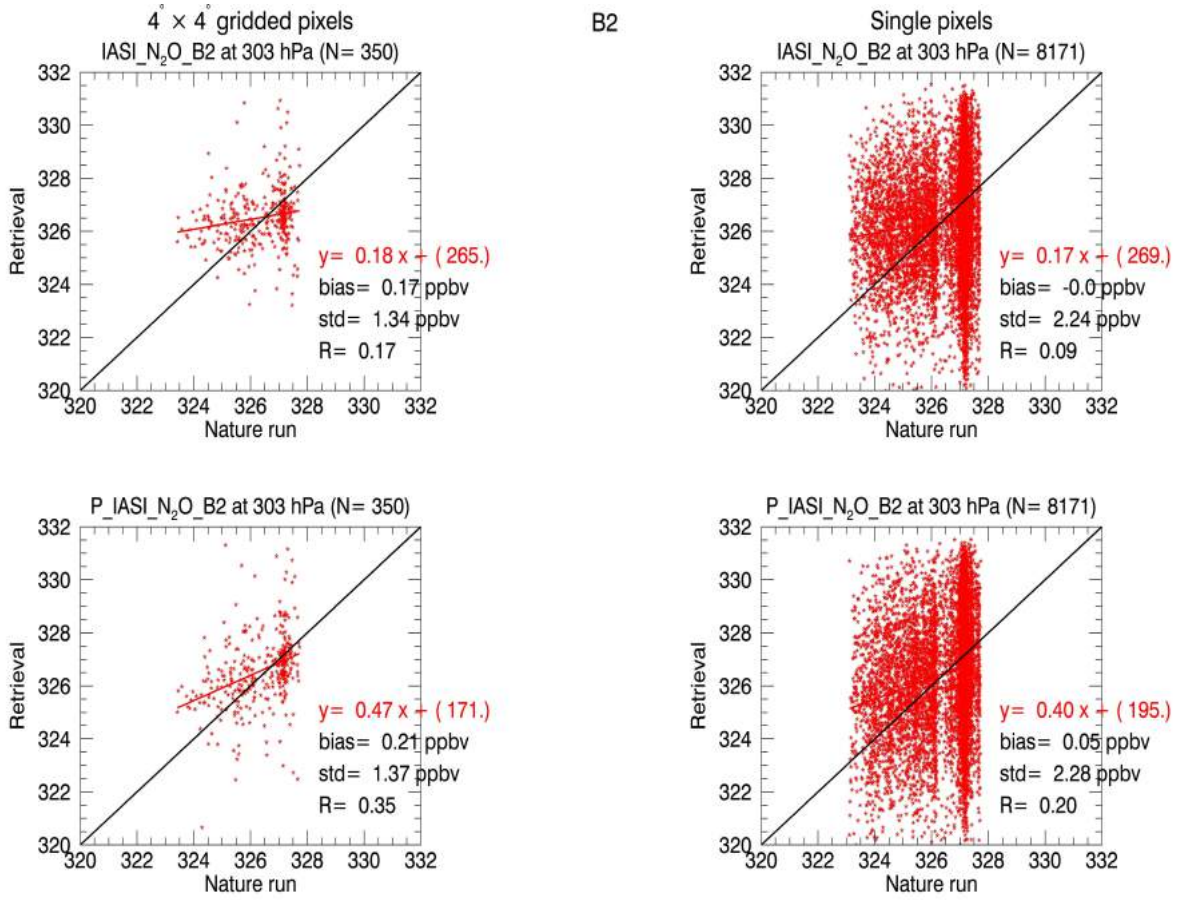


FIGURE B.9 – En haut (resp en bas) : nature-run vs IASI_N_2O_B2 (resp P_IASI_N_2O_B2) avec les pixels individuels (à droite) et moyennés sur une grille horizontale de 4° × 4° de résolution (à gauche). Sur chaque graphique, la droite rouge représente la droite de régression linéaire dont l'équation est écrite en rouge et la droite noire représente la première bissectrice.

Measurement of nitrous oxide (N_2O) from space

Author : Kouadio Guy Yannick KANGAH

Abstract : This thesis focuses on the measurement of nitrous oxide (N_2O) from space sensors. Firstly, we studied the transport and emission processes of N_2O from Asia to the Mediterranean Basin (MB). For this study, we used N_2O profiles over the period 2010-2013 retrieved from TANSO-FTS (Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation Fourier Transform Spectrometer) observations onboard the platform GOSAT (Greenhouses gases Observing SATellite) . We also used outputs of the chemistry-transport model LMDz-Or-INCA over the same period. Secondly, we built an algorithm to retrieve N_2O profiles using observations from IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) onboard the MetOp platforms. This algorithm was validated by comparing the retrieved profiles with in-situ measurements from HIPPO (High performance Instrumented airborne platform for environmental research Pole-to-Pole Observations) airborne campaigns. Finally, we performed a theoretical intercomparison between IASI-NG (IASI-New Generation) and IASI concerning the tropospheric N_2O measurements.

Keywords : Nitrous oxide, radiative transfer, retrieval, infrared radiances, Mediterranean Basin, climate changes.

Mesure du protoxyde d'azote (N_2O) depuis l'espace

Doctorat de l'Université Toulouse III - Paul Sabatier

Soutenue le vendredi 1^{er} décembre 2017 à Météo-France, Toulouse, France

Auteur :	**Kouadio Guy Yannick KANGAH**
Directeur de thèse :	**Philippe RICAUD**
Co-directeur de thèse :	**Jean-Luc ATTIÉ**

Résumé : Cette thèse porte sur la mesure du protoxyde d'azote (N_2O) à partir de capteurs spatiaux. Dans un premier temps, nous avons étudié les processus d'émissions et de transport de N_2O depuis l'Asie jusqu'au bassin méditerranéen. Pour cette étude, nous avons utilisé des sorties du modèle de chimie-transport LMDz-Or-INCA ansi que des profils de N_2O estimés à partir d'observations du capteur spatial TANSO-FTS (Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation Fourier Transform Spectrometer) de la plateforme GOSAT (Greenhouses gases Observing SATellite). Ensuite, nous avons mis en place un système de restitution des profils troposphériques de N_2O à partir des mesures du capteur spatial infrarouge IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) des plateformes MetOp. Ce système a ensuite été validé en utilisant les mesures in-situ des campagnes aéroportées HIPPO (High performance Instrumented airborne platform for environmental research Pole-to-Pole Observations). Enfin, nous avons étudié l'apport théorique du capteur IASI-NG (IASI-New Generation) par rapport à IASI pour la mesure du N_2O troposphérique.

Mots-clés : Protoxyde d'azote, transfert radiatif, inversion, luminances infrarouges, bassin méditerranéen, climat.

Discpipline :	**Océan, atmosphère, Climat**
Unité de Recherche :	**Centre National de Recherches Météorologiques** **Groupe de Météorologie de Grande Echelle et Climat** **Météo-France, 42 avenue Gaspard Coriolis** **31057 Toulouse cedex 1, France**