



HAL
open science

Analyse du protoxyde d'azote (N₂O) à partir de l'instrument spatial IASI

Rémi Chalinel

► **To cite this version:**

Rémi Chalinel. Analyse du protoxyde d'azote (N₂O) à partir de l'instrument spatial IASI. Sciences de la Terre. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2022. Français. NNT : 2022TOU30291 . tel-04192356

HAL Id: tel-04192356

<https://theses.hal.science/tel-04192356v1>

Submitted on 31 Aug 2023

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

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

Université Fédérale



Toulouse Midi-Pyrénées

THÈSE

**En vue de l'obtention du
DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

Délivré par l'Université Toulouse 3 - Paul Sabatier

Présentée et soutenue par

Rémi CHALINEL

Le 21 avril 2022

**Analyse du protoxyde d'azote (N₂O) à partir
de l'instrument spatial IASI**

Ecole doctorale : **SDU2E - Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de
l'Espace**

Spécialité : **Océan, Atmosphère, Climat**

Unité de recherche :

LAERO - Laboratoire d'Aérodynamique

Thèse dirigée par

Jean-Luc ATTIE et Philippe RICAUD

Jury

M. Juan CUESTA, Rapporteur

M. Sébastien PAYAN, Rapporteur

Mme Isabelle PISON, Examinatrice

Mme Laure BROOKER, Examinatrice

M. Jérôme VIDOT, Examineur

M. Jean-Luc ATTIE, Directeur de thèse

M. Philippe RICAUD, Co-directeur de thèse

M. Benjamin LOUBET, Président

Résumé

Cette thèse porte sur la télédétection spatiale du protoxyde d'azote mesuré dans la gamme spectrale infrarouge thermique de l'instrument IASI (Infrared Atmospheric Sounder Interferometer), principalement, mais aussi du potentiel futur instrument MIN₂OS (MonItoring N₂O Sources). Durant cette thèse, un outil d'inversion spécifique au N₂O, appelé TN₂OR (Toulouse N₂O Retrieval) utilisant la méthode d'estimation optimale de Levenberg-Marquardt et couplé au modèle de transfert radiatif RTTOV (Radiative Transfer for TIROS Optical Vertical sounder) a été développé.

Le premier objectif de cette thèse est de paramétrer TN₂OR afin de valider les restitutions de N₂O de IASI, tout en ayant une bonne sensibilité entre 100 et 500 hPa, avec un maximum à 300 hPa. La restitution du N₂O est couplée avec celles de plusieurs autres paramètres. Il s'agit donc de déterminer, pour ces multi-inversion, les erreurs fixées sur les différents paramètres que l'on souhaite restituer. Les restitutions de chacune des procédures effectuées sont comparées à des mesures in-situ de N₂O telles que les mesures des campagnes aéroportées HIPPO 1-5 (2009-2011) et NOAA 2011, ainsi que les mesures par télédétection de N₂O des spectromètres FTIR (Fourier Transform InfraRed) des stations du réseau NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change).

Une fois la paramétrisation et la validation effectuées, donnant des résultats très cohérents à 300 et 500 hPa entre les restitutions de N₂O de IASI et les mesures annexes, le second objectif est de procéder à des restitutions de N₂O à l'échelle globale sur l'ensemble de l'année 2011. Les résultats à 300 hPa montrent des maxima permanents au-dessus des zones fortement émettrices en N₂O (Afrique équatoriale, Amazonie, Asie du sud) et au-dessus des océans, au niveau de l'équateur, où le N₂O est apporté par les mouvements de convection atmosphérique depuis les régions sources.

Enfin, le dernier objectif est d'effectuer des études de sensibilités au N₂O avec MIN₂OS dans les trois bandes d'absorptions du N₂O déjà présentes avec IASI, à savoir 1240-1350 cm⁻¹ (B1_{N₂O}), 2150-2260 cm⁻¹ (B2_{N₂O}) et 2400-2600 cm⁻¹ (B3_{N₂O}). Les résultats montrent les conditions favorables de mesure une très bonne sensibilité à tous les niveaux, en particulier proche de la surface, autour de 900 hPa. Il est possible d'obtenir de tels résultats avec une très bonne configuration instrumentale et spectrométrique, ainsi qu'en utilisant le signal provenant des bandes spectrales 1250-1330 cm⁻¹ et 2150-2240 cm⁻¹. En prenant en compte l'ensemble des conditions de mesures, les résultats nous orientent davantage vers

le choix de la bande spectrale 1250-1330 cm^{-1} .

Abstract

This thesis focuses on the spatial remote sensing of nitrous oxide (N_2O) measured in the thermal infrared spectral range of the Infrared Atmospheric Sounder Interferometer (IASI) instrument, mainly, but also of the Monitoring N_2O Sources (MIN $_2$ OS) potential future instrument. During this thesis, a N_2O specific inversion tool, called Toulouse N_2O Retrieval (TN $_2$ OR) using the Levenberg-Marquardt optimal estimation method and coupled to the RTTOV Radiative Transfer for TIROS Optical Vertical sounder (RTTOV) model has been developed.

The first objective of this thesis is to parameterise TN $_2$ OR in order to validate IASI N_2O retrievals, while having a good sensitivity between 100 and 500 hPa, with a maximum at 300 hPa. The N_2O restitution is coupled with those of several other parameters. It is therefore necessary to determine, for these multi-retrieval procedures, the errors fixed on the various parameters that we wish to restore. The results of each of the procedures carried out are compared with in-situ N_2O measurements such as the HIPPO 1-5 (2009-2011) and NOAA 2011 airborne campaigns, as well as N_2O remote sensing measurements of Fourier Transform InfraRed (FTIR) spectrometers from the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC) stations.

Once the parameterisation and validation have been carried out, giving very consistent results at 300 and 500 hPa between the IASI N_2O retrievals and the ancillary measurements, the second objective is to carry out N_2O retrievals at global scale over the whole year 2011. The results at 300 hPa show permanent maxima over the high N_2O emitting areas (equatorial Africa, Amazonia, South Asia) and over the oceans, at the level of the equator, where N_2O is brought by atmospheric convection movements from the source regions.

Finally, the last objective is to perform N_2O sensitivity studies with MIN $_2$ OS in the three N_2O absorption bands already present with IASI, namely 1240-1350 cm^{-1} (B1 $_{\text{N}_2\text{O}}$), 2150-2260 cm^{-1} (B2 $_{\text{N}_2\text{O}}$) and 2400-2600 cm^{-1} (B3 $_{\text{N}_2\text{O}}$). The results show favourable conditions of measurement and a very good sensitivity at all levels, especially near the surface, around 900 hPa. It is possible to obtain such results with a very good instrumental and spectrometric configuration, as well as by using the signal from the 1250-1330 cm^{-1} and 2150-2240 cm^{-1} spectral bands. Taking into account all the measurement conditions, the results point towards the choice of the spectral band 1250-1330 cm^{-1} .

Mots clés : Protoxyde d'azote, observations spatiales, restitution de données, transfert radiatif, méthode d'estimation optimale, IASI, MIN₂OS

Keywords : Nitrous oxide, space-borne observations, retrieval, radiative transfer, optimal estimation method, IASI, MIN₂OS

Remerciements

Je voudrais remercier le laboratoire d'Aérodologie (LAERO) qui m'a accueilli en son sein, incluant le personnel administratif et informatique, mais surtout mes directeurs de thèse, Jean-Luc Attié et Philippe Ricaud, qui m'ont transmis leur passion de la recherche, leur rigueur scientifique ainsi que toutes les connaissances et compétences qui m'ont permis d'aboutir aux objectifs attendus.

Je tiens également à remercier Benjamin Loubet, Sebastien Payan, Juan Cuesta, Isabelle Pison, Laure Brooker et Jérôme Vidot qui ont accepté de faire partie de mon jury de thèse, mais également Didier Hauglustaine, Prabir Patra et Rona Thompson, qui m'ont fourni des données scientifiques essentielles, ainsi qu'à Yannick Kangah, mon prédécesseur, qui a participé la rédaction de mon article scientifique.

Mes pensées vont à toutes celles et ceux qui ont pu me soutenir et m'accompagner durant cette thèse, aux chercheurs que j'ai pu côtoyer, notamment Pierre Durand, Jean-François Georgis et Serge Soula, à tous les doctorants et post-doc que j'ai pu croiser et avec qui j'ai pu partager des choses malgré le covid, Valentin, Lambert, Ronan, Meredith, Samira, Mathilde, Maria, Renaud, Camille et Azusa. Mes pensées les plus personnelles vont à ma famille, à mes amis et à celles qui n'ont pas pu m'accompagner jusqu'au bout de cette quête.

Financements et encadrements

Cette thèse a été financée par la région Occitanie, Airbus Defense and Space, la fondation Sciences et technologies pour l'Aéronautique et l'Espace (STAE), le Centre National d'Etudes Spatiales (CNES) et le Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS). Elle a été encadrée par l'université Toulouse III Paul Sabatier (UPS), l'école doctorale des Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace (SDU2E) ainsi que par le CNRS.



AIRBUS



Table des matières

Table des sigles et acronymes	19
Introduction	21
1 Le N₂O dans la biosphère	29
1.1 Les sources de N ₂ O	30
1.2 Puits de N ₂ O	42
1.3 Bilan du N ₂ O atmosphérique	45
2 Transfert radiatif et observations spatiales	47
2.1 Interaction rayonnement-matière dans l’atmosphère	48
2.2 Bilan radiatif de la Terre	57
2.3 Modèle d’effet de serre à une couche d’atmosphère	60
2.4 Télédétection spatiale	62
3 L’outil d’inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation	67
3.1 L’instrument IASI	68
3.2 RTTOV	74

3.3	Inversion de données	79
3.4	TN ₂ OR	85
3.5	TN ₂ OR v1.7 vs TN ₂ OR v2.0	94
4	Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A	103
4.1	Résumé de Chalinel et al. (2022)	103
4.2	Chalinel et al. (2022)	105
4.3	Comparaison du N ₂ O de IASI obtenu avec TN ₂ OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM	137
5	Le projet instrumental MIN₂OS (MonItoring Nitrous Oxide Sources)	151
5.1	L'instrument MIN ₂ OS	151
5.2	Résumé de Ricaud et al. (2021)	154
5.3	Ricaud et al. (2021)	155
	Conclusion générale et perspectives	177
	Bibliographie	181

Table des figures

1.1	Illustration du cycle de l'azote. Interactions liées aux activités humaines (en rouge) et interactions liées aux processus naturels (en vert). Source : britannica.com . . .	31
1.2	Schéma des différents produits de la nitrification issus de la réaction chimique (1.10) tiré de Robertson and Groffman (2007).	34
1.3	Illustration des émissions de N_2O dans l'atmosphère (en $TgN.an^{-1}$) en fonction des sources, naturelles (vert) et anthropiques (orange et rouge), ainsi que leur valeur durant la période 2007-2016, tirée de Tian et al. (2020).	36
1.4	Émissions annuelles de N_2O dans l'atmosphère à l'échelle globale ($TgN.an^{-1}$) moyennées sur la période 2007-2016. Les graphiques excentrés représentent sur cette même durée la quantité annuelle moyenne de N_2O émise en fonction de différentes sources pour 10 régions d'intérêt, en plus de la moyenne globale. Figure tirée de Tian et al. (2020).	37
1.5	Évolution des émissions de N_2O ($TgN.an^{-1}$) anthropiques entre 1980 et 2016 en fonction des sources pour 10 régions d'intérêt (identique à la figure 1.4). Figure tirée de Tian et al. (2020).	40
1.6	(À gauche) Émissions anthropiques globales de N_2O ($TgN.an^{-1}$) et (à droite) concentration globale de N_2O atmosphérique (ppb) en fonction des scénarios présentés dans Stocker (2014) entre 2000 et 2050. Courbes représentant le scénario RCP 8.5 (rouge), RCP 6.0 (marron), RCP 4.5 (jaune) et RCP 2.6 (bleu). Les observations des réseaux AGAGE, NOAA et CSIRO sont montrées durant la période 2000-2018. Tirés de Tian et al. (2020).	41

1.7	Évolution des émissions des substances contribuant à la destruction de O ₃ dans la stratosphère entre 1970 et 2100 (en équivalent 10 ⁶ kg CFC-11.an ⁻¹). La surface rouge du N ₂ O correspond au potentiel des émissions estimés par les scénarios SRES (Special Report Emissions Scenarios) établis par le GIEC en 2000 (Nakicenovic et al., 2000). Tiré de Ravishankara et al. (2009).	44
1.8	a) Évolution des moyennes mensuelles (ppb) et b) évolution des variations annuelles (ppb.an ⁻¹) des concentrations de N ₂ O mesurées par AGAGE (rouge) ainsi que par NOAA/ESRL/GMD (bleu) entre 1978 et 2011. Tirée de Ciais et al. (2014).	45
2.1	Haut : coefficient d’extinction de l’atmosphère (absorption + diffusion) en fonction de la longueur d’onde (μm). Bas : Spectre d’absorption des principaux constituants de l’atmosphère (de haut en bas : H ₂ O, CO ₂ , O ₂ et O ₃ , CH ₄ , N ₂ O) et spectre de la diffusion Rayleigh en fonction de la longueur d’onde (μm) (Rodhe, 2019).	50
2.2	Schéma des transitions rovibrationnelles en fonction des branches P ($\Delta J = -1$, en violet), Q ($\Delta J = 0$, en bleu) et R ($\Delta J = 1$, en rouge). Source : chem.libretexts.org	51
2.3	Types de diffusion existants en fonction du rayon des particules et de la longueur d’onde du rayonnement diffus. Source : e-Education Institute	55
2.4	Irradiance spectrale ($\text{W.m}^{-2}.\text{nm}^{-1}$) du Soleil reçue au sommet de l’atmosphère (jaune) et à la surface (rouge) ainsi que l’irradiance spectrale reçue au sommet de l’atmosphère issue d’un corps noir d’une température de 5778 K, équivalente à celle du Soleil (courbe noir). Source : ScienceDirect.com	58
2.5	Schéma du bilan radiatif de la Terre. Tiré de Wild et al. (2013).	59
2.6	Schéma du modèle d’effet de serre avec l’atmosphère représentée par une couche.	60
3.1	Champ de vision de l’instrument IASI. Source : eumetsat.int	68
3.2	Illustration d’un spectre de température de brillance (K) en fonction du nombre d’onde (cm^{-1}) mesuré par IASI sur Metop-C en décembre 2018. Source : cnes.fr	70
3.3	Schéma de la chaîne de traitement des données IASI. Tiré de Blumstein et al. (2004).	71

Table des figures

3.4	Bruit de IASI fourni par le CNES et utilisé dans le cadre de cette thèse exprimé en radiance ($\text{mW}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{sr}^{-1}\cdot(\text{cm}^{-1})^{-1}$) (noir) et en Ne Δ T (Noise Equivalent Delta Temperature) pour une température de référence de 280 K (K) (rouge) en fonction du nombre d'onde (cm^{-1}). Les bandes IASI B1, B2 et B3 sont séparées par les traits représentés en pointillés bleus.	73
3.5	Transmittances des différents composants dans RTTOV et différence des transmittances obtenues par LBLRTM v12.2 entre RTTOV v11 et RTTOV v12. Tiré de Saunders et al. (2017).	78
3.6	Jacobiens du N_2O dans l'atmosphère exprimés en température de brillance par concentration de N_2O en $\text{K}\cdot\text{ppmv}^{-1}$ dans les bandes spectrales du N_2O B1 $_{\text{N}_2\text{O}}$ ($1240\text{-}1350\text{ cm}^{-1}$), B2 $_{\text{N}_2\text{O}}$ ($2150\text{-}2260\text{ cm}^{-1}$) et B3 $_{\text{N}_2\text{O}}$ ($2400\text{-}2600\text{ cm}^{-1}$), de gauche à droite, pour un pixel IASI mesuré en France en phase descendante le 2 juillet 2011.	79
3.7	Schéma de la méthode itérative de Levenberg-Marquardt utilisée durant cette thèse.	81
3.8	Illustration de deux fonctions de balayage (averaging kernels) du N_2O en fonction de la pression (hPa) pour deux mesures de IASI obtenues avec TN $_2$ OR v1.7 : (gauche) pixel IASI mesuré en Atlantique nord le 12 juillet 2011 et (droite) pixel IASI mesuré en France le 02 juillet 2011 , tous deux en phase descendante (9h30 au nadir).	83
3.9	Illustration des profils d'erreurs associées aux inversions du N_2O avec TN $_2$ OR v1.7 (en %) en fonction de la pression (hPa) pour les mêmes pixels que ceux présentés sur la figure 3.8. En rouge, l'erreur liée à la mesure. En vert, l'erreur de lissage. En noir, l'erreur totale.	86
3.10	Localisation des 1100 profils HIPPO exploitables utilisés durant cette thèse. Les étoiles correspondent aux profils coïncidant avec les observations IASI et les points aux profils non-coïncidant avec celles-ci. En violet, les profils des campagnes HIPPO-1 en janvier 2009. En rouge, les profils HIPPO-2 mesurés entre octobre et novembre 2009. En vert, les profils HIPPO-3 mesurés entre mars et avril 2010. En bleu, les profils HIPPO-4 mesurés entre juin et juillet 2011. En orange, les profils HIPPO-5 mesurés durant la période août-septembre 2011.	88

3.11 (Gauche) Rapport de mélange de N₂O (ppbv) des 854 profils mesurés durant les campagnes HIPPO 1-5 et extrapolés par LMDZ en fonction de la pression (hPa) en bleu, dont les écarts-types de $\pm\sigma$ ainsi que la moyenne de ces profils sont représentés respectivement en rouge et noir. (Droite) a priori du N₂O (ppbv) en fonction de la pression (hPa) correspondant à la moyenne des rapports de mélange des profils HIPPO et dont l'erreur associée est représentée pour chaque niveau par des flèches horizontales. 89

3.12 Variabilité de la température de brillance (K) de IASI calculée par RTTOV v11.2 (TN₂OR v1.7) et RTTOV v12.3 (TN₂OR v2.0) en fonction du nombre d'onde (cm⁻¹) pour la variation de l'ensemble des paramètres susceptibles d'être restitués par TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0, sur un pixel mesuré en France en phase descendante le 02 juillet 2011 (Ricaud et al., 2021). 90

3.13 Représentation de la matrice de covariance d'erreur sur l'a priori du N₂O exprimée en %² sur chaque niveau d'inversion pour TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0. 92

3.14 Résidus entre les radiances observées et calculées par RTTOV v12.3 issus des inversions de données initiales (noir) et résultantes de la calibration des radiances calculées (rouge) du jeu de données "HIPPO/NOAA" dans la bande spectrale B1_{N₂O}. 94

3.15 (Haut) Valeur absolue de l'écart relatif entre la moyenne des radiances spectrales observées par IASI et la moyenne des radiances calculées par RTTOV v11.2 pour TN₂OR v1.7 (noir) et RTTOV v12.3 pour TN₂OR v2.0 (rouge) pour le jeu données "HIPPO/NOAA" dans la gamme spectrale 1240-1350 cm⁻¹. (Bas) Résidus entre la moyenne des radiances observées par IASI et la moyenne des mêmes radiances calculées dans la même gamme spectrale avec TN₂OR v1.7 (noir) et TN₂OR v2.0 (rouge). 98

3.16 Comparaison entre les restitutions des rapports de mélange de N₂O de IASI (ppbv) du jeu de données "HIPPO/NOAA" et les mesures des rapports de mélange de N₂O convoluées des campagnes HIPPO 1-5 et NOAA (ppbv) pour 3 niveaux de pressions similaires. À gauche, résultats obtenus avec TN₂OR v1.7. À droite, résultats obtenus avec TN₂OR v2.0. En haut, résultats obtenus aux niveaux de pression 308.96 hPa (TN₂OR v1.7) et 300 hPa (TN₂OR v2.0). Au milieu, résultats obtenus aux niveaux de pression 357.6 hPa (TN₂OR v1.7) et 400 hPa (TN₂OR v2.0). En bas, résultats obtenus aux niveaux de pression 473.44 hPa (TN₂OR v1.7) et 500 hPa (TN₂OR v2.0). 99

Table des figures

- 3.17 (Haut) Distribution des degrés de liberté (DOF = "Degree Of Freedom") des restitutions du jeu de données décrits dans la partie 3.4.2 obtenus tous les 0.5 DOF. (Bas) Moyenne des matrices des fonctions de balayage (AVK = "Averaging Kernels") sur ce même jeu de données en fonction de la pression (hPa). À gauche, résultats obtenus avec TN₂OR v1.7. À droite, résultats obtenus avec TN₂OR v2.0. 102
- 4.1 Haut : Évolution temporelle, sur l'année 2011, des moyennes globales de N₂O pour IASI (bleu), LMDz (rouge) et MIROC4-ACTM (orange) à 300 hPa (gauche) et 500 hPa (droite). Bas : Variabilité intra-annuelle du N₂O sur l'année 2011 de IASI, LMDz et MIROC4-ACTM, à laquelle on retire la pente ainsi que la moyenne de N₂O pour chacun des jeux de données. 138
- 4.2 Distribution horizontales des corrélations des variations intra-annuelles de l'année 2011 des rapports de mélange du N₂O à 300 hPa sur la grille MIROC4-ACTM (2.8125°×1.40625°) entre IASI et LMDz (gauche) et entre IASI et MIROC4-ACTM (droite). 139
- 4.3 Évolution temporelle des concentrations moyennes latitudinales de N₂O, à 300 hPa, en fonction de la latitude sur l'ensemble de l'année 2011 pour IASI (gauche), LMDz (milieu) et MIROC4-ACTM (droite). 141
- 4.4 Cartographies à l'échelle globale sur la grille de MIROC4-ACTM (2.8125°×1.40625°) entre décembre 2010 et novembre 2011 des moyennes saisonnières des rapports de mélange du N₂O (ppbv) à 300 hPa pour les restitutions de IASI (à gauche), de LMDz (au milieu) et de MIROC4-ACTM (à droite). De haut en bas, résultats obtenus respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON. 142
- 4.5 Cartographies à l'échelle globale sur la grille de MIROC4-ACTM (2.8125°×1.40625°) entre décembre 2010 et novembre 2011 des anomalies saisonnières des rapports de mélange du N₂O (ppbv) à 300 hPa pour les restitutions de IASI (à gauche), de LMDz (au milieu) et de MIROC4-ACTM (à droite). De haut en bas, résultats obtenus pour respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON. 143
- 4.6 Distribution à l'échelle globale des différences saisonnières de N₂O entre IASI et LMDz (gauche), et entre IASI et MIROC4-ACTM (droite). De haut en bas, résultats obtenus respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON, de décembre 2010 et novembre 2011. 145

4.7	Moyennes zonales latitudinales saisonnières de N ₂ O pour IASI (gauche), LMDz (milieu) et MIROC4-ACTM (droite). De haut en bas, résultats obtenus respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON, de décembre 2010 et novembre 2011.	146
4.8	Différences zonales latitudinales saisonnières de N ₂ O entre IASI et LMDz (gauche), et entre IASI et MIROC4-ACTM (droite). De haut en bas, résultats obtenus respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON, de décembre 2010 et novembre 2011.	147
5.1	Bruits des 4 capteurs candidats pour MIN ₂ OS fournis par AIRBUS Defence and Space et utilisés dans Ricaud et al. (2021) en Ne Δ L (Noise Equivalent Delta Radiance) (mW.m ⁻² .sr ⁻¹ .(cm ⁻¹) ⁻¹) En fonction de la longueur de l'échantillon au sol (km). Les valeurs des bruits correspondent au centre des bandes spectrales B1 _{N₂O} et B2 _{N₂O} . Ces bandes sont centrées respectivement sur 1300 et 2200 cm ⁻¹ (7.7 et 4.5 μ m).	153

Liste des tableaux

2.1	Description des modes de vibration normaux d'une molécule polyatomique.	49
3.1	Caractéristiques instrumentales de IASI, (EUMETSAT, IASI, 2019).	72
3.2	Grilles d'inversion utilisées dans TN ₂ OR v1.7 et TN ₂ OR v2.0.	95
3.3	Synthèse de la configuration des paramètres pour les outils d'inversion TN ₂ OR v1.7 et TN ₂ OR v2.0 en fonction des 3 bandes spectrales du N ₂ O B _{1N₂O} , B _{2N₂O} et B _{3N₂O} : information et erreurs associées sur les a priori de N ₂ O, CH ₄ , H ₂ O, O ₃ , CO ₂ , CO, température (T), température de surface (T _s) et émissivité de surface (ε). Les cellules barrées indiquent qu'il n'y a pas eu de restitution menée à partir des calculs de radiances spectrales dans B _{2N₂O} et B _{3N₂O} pour TN ₂ OR v2.0.	96
3.4	Synthèse de la comparaison entre les restitutions de N ₂ O de IASI et les mesures des campagnes aéroportées HIPPO 1-5 et NOAA entre 2009 et 2011 respectivement avec TN ₂ OR v1.7 et TN ₂ OR v2.0.	100
5.1	Caractéristiques instrumentales de MIN ₂ OS (Ricaud et al., 2021)	152

Table des sigles et acronymes

ACTM	Atmospheric Chemical Transport Model
AIRS	Atmospheric InfraRed Sounder
CNES	Centre National d'Étude Spatiale
DOF	Degree of Freedom
ECMWF	European Centre for Medium-range Weather Forecasts
EUMETSAT	European Meteorological Satellite
FTIR	Fourier Transform Infrared
GOSAT	Greenhouse Gases Observing Satellite
HIPPO	High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations
IASI	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer
IASI-NG	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer-New Generation
MEaSUREs CAMEL	Making Earth System data records for Use in Research Environments Combined ASTER and MODIS Emissivity for Land
LBLRTM	Line-By-Line Radiative Transfer Model
LMDz-INCA	Laboratoire de Météorologie Dynamique "Zoom"-INteraction with Chemistry and Aerosols
MACC	Monitoring Atmospheric Composition and Climate
Metop	Meteorological Operational
MIN₂OS	Monitoring Nitrous Oxide Sources
NDACC	Network for the Detection of Atmospheric Composition Change
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration

Table des sigles et acronymes

RTTOV	Radiative Transfer for Tiros Operational Vertical
TIR	Thermal InfraRed
TN₂OR	Toulouse N ₂ O Retrieval

Introduction

Le protoxyde d'azote, également appelé "gaz hilarant", est un gaz de formule N_2O . Il est composé de deux atomes d'azote (N) et d'un atome d'oxygène (O). La molécule a été découverte en 1772 par le chimiste britannique Joseph Priestley, également célèbre pour avoir découvert le dioxygène (O_2) (Priestley, 1774). Celui-ci est utilisé aujourd'hui en médecine, notamment en chirurgie où il sert d'anesthésiant. Son nom de "gaz hilarant" est dû à sa propriété euphorisante lorsqu'il est inhalé. Le N_2O est une drogue dite "récréative" qui procure chez le consommateur des effets hallucinogènes.

Il s'agit également d'un gaz à effet de serre (GES) qui a une durée de vie dans l'atmosphère de 120 ans. Il possède un pouvoir de réchauffement global d'environ 265, ce qui signifie qu'une molécule de N_2O réchauffe l'atmosphère 265 fois plus que la molécule de référence, le dioxyde de carbone (CO_2) (Stocker, 2014). Il est présent dans l'atmosphère, en majorité dans la troposphère à une concentration proche de 335 parties par milliards de molécules (ppb) (Dlugokencky, 2022). Il s'agit du 3^{ème} gaz anthropique responsable de l'effet de serre et participe à hauteur de 6% du forçage radiatif, derrière le CO_2 , principal GES représentant 64% du forçage radiatif et le méthane (CH_4), 17%. On retrouve ensuite l'hexafluorure de soufre (SF_6), les chlorofluorocarbures (CFC) et les hydrofluorocarbures (HFC) (Stocker, 2014), qui sont des gaz industriels que l'on retrouvait principalement dans les machines frigorifiques. Le N_2O est également un précurseur d'oxydes d'azote (NO_x) tels que le monoxyde d'azote (NO) et le dioxyde d'azote (NO_2). Ces molécules sont présentes en faible quantité dans la stratosphère. Elles participent, avec les oxydes de chlore produits par les CFC et les HFC, à la destruction de l'ozone (O_3) stratosphérique qui absorbe une grande partie des rayons UV du Soleil, fragilisant ainsi la couche d'ozone. Le protocole de Montréal, signé par 24 pays le 16 septembre 1987, visait à stopper les émissions des substances appauvrissant la couche d'ozone (SACO) afin que d'ici 2050, celle-ci retrouve son état de 1980. Le N_2O n'étant pas encore considéré comme une SACO, il est devenu, dès

lors que les émissions des SACO ce sont arrêtées, la 1^{ère} espèce contribuant indirectement à la destruction de la couche d'ozone (Ravishankara et al., 2009).

Le N_2O est émis naturellement par les sols par différents processus biologiques tels que la nitrification et la dénitrification, notamment dans les milieux terrestres présentant un fort taux d'humidité et relativement dense en terme de végétations (Butterbach-Bahl et al., 2013). D'après Tian et al. (2020), les émissions annuelles de N_2O depuis les sols sont de 6.6 TgN.an^{-1} , ce qui représente environ 37% des émissions totales. Les processus de nitrification et dénitrification présents dans les sols sont également responsables des émissions de N_2O par les océans. 3.8 TgN.an^{-1} de N_2O sont émis chaque année par les océans, soit 21% des émissions totales. Il reste environ 3% des émissions de N_2O d'origines naturelles qui sont issues d'une production chimique dans l'atmosphère, c'est à dire 0.6 TgN.an^{-1} émis chaque année. Les émissions naturelles de N_2O représentent à elles seules 11 TgN.an^{-1} , soit plus de 60% des émissions totales. Reste donc 40% des émissions totales de N_2O , c'est à dire 6.9 TgN.an^{-1} de N_2O produits par an, qui sont d'origine anthropique, autrement dit issues de l'activité humaine. La majorité d'entre elles est directement causée par l'activité agricole, avec 4.1 TgN.an^{-1} de N_2O émis, représentant 23% des émissions totales. Les 17% restants des émissions anthropiques de N_2O sont dues aux résultats des combustions d'énergies fossiles, des procédés industriels ainsi que des feux de biomasse (1.4 TgN.an^{-1}), mais également aux restes de produits fertilisants azotés (aussi appelés fertilisants N) utilisés dans l'agriculture. Ceux-ci se déposent dans les rivières, les fleuves ou encore sur les littoraux et causent une nitrification excessive de ces milieux (0.6 TgN.an^{-1}). Respectivement 0.4 TgN.an^{-1} et 0.2 TgN.an^{-1} de N_2O sont émis par an en raison de dépôts de produits azotés d'origine anthropique tels que le diazote (N_2), les NO_x et l'ammoniac (NH_3) sur les terres et dans les océans. Enfin, les déchets humains émettent 0.2 TgN.an^{-1} de N_2O dans l'atmosphère.

Les émissions annuelles anthropiques des produits azotés responsables de la fabrication du N_2O ont été multipliées par un facteur 20 depuis 1850. Elles se sont accélérées depuis 1950 passant de 30 TgN.an^{-1} à plus de 190 TgN.an^{-1} en 2010. La concentration de N_2O dans l'atmosphère a quant à elle augmenté de 20% depuis la fin de la révolution industrielle (270 ppb en 1860 contre 330 ppb en 2020). Les augmentations accélérées des GES ont entraîné au cours des 150 dernières années une augmentation de la température moyenne globale proche de 0.8°C (Jones and Stott, 2011), induisant une augmentation de la température des océans entraînant un danger pour certaines espèces aquatiques comme

Introduction

les coraux, une perturbation des courants marins, une élévation moyenne du niveau des océans de 14 cm (Jevrejeva et al., 2009), ou encore la fonte des glaces, avec une perte moyenne de 24% de la surface totale des glaciers entre 1901 et 2010 (Marzeion et al., 2012), mettant aussi en danger plusieurs espèces d'animaux et de végétaux, désormais en voie d'extinction dans les régions touchées par ce phénomène (WWF, 2018). On peut également noter la perturbation du cycle de l'eau dans certaines régions, avec une variation du taux de précipitation, accentuant la sécheresse ou augmentant la fréquence des intempéries. Pour faire face à ces multiples problématiques, 184 états ont décidé, dans le cadre de la 3^{ème} conférence des parties à la convention-cadre des Nations unies sur les changements climatiques (COP-3), organisée le 11 décembre 1997 à Kyoto, de signer un accord international visant à réduire les émissions de GES dans le monde : le protocole de Kyoto. L'objectif de ces états, à travers le protocole de Kyoto entrant officiellement en vigueur en 2005, était de réduire ces émissions anthropiques de 5% entre 2008 et 2012 par rapport à 1990. Il est rempli pour les 15 états membres de l'Union Européenne de 1997, dont l'objectif de réduction de leurs émissions était fixé à 8% pour la période 2008-2012, en atteignant une réduction de 15.1% (European Environment Agency, 2014). Pour 43 pays signataires, les émissions ont diminué de 16.2% en 2012 par rapport à 1990 (Organisation des Nations unies, Convention-cadre sur les changements climatiques, 2014). De plus, face à l'inquiétude des scientifiques du groupe intergouvernemental d'experts sur l'évolution du climat (GIEC) par rapport aux prévisions des différents scénarios climatiques RCP (Representative Concentration Pathway), décrivant l'augmentation du forçage radiatif et prédisant, selon les scénarios, une augmentation de la température de surface moyenne à l'échelle globale comprise entre 1.0 °C et 3.7 °C (respectivement les scénarios RCP2.6 et RCP8.5, correspondant à une augmentation du forçage radiatif de 2.6 et 8.5 W.m⁻² à la fin du 21^{ème} siècle) d'ici 2100 par rapport à la période 1985-2005 (Stocker, 2014), ainsi qu'une augmentation de concentration de N₂O dans l'atmosphère, en 2100, comprise entre 6 et 38% par rapport à 2011 (Meinshausen et al., 2011), un objectif de limitation à +2 °C d'ici 2100, par rapport à la période pré-industrielle, a été fixé durant la COP-21 à Paris, le 12 décembre 2015. L'accord de Paris sur le climat, qui est entré en vigueur le 4 novembre 2016, a été signé par 197 nations et ratifié à ce jour par 183.

Afin de satisfaire ces besoins en terme de surveillance des GES, dont le N₂O, il est nécessaire de pouvoir déterminer à plus ou moins long terme les émissions des sources à différentes échelles de mesure. Seulement, peu de mesures de N₂O sont aujourd'hui répertoriées et disponibles par rapport à ce qui existe pour le CO₂ ou pour le CH₄, où de

gros moyens de mesure sont mis en œuvre pour ces GES (ce qui est légitime du point de vue du forçage radiatif que chacun d’eux représente par rapport au forçage radiatif total). Pour le N_2O , il peut s’agir de profils atmosphériques mesurés lors de campagnes aéroportées, de profils atmosphériques ou des colonnes restituées à partir de station au sol ou encore des profils ou colonnes de N_2O restituées à partir de données satellites. Les campagnes aéroportées High-performance Instrumented airborne platform for environmental research Pole-to-Pole Observations (HIPPO) ont permis de mesurer des concentrations atmosphériques de N_2O , en plus d’autres molécules comme la vapeur d’eau (H_2O), le CO_2 , le CH_4 ou l’ O_3 par exemple, majoritairement au-dessus de l’Océan Pacifique et entre 300 et 8500 mètres d’altitude (Wofsy, 2011). Au total, cinq campagnes HIPPO ont été effectuées entre 2009 et 2011 : HIPPO-1 en janvier 2009, HIPPO-2 entre octobre et novembre 2009, HIPPO-3 entre mars et avril 2010, HIPPO-4 entre juin et juillet 2011, et enfin HIPPO-5 entre août et septembre 2011. Des profils de N_2O , de CO_2 ou encore de CH_4 , ont pu également être mesurés lors de multiples campagnes menées par la NOAA/ESRL (National Oceanic and Atmospheric Administration/Earth System Research Laboratories) entre 2003 et 2017 dans le cadre du programme GGGRN (Global Greenhouse Gas Reference Network ; Sweeney et al. (2015)) autour de 26 sites de mesures. La plupart sont situés au-dessus des États-Unis, d’autres sont localisés au Canada, au Brésil, dans le Pacifique et également à l’est de l’Asie. Enfin, des campagnes aéroportées de mesures de N_2O , entre autres, dirigées par la NASA (National Aeronautic and Space Administration) dans le cadre du projet ATom (Atmospheric Tomography Mission) ont été réalisées entre juillet 2016 et mai 2018 (Wofsy et al., 2018). Les stations du réseau NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) fournissent des profils et des colonnes de N_2O à partir de spectromètres à transformée de Fourier, dans l’infrarouge thermique (FTIR) depuis 1991 sur 24 sites de mesures (De Mazière et al., 2018), de même que les stations du réseau TCCON (Total Carbon Column Observing Network), utilisant également des FTIR qui fournissent en revanche uniquement les colonnes de N_2O , mais sur 35 sites de mesures, depuis 2004 (Wunch et al., 2015).

Les inconvénients que ces campagnes de mesures ou ces instruments FTIR présentent, qui sont toutefois d’une très grande précision, reposent sur une contrainte des mesures à l’échelle locale ainsi que d’une échelle temporelle qui peut parfois être courte, notamment avec des données espacées dans le temps de plusieurs mois. Ces moyens mis en œuvre ne peuvent pas satisfaire des mesures de N_2O à l’échelle globale en surveillance continue. La mesure du N_2O dans l’infrarouge thermique (TIR) par instrument satellitaire permet de ré-

Introduction

pondre à cette difficulté. Depuis 2006 et le lancement de l'instrument spatial IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) sur la plateforme Metop-A, puis sur Metop-B en 2012 et sur Metop-C en 2018, il est possible de déterminer les colonnes de N_2O , désormais délivrées en tant que produits de niveau 2 de IASI par l'agence européenne EUMETSAT (Schlüssel et al., 2005), en utilisant une méthode reposant sur les réseaux neuronaux artificiels (Turquety et al., 2004). Ces données ont permis d'ailleurs de mettre en évidence la variabilité spatio-temporelle des colonnes de N_2O au niveau des tropiques (Ricaud et al., 2009). En revanche, l'usage de cette technologie ne permet pas de déterminer la sensibilité verticale nécessaire au calcul de profil de N_2O troposphérique. Pour ce faire, on utilise des méthodes d'estimation optimale (Rodgers, 2000), qui, couplées à des modèles de transfert radiatif, sont capables de déterminer cette sensibilité verticale. Ces mêmes méthodes ont permis de restituer pour la première fois des profils troposphériques de N_2O à partir de l'instrument AIRS (Atmospheric InfraRed Sounder), placé sur la plateforme Aqua, lancée en 2002 (Xiong et al., 2014). Depuis, des études ont été réalisées avec l'instrument Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation-Fourier Transform Spectrometer (TANSO-FTS) placé sur le satellite Greenhouse gases Observing SATellite (GOSAT) ou "IBUKI" en japonais (signifiant "vitalité"). Elles ont mis en évidence l'importance de la mousson asiatique dans les observations de N_2O dans le bassin méditerranéen (Kangah et al., 2017). Avec IASI, instrument principal de cette thèse, des études sur la restitution du N_2O troposphérique à l'échelle globale ont commencé à être menées dans le cadre de la thèse de Kangah (2017). Entre temps, 10 ans de données de N_2O de IASI à l'échelle globale ont été analysées (sur la période 2008-2018), notamment au niveau des océans et en période nocturne (Barret et al., 2021). D'autres restitutions de N_2O de IASI, couplées à celles du CH_4 , ont été réalisées et comparées aux mesures HIPPO et NDACC (García et al., 2018).

Cette thèse, financée par AIRBUS Defense and Space ainsi que par la région Occitanie et encadrée par le Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS), s'inscrit dans le cadre du projet ANIS, mais aussi dans la suite de la thèse produite par Kangah (2017), dont les travaux ont permis de mettre en évidence une sensibilité maximum de IASI au N_2O à 300 hPa. Elle s'inscrit également dans le projet Monitoring Nitrous Oxide Sources (MIN₂OS), soumis à l'Agence Spatiale Européenne (ESA) en décembre 2021 dans le cadre de la mission Earth Explorer 11 (EE11). L'objectif de cet instrument, basé sur les paramètres instrumentaux de IASI-New Generation (IASI-NG), est à terme, de déterminer les sources de N_2O à l'échelle globale avec une sensibilité verticale du N_2O au sol encore jamais

atteinte par un autre instrument de télédétection spatiale dans le TIR (Ricaud et al., 2021). En outre, elle s'inscrit dans un projet collaboratif de partage de données en sortie avec le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) et le NILU (Norwegian Institute for Air Research). L'idée est de permettre à des modélisateurs de déterminer les sources de N_2O à partir de profils atmosphériques de N_2O restitués issus des observations IASI. Ces sources seraient obtenues en utilisant des modèles météorologiques et de chimie-transport tels que LMDz-INCA (Laboratoire de Météorologie Dynamique zoom ; Hauglustaine et al. (2004)), CHIMERE (Menut et al., 2013), ou encore PyVAR-CAMS. Afin de remplir ces objectifs, nos restitutions seront produites grâce à un outil d'inversion développé durant cette thèse, appelé Toulouse Nitrous Oxide Retrieval (TN₂OR).

Nous allons donc détailler dans la première partie de la thèse l'état de l'art ainsi que la partie théorique, c'est-à-dire les chapitres 1 et 2. Le chapitre 1 comprend les processus physico-chimiques de production et de destruction de N_2O dans l'atmosphère, à savoir le principe de nitrification et de dénitrification relié directement au cycle de l'azote, ainsi que sa contribution à la destruction de la couche d'ozone dans la stratosphère. Il comprend également l'état de l'art sur l'émission des sources de N_2O et sur l'évolution temporelle de la concentration de N_2O dans l'atmosphère. Le chapitre 2 aborde les principes d'interaction rayonnement-matière les principes de mesure du N_2O dans l'atmosphère par télédétection spatiale, en traitant de manière générale la science et les techniques mises en œuvre pour pouvoir remonter à ces concentrations à partir d'un instrument de mesure de luminance spectrale, en l'occurrence dans le TIR pour le N_2O . Nous décrivons donc les principes physiques de la mesure du rayonnement, le transfert radiatif et la technologie utilisée par les capteurs afin de mesurer ce rayonnement.

Dans une deuxième partie, nous détaillerons, notamment dans le chapitre 3, l'outil d'inversion TN₂OR, développé spécifiquement pour le N_2O , combinant la méthode d'estimation optimale de Levenberg-Marquardt (Levenberg, 1944; Marquardt, 1963) et le modèle de transfert radiatif RTTOV (Radiative Transfer for TIROS Optical Vertical sounder) (Saunders et al., 1999). Nous avons besoin, au préalable, de définir l'ensemble des spécificités propre à TN₂OR. Nous décrivons pour cela l'instrument IASI, utilisé pour la restitution du N_2O et ses caractéristiques instrumentales. Nous décrivons évidemment RTTOV et la méthode de Levenberg-Marquardt, ainsi que les données d'entrée utilisées par chaque paramètre restitué simultanément avec le N_2O , dans le processus d'inversion. En outre, nous mettrons en avant les deux versions majeures de TN₂OR utilisées durant cette thèse :

Introduction

TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0. Cette deuxième partie, en particulier le chapitre 4, sera également consacrée à la validation et à l'étude des restitutions de N₂O obtenues avec TN₂OR v2.0, dont une partie fait d'ailleurs office d'article, en révision à ce jour dans la revue *Remote Sensing*.

Enfin, la troisième partie de cette thèse traitera exclusivement, dans le chapitre 5, du projet instrumental MIN₂OS. Nous détaillerons tout d'abord dans cette partie les caractéristiques instrumentales de MIN₂OS. Ensuite, un travail approfondi sur l'étude de la sensibilité verticale de MIN₂OS calculée à partir de TN₂OR v1.7, qui a en partie, fait l'objet d'un article publié à la revue *Remote Sensing of Environment* (Ricaud et al., 2021), sera aussi présenté.

Chapitre 1

Le N₂O dans la biosphère

Sommaire

1.1	Les sources de N₂O	30
1.1.1	Le cycle de l'azote	30
1.1.2	Les émissions de N ₂ O	35
1.2	Puits de N₂O	42
1.3	Bilan du N₂O atmosphérique	45

Ce premier chapitre de thèse est consacré aux mécanismes de production et de destruction du N₂O. Pour cela, il est nécessaire d'expliquer les réactions mises en jeu dans le cycle de l'azote, qui sont fondamentales dans le processus d'émission du N₂O, mais aussi le lien entre la photolyse du N₂O et la destruction de l'ozone (O₃) engendrée par cette réaction. Nous ferons un état de l'art des émissions de N₂O, naturelles et anthropiques, ainsi que les conséquences qu'elles ont sur la concentration de N₂O atmosphérique, tout en montrant leur tendance respective au cours du temps.

1.1 Les sources de N₂O

1.1.1 Le cycle de l'azote

Le cycle de l'azote est un cycle biogéochimique décrivant la production d'azote réactif (Nr) à partir du diazote (N₂) dont l'atmosphère est constituée à 78%, présent à la fois dans les sols et les océans. L'azote réactif correspond à tous les produits azotés différents de N₂, c'est à dire les oxydes d'azote (NO_x), l'ammoniac (NH₃) et le N₂O, qui sont produits à différentes étapes du cycle de l'azote. Le cycle de l'azote est régi par trois mécanismes majeurs :

- La fixation de l'azote atmosphérique au sol, durant laquelle est produit essentiellement le NH₃.
- La nitrification produisant du nitrate (NO₃⁻).
- La dénitrification conduisant à la formation d'autres NO_x ainsi que du N₂O.

La figure 1.1 illustre le cycle de l'azote et les constituants d'origine naturelle et anthropique participants à la production des Nr, dont le N₂O.

1.1.1.1 La fixation de l'azote

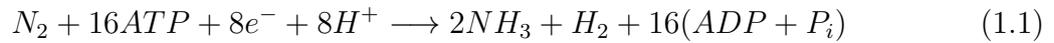
La fixation de l'azote correspond à des réactions biologiques ou abiotiques, c'est à dire non dépendantes des êtres vivants, qui dissocient la molécule N₂ contenu dans l'atmosphère et fixe l'azote par le biais de différents mécanismes chimiques dans le sol ou l'eau. Trois procédés permettent de fixer l'azote :

- La fixation de l'azote par les micro-organismes, correspondant à la fixation biologique de l'azote.
- Le procédé industriel d'Haber-Bosch.
- Les éclairs.

La fixation biologique de l'azote est le résultat d'une réaction chimique complexe entre N₂ et des micro-organismes présents dans le sol. Ces micro-organismes, qui sont des bactéries procaryotes (unicellulaires et sans noyau) captent le N₂. Dès lors, la réaction alimentée en énergie par de l'adénosine triphosphate (ATP), un nucléotide, constituant de toutes les cellules organiques dont ces bactéries, est catalysée par une enzyme produite par ces

1.1. Les sources de N₂O

mêmes bactéries, appelée nitrogénase. Cette réaction produit du NH₃ :



Dans la réaction (1.1), l'énergie apportée par l'ATP permet de dissocier les atomes N du N₂, qui est très stable en raison de sa liaison triple, dans les conditions normales de température et de pression du sol ou des océans. Cette énergie est alors libérée par hydrolyse (réaction chimique en présence de H₂O) de l'ATP. L'hydrolyse dissocie l'ATP en adénosine

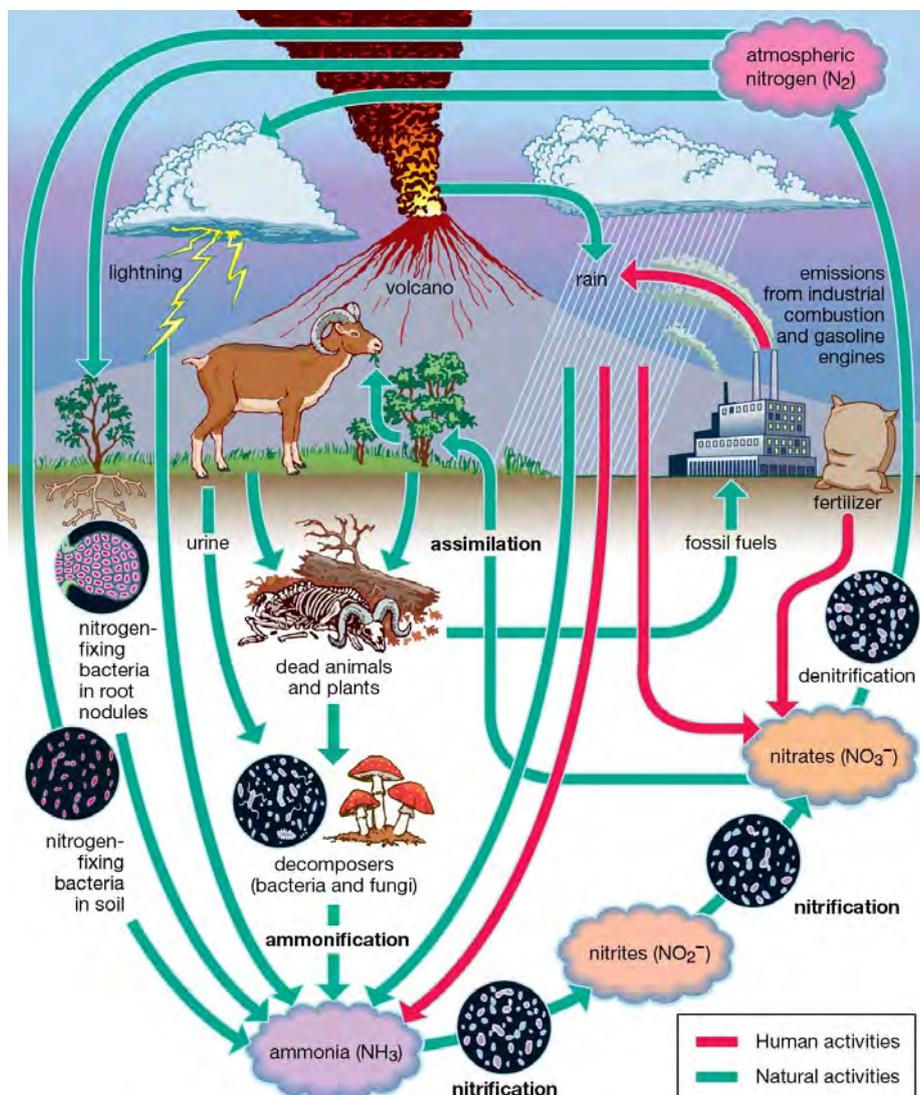


FIGURE 1.1 – Illustration du cycle de l'azote. Interactions liées aux activités humaines (en rouge) et interactions liées aux processus naturels (en vert). Source : britannica.com

diphosphate (ADP) et en phosphate inorganique (P_i). La nitrogénase agit précisément lors de cette réaction d'hydrolyse.

Entre 40 et 50% de la fixation de l'azote provient des océans, notamment grâce aux cyanobactéries marines. Le reste des bactéries responsables de la fixation du N₂ résident dans les sols. Elles peuvent vivre en milieu aérobie (en présence d'O₂), comme par exemple les bactéries *Azomonas* ou *Azotobacter*, ou anaérobie (absence d'O₂), telles que *Desulfovibrio* et *Clostridium*. D'autres vivent en symbiose avec le système racinaire des plantes. On distingue notamment le *Frankia* qui vie en symbiose avec les angiospermes, c'est à dire les plantes à fleurs, ainsi que les bactéries de type *Rhizobium* qui elles sont associées aux légumineuses, c'est à dire des plantes telles que le soja, le trèfle ou encore la glycine (Brouquisse and Puppo, 2021).

Le NH₃ est également fabriqué par l'Homme. Il sert notamment comme gaz réfrigérant ainsi qu'à la production d'engrais. Un procédé industriel permet de le produire à partir du N₂ atmosphérique, d'après la réaction (1.2). Il s'agit du procédé Haber-Bosch introduit en 1909 et industrialisé en 1913 :



La réaction (1.2) est exothermique, c'est à dire qu'elle libère de la chaleur. Pour produire de l'ammoniac à partir de ce procédé, il est nécessaire d'être à des conditions extrêmes de température (plus de 450°C) et de pression (entre 150 et 200 atm).

Enfin, l'azote peut également être fixé grâce aux éclairs. L'énergie produite par les éclairs permettent de dissocier les molécules N₂ et O₂ pour produire du monoxyde d'azote (NO).



Celui-ci va réagir par la suite avec de l'ozone (O₃) pour produire du dioxyde d'azote (NO₂).



Enfin, le NO₂, associé au radical OH, s'oxyde pour produire de l'acide nitrique (HNO₃). (Borucki and Chameides, 1984).

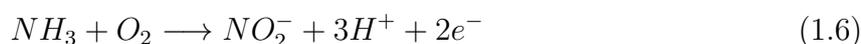


1.1. Les sources de N₂O

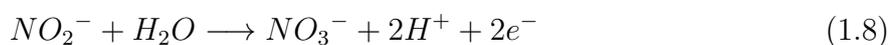
1.1.1.2 La nitrification

La nitrification est un processus chimique et biologique qui produit du nitrate (NO_3^-) à partir du NH_3 ou de l'ammonium (NH_4^+) en deux étapes. Initialement, le NH_3 est issu de la fixation de l'azote atmosphérique dans le sol, notamment grâce à des micro-organismes.

La première étape de la nitrification est la nitritation. Il s'agit d'une réaction d'oxydation qui permet de transformer du NH_3 (eq. 1.6) ou du NH_4^+ (eq. 1.7) en ion nitrite (NO_2^-). Elle se produit en milieu aérobie. Cette étape est essentiellement produite par des micro-organismes du type *Nitrosomonas* (Lipschultz et al., 1981).

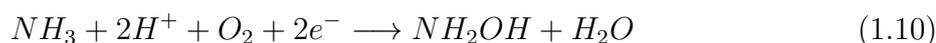


La deuxième étape de nitrification correspond à la réaction (1.8) et (1.9). Il s'agit de la nitratation, où du NO_3^- est produit à partir de NO_2^- et de H_2O si NO_2^- est issu de la réaction 1.6, ou de O_2 si celui-ci est issu de 1.7.



Les bactéries du type *Nitrobacter* sont associées à cette étape de nitratation (Watson et al., 1981).

Le processus de nitrification permet, dans des cas plus complexes, de produire du NO ainsi que N₂O, comme le montre la figure 1.2. La production d'hydroxylamine (NH_2OH) à partir du NH_3 , ainsi que de l'enzyme ammonia mono-oxygénase produite par la bactérie *Nitrosomonas europaea*, servant de catalyseur, est nécessaire (Robertson and Groffman, 2007) :



À l'issue de la réaction (1.10), le processus de production de N₂O est envisagé en

présence de métaux tels que le fer (Fe³⁺) ou le manganèse (Mn⁴⁺), mais également d'acide nitreux (HNO₂), qui permettrait en outre la production de NO (Heil et al., 2016).

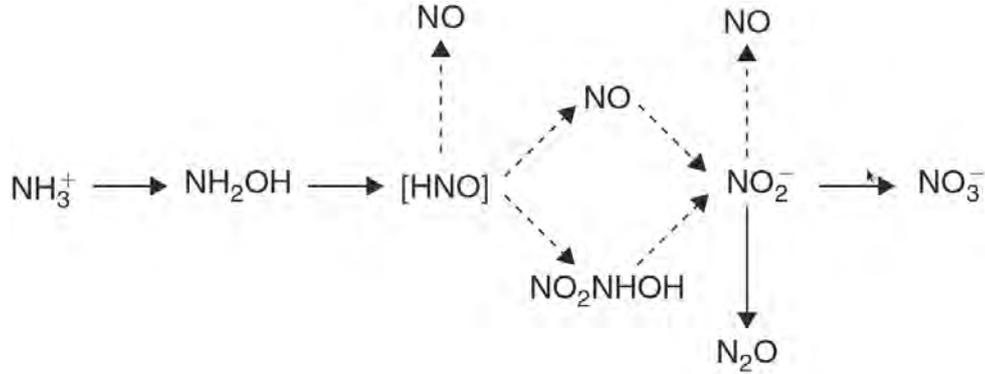
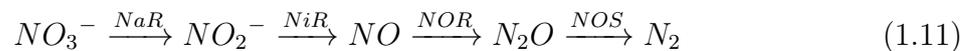


FIGURE 1.2 – Schéma des différents produits de la nitrification issus de la réaction chimique (1.10) tiré de Robertson and Groffman (2007).

1.1.1.3 La dénitrification

La dénitrification est le processus suivant la nitrification. Il s'agit également de la dernière étape du cycle de l'azote qui a lieu dans le sol et permet entre autre l'émission de NO, de N₂O et celle du N₂ dans l'atmosphère, dans le cas d'un processus complet. Dans le sol, l'avancement de ce processus dépend de la concentration en O₂ ainsi que de la teneur du sol en eau, notée SWC (Soil Water Content). Un sol dont le SWC est compris entre 40 et 70% favorise l'émission de N₂O. Au-delà de 70%, l'émission de N₂ domine (Oswald et al., 2013). Ce mécanisme se produit essentiellement à partir de NO₃⁻, comme montré en 1.11.



Ces réductions en cascade sont provoquées par des enzymes fabriquées par des micro-organismes qui catalysent les réactions. La nitrate réductase (NaR), la nitrite réductase (NiR), l'oxyde nitrique réductase (NOR) et l'oxyde nitreux réductase (NOS) sont les enzymes nécessaires aux réductions successives de la dénitrification. Les micro-organismes en action dans la dénitrification sont des bactéries vivant en milieu aérobie ou anaérobie selon la présence ou non d'O₂, telles que les *Proteobacteria*, *Paracoccus denitrificans* ou encore *Pseudomonas* (Ji et al., 2015). De manière générale, une grande partie des bactéries

1.1. Les sources de N₂O

hétérotrophes (qui se nourrissent de constituants organiques) ont la capacité d'agir dans le processus de dénitrification. Certaines bactéries autotrophes (qui produisent leur propre nourriture) intervenant dans le processus de nitrification tels que les *Nitrosomonas* permettent la dénitrification. L'émission des constituants de la dénitrification est dans ce cas issue de NH₂OH (Skiba, 2008).

1.1.2 Les émissions de N₂O

Il existe plusieurs sources d'émissions pour le N₂O que nous allons détailler, montrées en figure 1.3. Environ 60% des émissions de N₂O sont d'origine naturelle et le reste provient de l'activité humaine. Durant la période 2007-2016, l'ensemble des émissions annuelles représente 17 TgN.an⁻¹, soit une augmentation de 10% par rapport à la décennie 1980 (15.5 TgN.an⁻¹) et 7% par rapport à la décennie 1990 (15.9 TgN.an⁻¹). Toutes les données d'émissions entre 2007 et 2016 ainsi que sur les périodes remontant jusqu'aux années 1980, sont issues de Tian et al. (2020).

Entre 2007 et 2016, l'Asie figure comme le continent le plus émetteur. Respectivement, l'Asie de l'est (essentiellement la Chine), l'Asie du sud (essentiellement l'Inde) et l'Asie du sud-est émettent 1.7, 1.1 et 0.8 TgN.an⁻¹ sur la période 2007-2016, soit la somme de 3.6 TgN.an⁻¹ pour l'Asie. L'Afrique et l'Amérique du sud représentent 2.6 et 2.5 TgN.an⁻¹ d'émissions de N₂O. Une grande partie de ces émissions est localisée dans les forêts tropicales, ce qui explique que ces émissions soient en majorité d'origine naturelle (voir 1.1.2.1). Enfin, parmi les régions les plus émettrices de N₂O, on retrouve l'Amérique du nord et l'Europe qui émettent respectivement 1.7 et 1.1 TgN.an⁻¹. Au total, les émissions terrestres de N₂O sont estimées à 13.5 TgN.an⁻¹. Elles représentent environ 80% des émissions totales de N₂O, les 20% restants provenant des océans. Évidemment, ces pourcentages sont fortement biaisés par l'activité humaine.

1.1.2.1 Les émissions naturelles

Les émissions naturelles constituent pour la période 2007-2016 environ 57% des émissions totales de N₂O, soit 9.7 TgN.an⁻¹. Les continents sont responsables à 65% des émissions naturelles (6.3 TgN.an⁻¹). Les sols forment une grande partie de ces émissions (5.6 TgN.an⁻¹). Le reste provient des zones aquatiques et humides (mers, lacs, rivières, marais,

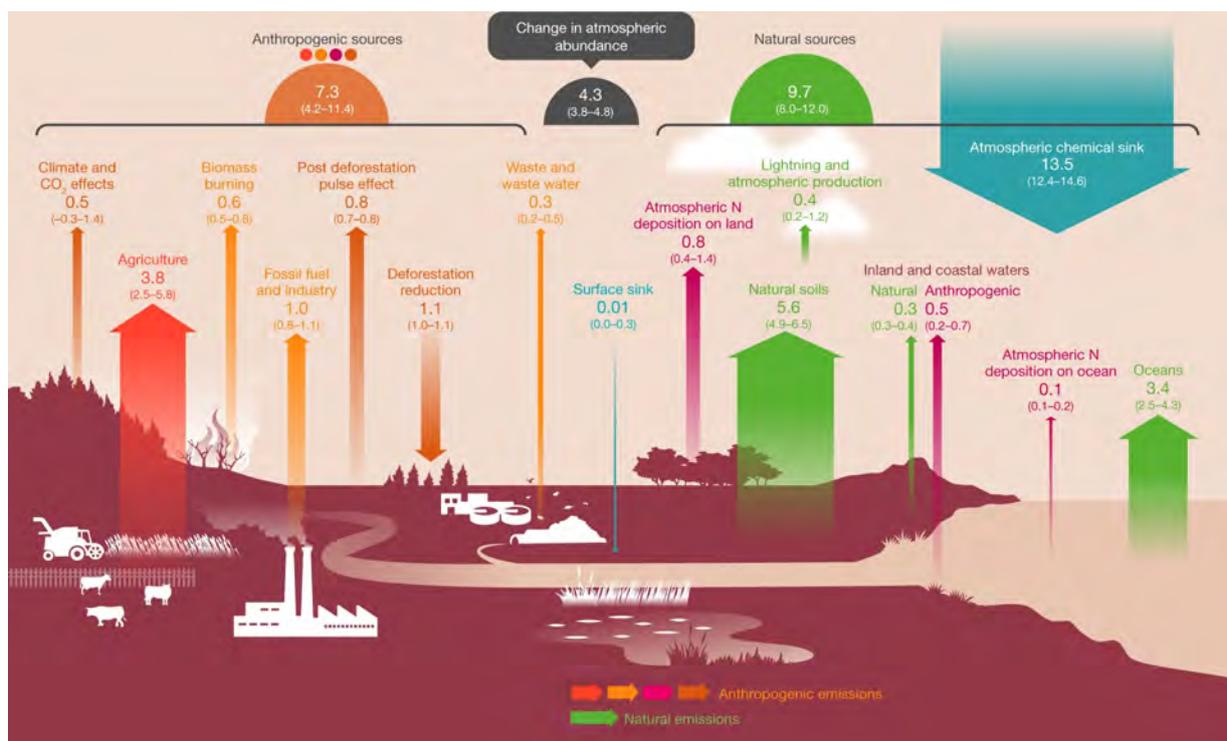


FIGURE 1.3 – Illustration des émissions de N₂O dans l’atmosphère (en TgN.an⁻¹) en fonction des sources, naturelles (vert) et anthropiques (orange et rouge), ainsi que leur valeur durant la période 2007-2016, tirée de Tian et al. (2020).

côtes maritimes, etc.) (0.3 TgN.an⁻¹) ainsi que par les éclairs et la production de N₂O dans l’atmosphère (0.4 TgN.an⁻¹). Les océans produisent enfin 35% des émissions naturelles de N₂O (3.6 TgN.an⁻¹).

Comme le montre la figure 1.4, les forêts tropicales sont les régions principales d’émissions naturelles de N₂O. En Amérique du sud (Amazonie) et en Afrique (forêt équatoriale), les émissions naturelles de N₂O sont de 1.8 et 1.6 TgN.an⁻¹. Les forêts tropicales asiatiques émettent quant à elles du N₂O à hauteur de 1.0 TgN.an⁻¹. L’Amérique du nord est une région relativement importante en terme d’émission naturelle. Elle représente près de 0.6 TgN.an⁻¹. Enfin, l’Océanie, la Russie, l’Europe et le Moyen-Orient contribuent aux émissions naturelles dans une moindre mesure, avec respectivement 0.3, 0.3, 0.2 et moins de 0.1 TgN.an⁻¹.

Sur les dernières décennies, ces émissions sont restées stables. En effet, 9.9 TgN.an⁻¹ de N₂O furent produits pendant les années 1980 et 9.8 TgN.an⁻¹ durant les années 1990 et 2000. Cependant, elles représentent de moins en moins la part des émissions totales, en

1.1. Les sources de N₂O

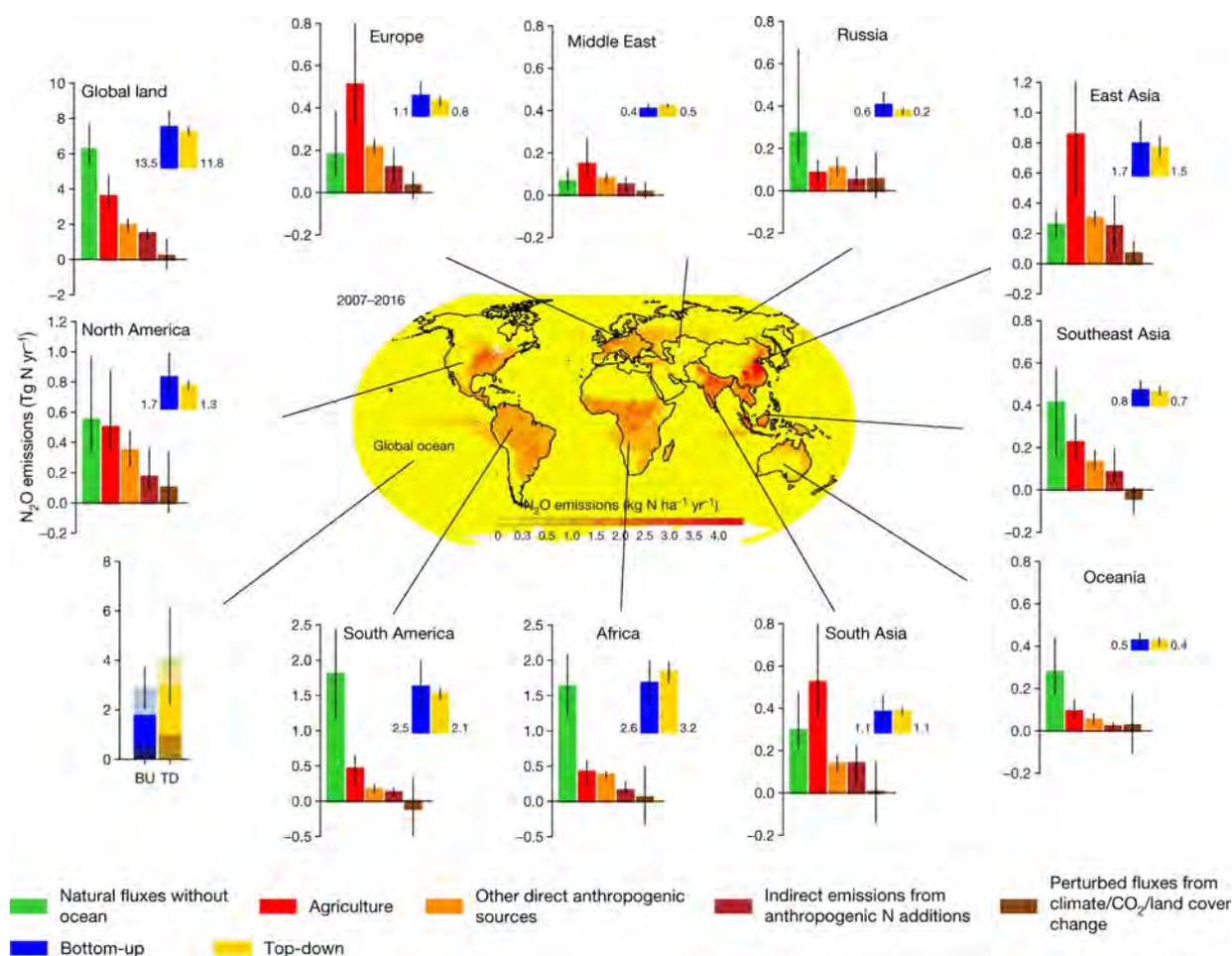


FIGURE 1.4 – Émissions annuelles de N₂O dans l'atmosphère à l'échelle globale (TgN.an⁻¹) moyennées sur la période 2007-2016. Les graphiques excentrés représentent sur cette même durée la quantité annuelle moyenne de N₂O émise en fonction de différentes sources pour 10 régions d'intérêt, en plus de la moyenne globale. Figure tirée de Tian et al. (2020).

raison de l'augmentation de la part liée à l'activité humaine (1.1.2.2), évoluant au cours de ces trois décennies à respectivement 64, 62 et 60%.

1.1.2.2 Les émissions anthropiques

Les émissions anthropiques correspondent aux émissions de N₂O liées à l'activité humaine. L'agriculture est la première source d'émissions anthropiques (figures 1.3, 1.4 et 1.5), notamment en raison de la consommation d'engrais azotés. Cet azote se fixe dans le sol et participe au cycle de l'azote, et donc à la production de N₂O par processus de ni-

trification et dénitrification (Butterbach-Bahl et al., 2013). Pendant la période 2007-2016, elle participe aux émissions anthropiques à hauteur de 52%, soit 3.8 TgN.an⁻¹. Issu de l'agriculture, 2.3 TgN.an⁻¹ de N₂O sont directement émis du sol. De plus, une partie non-négligeable provient du fumier épandu dans les prés (1.5 TgN.an⁻¹). Le reste des émissions est issu de l'aquaculture (moins de 0.1 TgN.an⁻¹).

D'autres formes d'émissions, indirectement liées à l'agriculture, sont causées par addition dans le sol ou les océans de produit azotés. Dans les zones aquatiques et humides, les résidus de produits azotés permettent l'émission de 0.5 TgN.an⁻¹ de N₂O. De plus, le N₂ produit à partir des composés azotés et qui se redépose dans le sol et les océans est responsable des émissions de N₂O de respectivement 0.8 et moins de 0.1 TgN.an⁻¹. Ces émissions indirectes de N₂O représentent au final 1.3 TgN.an⁻¹, c'est à dire 18% des émissions anthropiques totales.

La combustion d'énergies fossiles, notamment le charbon, produit du N₂O. Le cyanure d'hydrogène (HCN) ainsi que le NH₃, qui sont des composés volatils qu'on trouve dans le charbon, permettent de fournir l'azote nécessaire à la réaction lors de la combustion (Hayhurst and Lawrence, 1992). Ainsi, en plus de la combustion d'énergie fossile et de l'industrie, qui produisent au total 1.0 TgN.an⁻¹ de N₂O, les feux de biomasse ainsi que les déchets et les eaux usées causent respectivement 0.6 et 0.3 TgN.an⁻¹ d'émissions de N₂O. Les feux de biomasse sont classés en tant que sources anthropiques de N₂O mais il est tout à fait possible que leur origine soit naturelle, notamment lors d'impact de foudre déclenchant des incendies.

Enfin, certaines sources de N₂O sont directement liées à la concentration du CO₂ et à l'évolution des sols qui peuvent avoir pour cause le changement climatique ou la déforestation. En effet, la concentration de CO₂ dans l'atmosphère augmente et favorise la croissance des plantes, ce qui permet d'augmenter l'absorption d'azote par celles-ci et ainsi diminuer la production de N₂O. Un sol appauvri en végétation favorise également la diminution de la production de N₂O dans l'atmosphère. Pour preuve, sur la période 2007-2016, la déforestation et l'augmentation de CO₂ ont permis de diminuer les émissions de N₂O de 1.1 et 0.3 TgN.an⁻¹. Cependant, la conversion des forêts rasées en plantations diverses a permis l'augmentation des émissions de N₂O de 0.8 TgN.an⁻¹. De plus, l'augmentation de la température globale sur les continents de plus de 1.0°C favorise les émissions de N₂O à hauteur de 0.8 TgN.an⁻¹. La balance d'émissions de N₂O induites par le changement climatique, l'augmentation du CO₂ et la variation des sols reste donc positive de 0.2 TgN.an⁻¹.

1.1. Les sources de N₂O

Évidemment, la déforestation entraîne des dérèglements graves en terme de biodiversité et d'augmentation du CO₂ et reste une valeur ajoutée bien moindre à la réduction des émissions de N₂O.

Sur ces quarante dernières années, les émissions anthropiques annuelles de N₂O ont augmenté de plus de 30%. Elles étaient dans les années 1980 à 5.6 TgN.an⁻¹. L'agriculture est la source ayant subi l'augmentation des émissions la plus importante au cours de cette période, avec une variation de +46% par rapport aux années 1980. Ceci s'explique par une activité agricole toujours plus importante en raison de l'augmentation de la population mondiale (Tilman et al., 2011). Cette tendance s'observe également à l'échelle régionale, notamment en Asie (fig. 1.5). En effet, dans les régions d'Asie de l'est, d'Asie du sud et d'Asie du sud-est, les émissions annuelles de N₂O étaient respectivement de 0.3, 0.2 et inférieures à 0.1 TgN.an⁻¹ en 1980. En 2016, ces régions ont enregistré une augmentation comprise entre 100 et 230% par rapport à 1980 (1.0, 0.6 et 0.2 TgN.an⁻¹). Ailleurs, c'est en Afrique et en Amérique (du sud et du nord) que les augmentations des émissions annuelles de N₂O dues à l'agriculture sont les plus importantes depuis 1980. Jusqu'en 2016, elles sont passées de 0.2 à 0.5 TgN.an⁻¹ en Afrique (+150%), de 0.3 à 0.5 TgN.an⁻¹ en Amérique du sud (+60%) et de 0.4 à 0.6 TgN.an⁻¹ en Amérique du nord (+50%). Les émissions annuelles de N₂O liées à l'agriculture sont néanmoins restées stables en Océanie et au Moyen-Orient. Elles oscillent autour de 0.1 TgN.an⁻¹ durant cette période. En revanche, celles-ci ont diminué en Europe et en Russie. En Europe, région où l'agriculture était la source la plus émettrice de N₂O en 1980 (0.6 TgN.an⁻¹), les émissions de N₂O ont diminué de 16%, atteignant 0.5 TgN.an⁻¹. En Russie, elles ont diminué de moitié (0.2 TgN.an⁻¹ en 1980 contre 0.1 TgN.an⁻¹ en 2016). Pour l'Europe, les normes agricoles plus strictes sont à l'origine de cette diminution. Pour la Russie, la diminution est causée par un changement de politique agricole coopérative après 1990.

Le bilan des autres sources anthropiques de N₂O est resté stable durant la période 1980-2016, hormis en Asie de l'est où les flux de N₂O liés au secteur industriel, aux feux de biomasse et aux dépôts azotés indirectement liés à l'agriculture ont augmenté de près de 100% en moins de quarante ans (0.1 en 1980 contre plus de 0.2 TgN.an⁻¹ en 2016 pour chacune des sources). En Europe également, où cette fois les émissions liées au secteur industriel principalement, ont diminué d'environ 40% entre 1980 et 2016, passant de 0.5 à 0.3 TgN.an⁻¹. Tout comme pour l'agriculture, les normes industrielles plus strictes ont permis de diminuer les émissions annuelles de N₂O. En Asie du sud, si on exclut le pic à 0.7

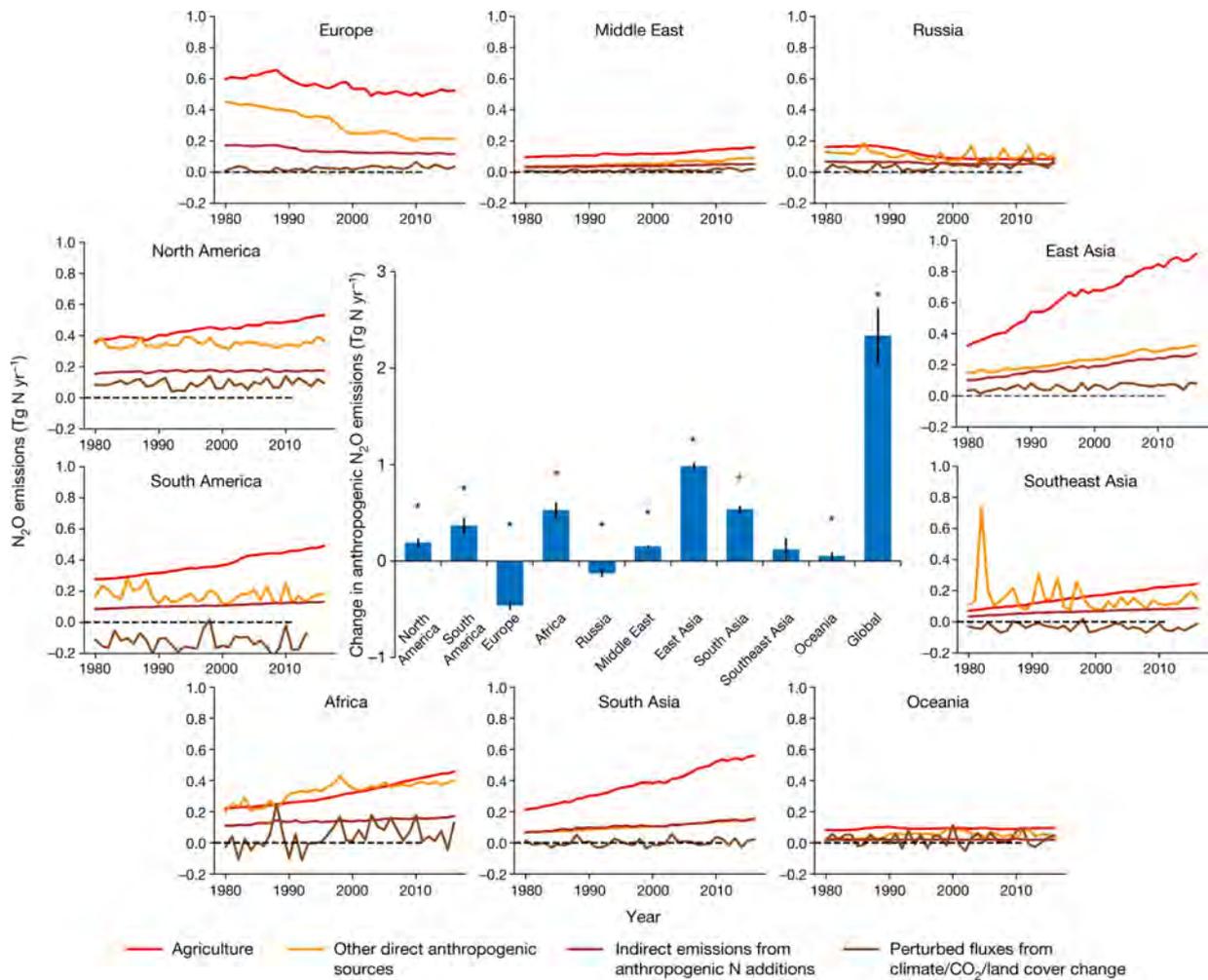


FIGURE 1.5 – Évolution des émissions de N₂O (TgN.an⁻¹) anthropiques entre 1980 et 2016 en fonction des sources pour 10 régions d'intérêt (identique à la figure 1.4). Figure tirée de Tian et al. (2020).

TgN.an⁻¹ lié aux autres sources directes d'émissions anthropiques de 1982, ces émissions oscillent entre 0.1 et 0.3 TgN.an⁻¹. Pour ces mêmes sources, un phénomène similaire est observé en Afrique (0.2-0.4 TgN.an⁻¹), en Amérique du nord (≈ 0.4 TgN.an⁻¹), en Amérique du sud (0.1-0.3 TgN.an⁻¹) et en Russie (0.1-0.2 TgN.an⁻¹). Une légère augmentation de moins de 0.1 TgN.an⁻¹ entre 1980 (0.1 TgN.an⁻¹) et 2016 (moins de 0.2 TgN.an⁻¹) est toutefois à noter en Asie du sud pour ces sources directes ainsi que les sources indirectes causées par les dépôts azotés. Dans les autres régions du monde non citées, les sources directes autres que l'agriculture sont négligeables. Les sources indirectes de N₂O liées aux dépôts azotés sont stabilisées dans plusieurs régions, notamment en Amérique du nord (0.2 TgN.an⁻¹), en Amérique du sud, en Afrique et en Russie (0.1 TgN.an⁻¹). Ailleurs, ces flux

1.1. Les sources de N₂O

peuvent être considérés comme négligeables. Enfin, les effets liés au changement climatique, aux concentrations de CO₂ ainsi qu'à la déforestation sont négligeables dans toutes les régions autres que l'Amérique du nord, où les émissions annuelles de N₂O oscillent positivement (0-0.2 TgN.an⁻¹), en Afrique (-0.1-0.2 TgN.an⁻¹) et en Amérique du sud, région connue pour la déforestation de l'Amazonie qui permet, comme expliqué précédemment, une réduction des émissions comprise entre 0 et 0.2 TgN.an⁻¹ entre 1980 et 2016.

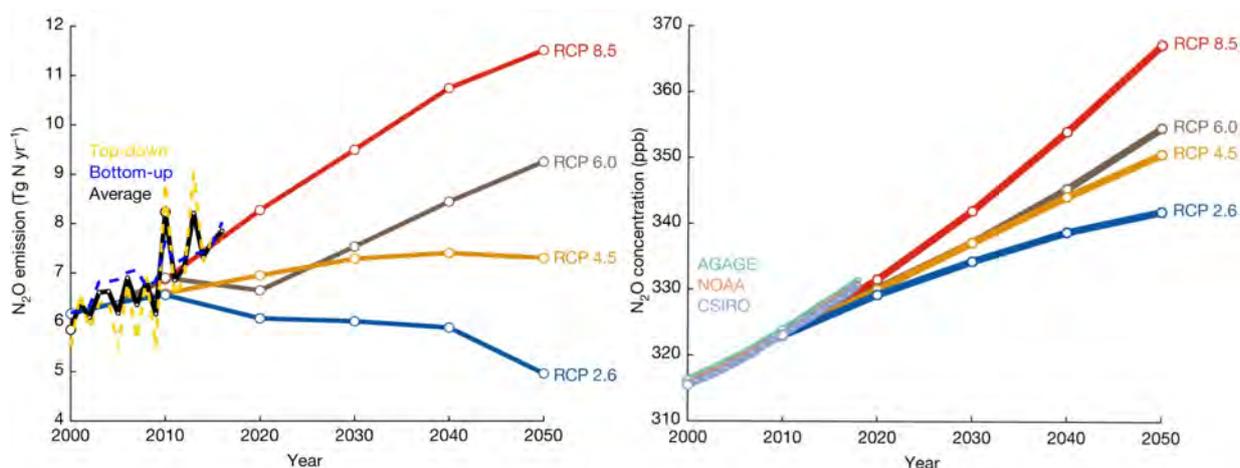


FIGURE 1.6 – (À gauche) Émissions anthropiques globales de N₂O (TgN.an⁻¹) et (à droite) concentration globale de N₂O atmosphérique (ppb) en fonction des scénarios présentés dans Stocker (2014) entre 2000 et 2050. Courbes représentant le scénario RCP 8.5 (rouge), RCP 6.0 (marron), RCP 4.5 (jaune) et RCP 2.6 (bleu). Les observations des réseaux AGAGE, NOAA et CSIRO sont montrées durant la période 2000-2018. Tirés de Tian et al. (2020).

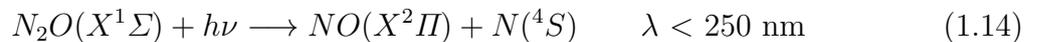
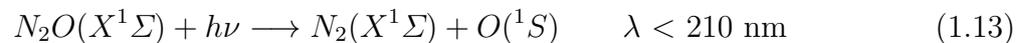
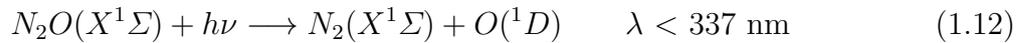
A l'instar de celles de CO₂ et de CH₄, les émissions anthropiques de N₂O sont en constante augmentation depuis la période pré-industrielle. A terme et de manière presque certaine, ces émissions continueront d'augmenter au cours du siècle (fig. 1.6). Les scénarios RCP (Representative Concentration Pathway) décrits dans Van Vuuren et al. (2011) et utilisés comme scénarios de référence depuis le 5^{ème} rapport sur le climat (Stocker, 2014), permettent d'établir des prévisions de paramètres climatiques jusqu'à 2300 à partir d'une limitation à l'augmentation du forçage radiatif d'ici 2100 pour chacun des quatre scénarios ainsi que de divers critères socio-économiques correspondants à chacune de ces augmentations. Excepté pour le scénario RCP2.6 qui limite le forçage radiatif à +2.6 W.m⁻² en 2100, les émissions anthropiques de N₂O augmentent jusqu'à 2050 pour les trois autres scénarios, avec à noter, une stabilisation des flux à partir de 2040 pour le scénario RCP4.5 (+4.5 W.m⁻² d'ici 2100) et une augmentation des émissions pour le scénario RCP6.0 (+6.0 W.m⁻² d'ici 2100) à partir de 2020. Les émissions de N₂O, issues d'assimilations de me-

sures de N₂O par des approches dites descendante ou ascendante, suivent pour l’instant la courbe du scénario RCP8.5 (+8.5 W.m⁻² d’ici 2100), le plus pessimiste d’entre eux. Si l’on suit ce modèle, les sources de N₂O en émettront environ 12 TgN.an⁻¹ en 2050, soit 64% de plus que celles estimées durant la période 2007-2016. En 2100, les émissions anthropiques de N₂O liées au scénario RCP8.5 seraient de 15.7 TgN.an⁻¹, soit 2 fois plus que les émissions anthropiques estimées entre 2007 et 2016. Elles représenteraient également 92% des émissions totales de N₂O sur cette même période.

1.2 Puits de N₂O

La durée de vie du N₂O dans l’atmosphère (120 ans) montre qu’il s’agit d’un gaz peu réactif. Il existe plusieurs types de puits de N₂O. Le puits stratosphérique est le puits majeur de N₂O. Il peut également être détruit à la surface, bien que ce puits reste mineur. D’autres mécanismes moins connus de destruction du N₂O peuvent également avoir lieu dans l’atmosphère.

Le N₂O est principalement détruit lors de son transport dans la stratosphère. Il est transformé par photo-dissociation de trois manières à partir de l’absorption de rayonnement ultra-violet (UV), en fonction de l’énergie du photon qui interagit avec la molécule (Bates and Hays, 1967).



où ($X^1\Sigma$), (1D), (1S), ($X^2\Pi$) et (4S) correspondent à des états énergétiques des atomes ou des molécules correspondants. Dans 80% des cas, la photolyse casse la liaison entre N et O, fournissant ainsi N₂ et un atome d’oxygène excité et réactif O(1D) ou O(1S). Dans les 20% des cas restants, elle casse la liaison entre les deux atomes N, produisant du NO et un atome N(4S). Finalement, la photolyse est responsable à 90% de la destruction du N₂O dans la stratosphère (Kramlich and Linak, 1994). Cependant, le N₂O peut réagir avec un

1.2. Puits de N₂O

atome d'oxygène libre O(¹D) s'il n'est pas détruit par photolyse.

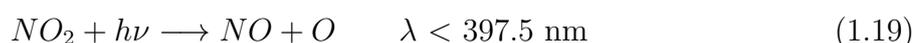


La réaction produite a deux issues. Dans le premier cas, elle produit deux molécules de NO. Dans le second, la réaction procure du N₂ et de l'O₂, des molécules moins réactives que le NO. Chacune de ces réactions est responsable de 5% de la destruction du N₂O dans la stratosphère.

D'après Ravishankara et al. (2009), le N₂O est au 21^{ème} siècle le premier précurseur contribuant à la destruction de O₃ dans la stratosphère. Bien que le N₂O ne réagit pas directement avec O₃, il produit du NO au cours des réactions 1.14 et 1.15, une molécule très réactive qui réagit pour sa part avec O₃.



Le dioxyde d'azote (NO₂) produit à partir de la réaction 1.17 se transforme lui-même en NO toujours réactif en utilisant un atome O libre ou en étant détruit par photo-dissociation (Crutzen, 1970).



Ainsi, le NO formé au cours des réactions 1.18 et 1.19 réagira une nouvelle fois avec O₃, qui sera détruit.

Comme le montre la figure 1.7, le N₂O est devenu en 2005 la première substance contribuant à l'appauvrissement de la couche d'ozone. D'après les scénarios SRES (Second Report on Emission Scenario) décrits dans Nakicenovic et al. (2000), il le demeurera au cours du 21^{ème} siècle. Ceci est dû notamment à la diminution des émissions des chlorofluorocarbures (CFC), en particulier le CFC-11 et le CFC-12, causée par l'imposition de l'arrêt de ces émissions ratifié lors du protocole de Montréal en 1987. Ces gaz réfrigérants étaient avant 2005 les premiers destructeurs de la couche d'ozone. L'arrêt est également valable pour d'autres gaz réfrigérants.

D'autres mécanismes de destruction du N₂O plus lents et encore peu connus peuvent

avoir lieu, de manière générale dans la troposphère, notamment avec le radical OH (Nguyen et al., 2018).



La réaction 1.20 produit en plus de N₂, de l'hydropéroxyde (HO₂), un radical extrêmement réactif. Il s'agit d'une réaction exothermique. La réaction 1.21 est en revanche endothermique. Les produits issus de cette réaction sont le NO et le nitroxyde (HNO).

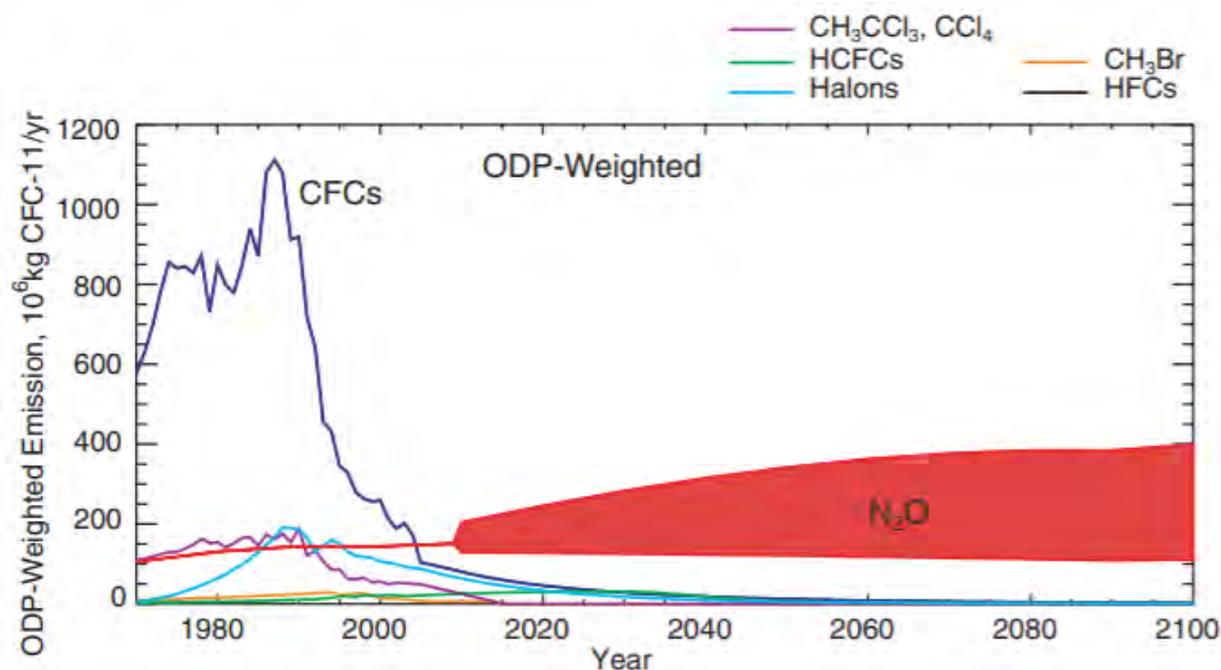


FIGURE 1.7 – Évolution des émissions des substances contribuant à la destruction de O₃ dans la stratosphère entre 1970 et 2100 (en équivalent 10⁶ kg CFC-11.an⁻¹). La surface rouge du N₂O correspond au potentiel des émissions estimés par les scénarios SRES (Special Report Emissions Scenarios) établis par le GIEC en 2000 (Nakicenovic et al., 2000). Tiré de Ravishankara et al. (2009).

Enfin, le N₂O atmosphérique peut également être absorbé par le sol et les océans et du N₂ issu du N₂O peut être produit par processus de dénitrification (partie 1.1.1.3). À l'échelle locale, certains sols sont susceptibles d'absorber une grande quantité de N₂O (Syakila et al., 2010). Cependant, à l'échelle globale, ce phénomène reste assez négligeable comparé à la destruction du N₂O dans la stratosphère. En effet, d'après Tian et al. (2020), l'absorption du N₂O à la surface était de 0.01 TgN.an⁻¹ durant la période 2007-2016, quand dans le même temps, 13.5 TgN.an⁻¹ de N₂O sont détruits dans l'atmosphère par les différents

1.3. Bilan du N₂O atmosphérique

processus chimiques détaillés précédemment. Ces chiffres restent stables dans le temps. Malgré ces quantités conséquentes de N₂O détruites ou absorbées, la balance entre le N₂O émis et le N₂O détruit/absorbé demeure positive. Cet écart se creuse au cours du temps et a des conséquences sur l'augmentation de la concentration de N₂O dans l'atmosphère.

1.3 Bilan du N₂O atmosphérique

Durant la période pré-industrielle, la concentration de N₂O dans l'atmosphère était estimée à 270 ppb. Les données de la NOAA indique qu'elle est de 333 ppb en 2020, soit une augmentation de 23% (Dlugokencky, 2022). On observe sur la figure 1.8 qu'en 30 ans, sur la période 1978-2011, la concentration de N₂O mesurée par le réseau de stations AGAGE (Advanced Global Atmospheric Gases Experiment) ainsi que par les données de la NOAA a augmenté de 8% en passant de 300 ppb à 325 ppb (Ciais et al., 2014). En fonction du temps, cette augmentation fluctue entre 0.5 et 1.0 ppb.an⁻¹. Elle a en revanche tendance

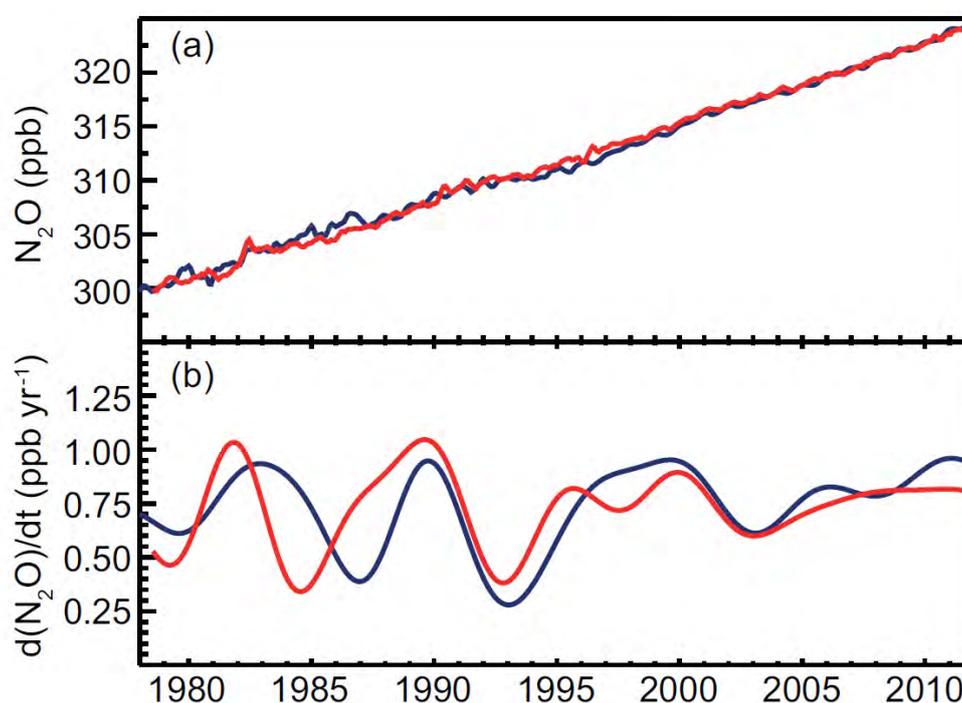


FIGURE 1.8 – a) Évolution des moyennes mensuelles (ppb) et b) évolution des variations annuelles (ppb.an⁻¹) des concentrations de N₂O mesurées par AGAGE (rouge) ainsi que par NOAA/ESRL/GMD (bleu) entre 1978 et 2011. Tirée de Ciais et al. (2014).

à se stabiliser depuis 2000 à 0.75 ppb.an⁻¹. L'augmentation de la concentration est causée par la progression des émissions anthropiques de N₂O (section 1.1.2.2). L'écart entre ce qui est émis de manière globale et ce qui est détruit par l'atmosphère ou absorbé par le sol et les océans ne cesse d'augmenter. Pour les années 2000, la charge de N₂O apportée à l'atmosphère est de 3.7 TgN.an⁻¹ et pour la période 2007-2016, elle est de 4.3 TgN.an⁻¹, ce qui représente une augmentation de 16% sur une décennie.

Au regard des prévisions des émissions de N₂O pour les quatre scénarios RCP, l'apport de N₂O dans l'atmosphère va augmenter, conduisant à une augmentation de la concentration de N₂O dans l'atmosphère et ceci pour n'importe quel scénario envisagé, comme on peut le voir sur la figure 1.6. Pour le scénario RCP2.6, le plus optimiste des quatre, la diminution des émissions anthropiques de N₂O ne permettrait même pas de stabiliser ou diminuer la concentration globale de N₂O dans l'atmosphère car l'écart entre ce qui est émis et ce qui est détruit ou absorbé serait toujours positif. Dans ce cas, la concentration de N₂O dans l'atmosphère en 2050 serait de 342 ppbv et se maintiendrait à 344 en 2100 (Stocker, 2014). Or les observations de N₂O de AGAGE, NOAA et CSIRO (Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation) se rapprochent et dépassent même pour l'instant des valeurs du scénario RCP8.5, le plus pessimiste d'entre eux. D'ici 2050, la concentration de N₂O atteindrait presque 370 ppb, soit 10% de plus qu'en 2020 et d'après Stocker (2014), elle serait estimée à 435 ppb en 2100 (+30% par rapport à 2020).

Chapitre 2

Transfert radiatif et observations spatiales

Sommaire

2.1	Interaction rayonnement-matière dans l’atmosphère	48
2.1.1	L’absorption	48
2.1.2	L’émission	53
2.1.3	La diffusion	54
2.1.4	Équation de transfert radiatif	56
2.2	Bilan radiatif de la Terre	57
2.3	Modèle d’effet de serre à une couche d’atmosphère	60
2.4	Téledétection spatiale	62
2.4.1	Généralités	62
2.4.2	Spectroscopie à transformée de Fourier	64

La première partie de ce chapitre consacré au transfert radiatif et aux observations spatiales nous permet d’aborder de manière générale les mécanismes d’interaction rayonnement-matière et les principes de transfert radiatif dans l’atmosphère terrestre. La seconde partie est consacrée aux méthodes de téledétection spatiale permettant de mesurer ce rayonnement. Nous aborderons en particulier, la méthode passive de spectrométrie dans l’infrarouge.

2.1 Interaction rayonnement-matière dans l'atmosphère

Lorsqu'un photon entre en interaction avec la matière, trois évènements dépendants de la matière et de l'énergie du photon, peuvent avoir lieu. Soit la matière absorbe un photon, soit elle en émet un ou soit elle le diffuse. On parle alors respectivement de phénomènes d'absorption, d'émission et de diffusion.

2.1.1 L'absorption

Lorsque la molécule absorbe du rayonnement dans l'atmosphère, elle peut subir trois effets dépendants essentiellement de sa longueur d'onde. Dans le domaine ultra-violet et visible (UV-VIS), entre 100 et 800 nm, l'absorption du photon par la molécule entraîne une excitation des électrons dans la couche électronique externe appelée couche de valence. Lorsque l'énergie apportée par le photon est élevée, cette excitation peut provoquer une cassure de la liaison chimique entre des atomes liés dans la molécule et ainsi la dissocier, comme par exemple dans les réactions de photolyses du N_2O (chap. 1.12, 1.13 et 1.14). Un autre exemple plus connu dans l'atmosphère est le cas de la molécule O_3 qui absorbe les UV provoquant ainsi sa dissociation en O_2 et en $O(^1D)$ libre.

Dans le domaine spectral infrarouge (IR), situé entre 800 nm et 1 mm, le photon absorbé par la molécule lui permet de vibrer et/ou d'effectuer des mouvements de rotation. On parle dans ce cas de vibration ou de rotation ou encore de phénomène rovibrationnel.

Lorsqu'une molécule vibre, elle est soumise à des mouvements internes d'élongation ou de flexion. Pour les molécules polyatomiques, il existe au maximum six modes normaux de vibration, décrits dans le tableau 2.1, s'appliquant notamment au méthylène (CH_2). Seulement, le nombre de modes de vibration d'une molécule dépend de sa géométrie. Dans le cas où la molécule est linéaire, le nombre N de modes de vibration est :

$$N = 3n - 5 \tag{2.1}$$

où n représente le nombre d'atomes dans la molécule, 3 pour les degrés de liberté de chaque atome correspondant aux 3 dimensions (x,y,z) et 5 correspond à la somme des modes de

2.1. Interaction rayonnement-matière dans l'atmosphère

TABLE 2.1 – Description des modes de vibration normaux d'une molécule polyatomique.

	Symétrique	Antisymétrique
Elongation	Elongation symétrique : les liaisons s'allongent et se contractent en phase.	Elongation antisymétrique : les liaisons s'allongent et se contractent en opposition de phase.
Déformation transversale	Cisaillement dans le plan : les atomes opposés effectuent un mouvement de cisaillement dans le plan de la molécule.	Bascule : les atomes opposés effectuent en phase un mouvement de balancier dans le plan de la molécule.
Déformation longitudinale	Cisaillement hors du plan : les atomes opposés effectuent un mouvement de cisaillement hors du plan de la molécule.	Torsion : le mouvement des atomes opposés est en opposition de phase hors du plan de la molécule.

translation et de rotation de la molécule (3+2). En revanche si la molécule est non-linéaire, le nombre de modes de vibration est alors :

$$N = 3n - 6 \quad (2.2)$$

Dans le cas d'une molécule non-linéaire, un mode de rotation vient se rajouter aux deux présents dans une molécule linéaire, d'où le 6. Les molécules diatomiques telles que N_2 , O_2 ou encore CO n'ont qu'un seul mode de vibration qui s'applique à leurs liaisons atomiques. Les molécules telles que le CO_2 et le N_2O sont linéaires et ont donc 4 modes de vibration différents qui sont les élongations symétriques et antisymétriques ainsi que les cisaillements ayant lieu dans et en dehors du plan de la molécule. Tandis que H_2O et O_3 ont chacun 3 modes de vibration : les deux types d'élongation et le cisaillement. Le CH_4 qui est une molécule tétraédrique, a quant à lui 9 modes de vibration. Le mode de vibration engendré par l'absorption du photon par la molécule dépend de son énergie, ce qui permet à une molécule de posséder plusieurs bandes d'absorption qui sont d'ailleurs visibles sur les spectres de la figure 2.1.

Dans le cas où les molécules agissent tels des oscillateurs harmoniques, leur énergie vibrationnelle associée E_v s'écrit :

$$E_v = hc \sum_{i=1}^N \left(v_i + \frac{1}{2} \right) \nu_i \quad (2.3)$$

où $h = 6.626 \times 10^{-34}$ J.s est la constante de Planck, $c = 3 \times 10^8$ m.s⁻¹ est la vitesse de

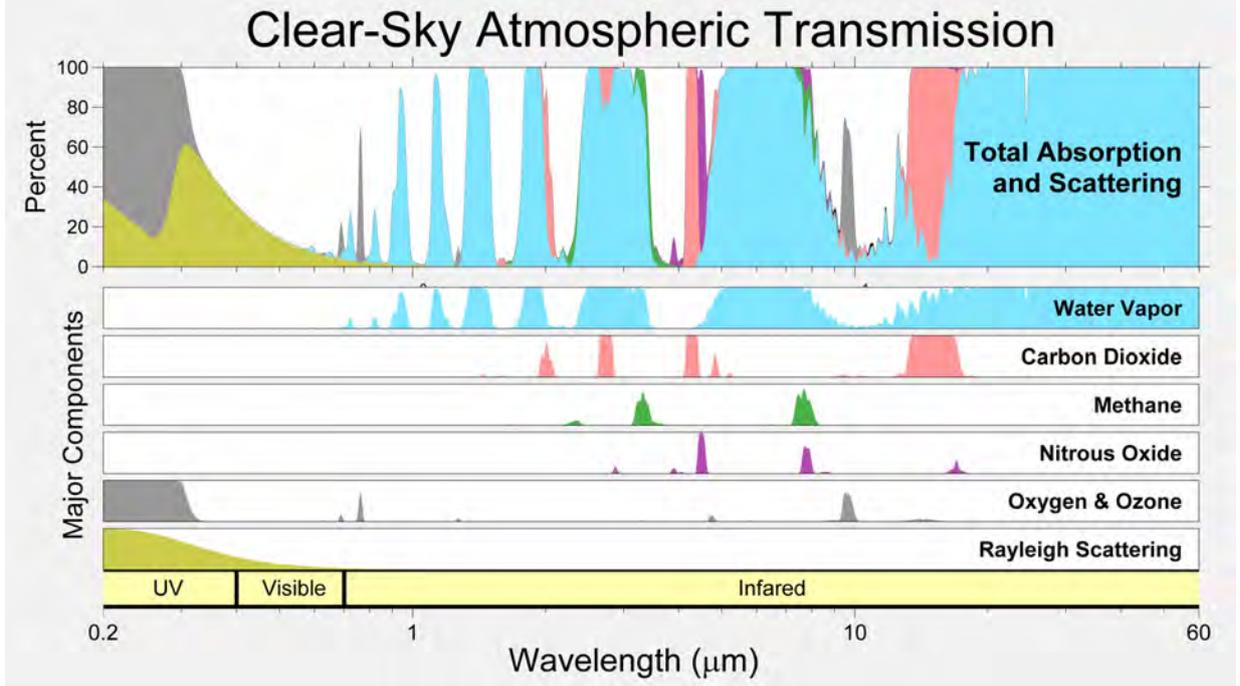


FIGURE 2.1 – Haut : coefficient d’extinction de l’atmosphère (absorption + diffusion) en fonction de la longueur d’onde (μm). Bas : Spectre d’absorption des principaux constituants de l’atmosphère (de haut en bas : H_2O , CO_2 , O_2 et O_3 , CH_4 , N_2O) et spectre de la diffusion Rayleigh en fonction de la longueur d’onde (μm) (Rodhe, 2019).

la lumière dans le vide, puis ν_i et ν_i correspondent respectivement au niveau vibrationnel quantique et au nombre d’onde associés au mode de vibration i .

Les molécules soumises à un mouvement de rotation possèdent en général 3 axes de rotations associés à leur moment d’inertie I_A , I_B et I_C . Leur énergie rotationnelle varie selon leur linéarité ou non-linéarité. Dans le cas où la molécule est linéaire, comme le CO_2 ou le N_2O , l’énergie rotationnelle E_r est :

$$E_r = hcBJ(J + 1) \quad (2.4)$$

avec B une constante inversement proportionnelle au moment d’inertie I_B de la molécule exprimée en cm^{-1} et J le niveau quantique rotationnel associé au moment angulaire total de celle-ci. Dans le cas où la molécule est non-linéaire, comme H_2O ou le CH_4 , cette énergie rotationnelle devient, seulement lorsque cette molécule possède un axe de symétrie :

$$E_r = hc(BJ(J + 1) + (A - B)K^2) \quad (2.5)$$

2.1. Interaction rayonnement-matière dans l'atmosphère

où K est un autre niveau quantique rotationnel associé au moment angulaire de l'axe de la molécule avec $K \leq J$ et A la constante inversement proportionnelle au moment d'inertie I_A de la molécule exprimée en cm^{-1} .

Dans le domaine IR, les raies d'absorption ou d'émission relevées sur un spectre sont les résultats de transition entre deux niveaux d'énergie, dont les règles sont :

$$\Delta v_i = \pm 1, \Delta J = \begin{cases} 0 \\ \pm 1 \end{cases} \text{ et } \Delta K = 0 \quad (2.6)$$

La figure 2.2 permet de visualiser ces différentes transitions d'énergie rovibrationnelles possibles.

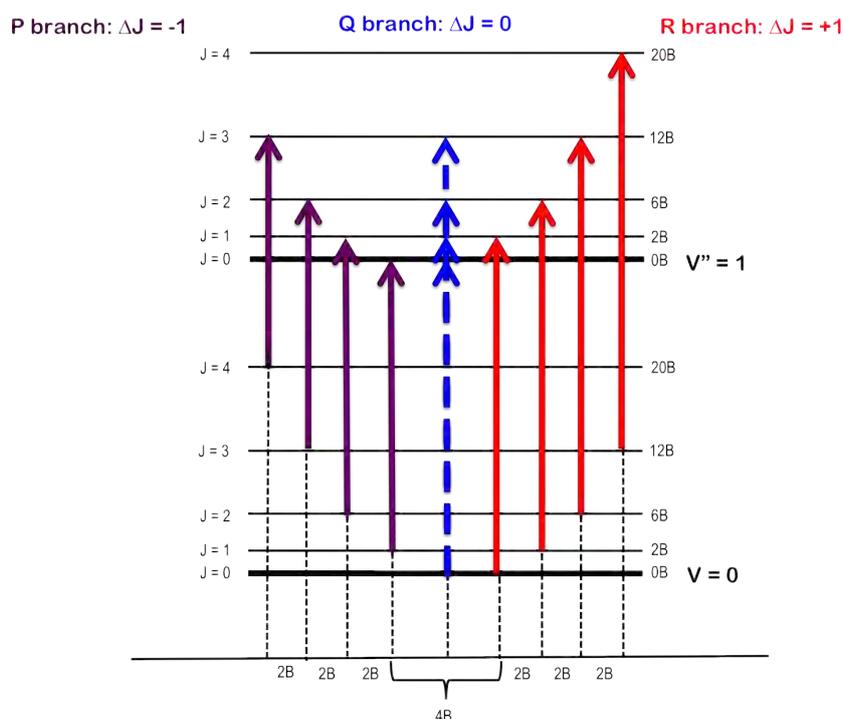


FIGURE 2.2 – Schéma des transitions rovibrationnelles en fonction des branches P ($\Delta J = -1$, en violet), Q ($\Delta J = 0$, en bleu) et R ($\Delta J = 1$, en rouge). Source : chem.libretexts.org

Enfin, la quantité de rayonnement absorbé par une molécule dépend, non seulement de la densité de molécule, mais aussi de la forme des raies spectrales décrites en fonction de trois types d'élargissement :

- L'élargissement de la raie lié au principe d'incertitude d'Heisenberg. Durant le temps

d'excitation Δt de la molécule, l'énergie associée à cette excitation présente une incertitude :

$$\Delta E = \frac{\hbar}{\Delta t} = hc\Delta\nu_0$$

où $\Delta\nu_0$ représente l'incertitude sur le nombre d'onde de la transition (exprimée en cm^{-1}).

- L'élargissement Doppler, lié comme son nom l'indique à l'effet Doppler entre la vitesse de l'observateur et des molécules observées, s'écrit sous la forme d'une fonction gaussienne telle que :

$$g_D(\nu - \nu_0) = \frac{1}{\alpha_D\sqrt{\pi}} e^{-\frac{(\nu-\nu_0)^2}{\alpha_D^2}} \quad (2.7)$$

où

$$\alpha_D = \frac{\nu_0}{c} \sqrt{\frac{2kT}{m}}$$

est la largeur à mi-hauteur et m la masse de la molécule.

- L'élargissement collisionnel, liée à la collision entre les molécules, notamment dans la troposphère, représenté sous la forme lorentzienne :

$$g_L(\nu - \nu_0) = \frac{\alpha_L}{\pi [(\nu - \nu_0)^2 + \alpha_L^2]} \quad (2.8)$$

avec

$$\alpha_L = \alpha_{L,0} \frac{P}{P_0} \left(\frac{T_0}{T}\right)^n$$

représente la largeur à mi-hauteur dépendant de la température T , de la pression P durant la collision à une température et pression de référence respectivement T_0 et P_0 , et n un indice variant selon la molécule entre 0.3 et 1. La forme de raie de type Voigt représente le couplage des élargissements Doppler et collisionnels, dont le résultat est la convolution des deux phénomènes sur l'ensemble du spectre :

$$g_V(\nu - \nu_0) = \int_0^\infty g_D(\nu - \nu') g_L(\nu' - \nu_0) d\nu' \quad (2.9)$$

À partir de ces formes de raies spectrales, on peut en déduire la section efficace d'absorption $k^{abs}(\nu)$:

$$k^{abs}(\nu) = Sg(\nu - \nu_0) \quad (2.10)$$

où S représente l'intensité de la raie (cm.molécule^{-1}) et $g(\nu - \nu_0)$ est la forme de la raie.

2.1. Interaction rayonnement-matière dans l'atmosphère

On obtient finalement le coefficient d'absorption moléculaire :

$$\sigma^{abs}(\nu) = k^{abs} N \quad (2.11)$$

où $\sigma^{abs}(\nu)$ est exprimé généralement en m^{-1} et N représente cette fois la densité moléculaire (molécule.m^{-3}).

2.1.2 L'émission

L'émission d'un photon par la matière se produit lorsque celle-ci est alimentée en énergie par un rayonnement à température T . La matière peut être considérée soit comme un corps noir, c'est-à-dire qu'elle absorbe l'intégralité du rayonnement qu'elle reçoit à sa surface, autrement dit son absorptivité spectrale α_λ est égale à 1, soit comme un corps gris, c'est-à-dire qu'elle n'absorbe qu'une partie du rayonnement qu'elle reçoit. Chacun de ces corps émet en revanche l'intégralité du rayonnement qu'il peut absorber, ce qui équivaut d'après la loi de Kirchhoff à écrire que son émissivité spectrale ϵ_λ correspond à α_λ , c'est-à-dire $\epsilon_\lambda = \alpha_\lambda$). Dans la plupart des modèles de transfert radiatif, la Terre et le Soleil sont considérés comme des corps noirs possédant une émissivité globale de 1, tandis que l'atmosphère est assimilée à un corps gris dont l'émissivité varie en fonction de sa composition. Pour un corps noir, la fonction de luminance spectrale $B_\lambda(T)$ est définie selon la loi de Planck comme :

$$B_\lambda(T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{\frac{hc}{\lambda k_B T}} - 1} \quad (2.12)$$

où B_λ est la luminance spectrale émise exprimée en $\text{W.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{nm}^{-1}$, λ est la longueur d'onde du photon émis en m ou nm, $k_B = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$ est la constante de Boltzmann et T la température du corps noir en Kelvin (K).

En intégrant la fonction de Planck sur l'ensemble du spectre électromagnétique ainsi que dans toutes les directions, on obtient la loi de Stefan-Boltzmann qui définit l'émittance $M(T)$ d'un corps noir désignant le flux radiatif émis par unité de surface :

$$M(T) = \sigma T^4 \quad (2.13)$$

où M est l'émittance du corps noir en W.m^{-2} et $\sigma = 5.67 \times 10^{-8} \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$ désigne la constante de Stefan.

Enfin, il est possible de déterminer la valeur de la longueur d'onde λ_{max} où le rayonnement émis est maximum en utilisant la loi de Wien, que l'on obtient en dérivant la fonction de Planck (eq. 2.12) en fonction de λ :

$$\lambda_{max}T = 2898 \mu\text{m.K} \quad (2.14)$$

2.1.3 La diffusion

La diffusion de la lumière se produit lorsque celle-ci interagit avec la matière comme les molécules, les aérosols (suie, poussière) ou les gouttes d'eau. Cette matière peut diffuser la lumière de plusieurs manières et de nombreux paramètres comme la taille, la forme (sphérique, cristalline, anarchique, etc.) et les propriétés physico-chimiques de la matière influencent cette diffusion. Plusieurs types de diffusion existent et dépendent essentiellement de la taille des particules et de la longueur d'onde du rayonnement (fig. 2.3). Pour une particule, le paramètre de taille x permet de déterminer le régime de diffusion en fonction de la longueur d'onde λ du rayonnement :

$$x = \frac{2\pi r}{\lambda} \quad (2.15)$$

où r représente le diamètre de la particule diffusante. Pour $x < 0.002$, la diffusion est négligeable. Les molécules présentes dans l'atmosphère sont d'ailleurs non-diffusantes dans la bande IR. Pour un paramètre de taille $x > 2000$, l'optique géométrique s'applique. Ce type de diffusion concerne particulièrement les particules de grosse taille dont le rayon dépasse $100 \mu\text{m}$.

2.1.3.1 La diffusion Rayleigh

La diffusion Rayleigh intervient lorsque le paramètre de taille des particules est compris entre 0.002 et 0.2. Dans l'atmosphère, les rayonnements UV-VIS sont davantage sensibles à ce régime de diffusion. La couleur bleue du ciel est d'ailleurs à l'origine de cette diffusion par les molécules. En effet, elles atténuent davantage le rayonnement à mesure que la longueur d'onde associée diminue. Ceci découle du fait que la diffusion Rayleigh soit inversement proportionnelle à λ^4 , comme le montre l'équation 2.16 qui définit l'intensité diffusée I par

2.1. Interaction rayonnement-matière dans l'atmosphère

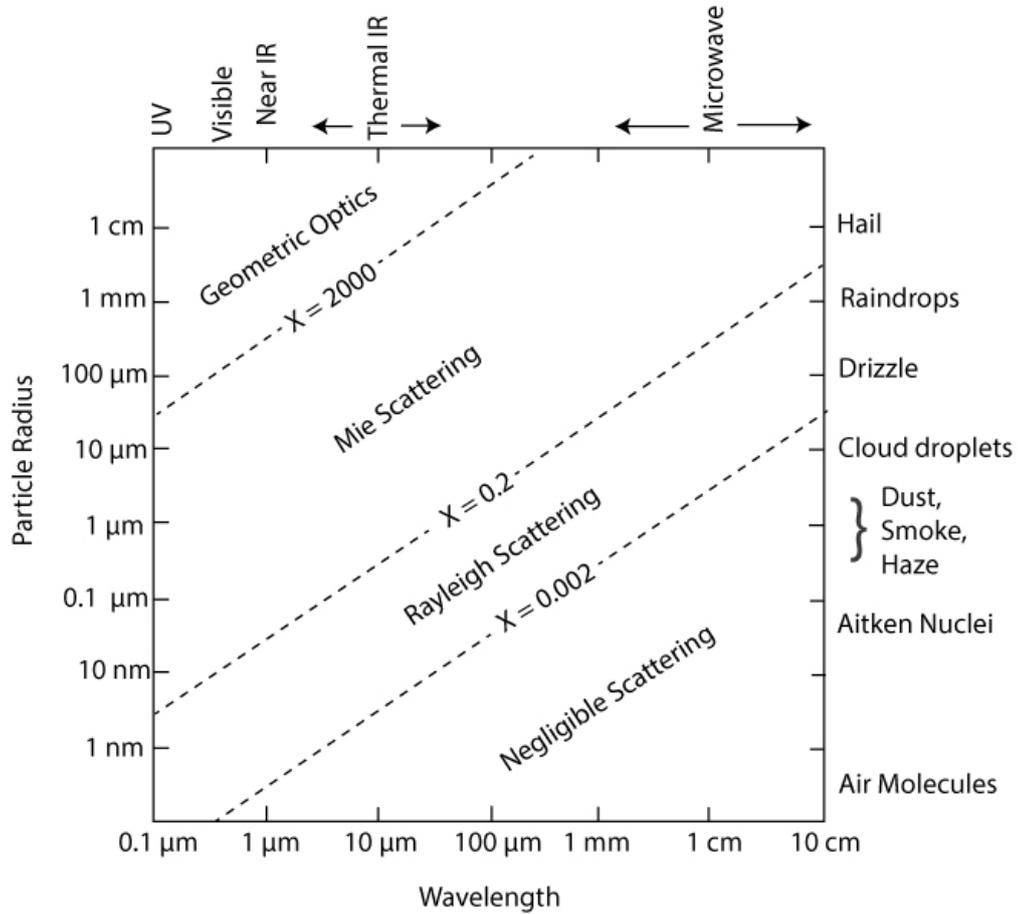


FIGURE 2.3 – Types de diffusion existants en fonction du rayon des particules et de la longueur d'onde du rayonnement diffus. Source : e-Education Institute

une molécule en fonction de l'angle de diffusion du photon Θ .

$$I = I_0 \frac{8\pi^4 \alpha^2}{\lambda^4 R^2} (1 + \cos^2 \Theta) = I_0 \frac{32\pi^4 \alpha^2}{3\lambda^4 R^2} p(\Theta) \quad (2.16)$$

avec I_0 l'intensité du rayonnement incident, R le rayon de la molécule et α la polarisabilité de la molécule. $p(\Theta)$ représente la fonction de phase de Rayleigh, c'est-à-dire la probabilité qu'un photon soit diffusé dans la direction Θ . Elle est définie comme :

$$p(\Theta) = \frac{3}{4} (1 + \cos^2 \Theta) \quad (2.17)$$

D'autres particules telles que les gouttelettes d'eau, les poussières ou les suies permettent la diffusion Rayleigh. Pour ce type de particules, la diffusion Rayleigh se produit dans les gammes spectrales infrarouge thermique (TIR) et micro-ondes.

2.1.3.2 La diffusion de Mie

La diffusion de Mie intervient dans le cas des particules sphériques lorsque la longueur d'onde du rayonnement incident est de l'ordre de grandeur de la taille de la particule, plus précisément lorsque le paramètre de taille est compris entre 0.2 et 2000. Il s'agit d'un phénomène plus général que la diffusion Rayleigh, faisant intervenir la section efficace de diffusion $s^{dif}(\lambda)$ des particules. Pour des molécules d'air, la section efficace de diffusion est :

$$s^{dif}(\lambda) = \frac{24\pi^3}{N^2\lambda^4} \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right) \quad (2.18)$$

où $s^{dif}(\lambda)$ est exprimé en m^2 et n est l'indice de réfraction de l'air. A l'instar de l'absorption pour les molécules, le coefficient de diffusion $\sigma^{dif}(\lambda)$ s'obtient en multipliant la section efficace de diffusion $s^{dif}(\lambda)$ par la densité moléculaire N :

$$\sigma^{dif}(\lambda) = s^{dif}(\lambda)N \quad (2.19)$$

Pour des plus grandes particules, les sections efficaces de diffusion sont obtenues à partir de méthodes de calculs complexes intégrées dans des modèles de transfert radiatif. Les particules considérées dans la diffusion de Mie sont généralement des aérosols.

2.1.4 Équation de transfert radiatif

À partir des phénomènes d'absorption, d'émission et de diffusion définis précédemment, il est possible de déterminer la quantité de rayonnement en utilisant l'équation de transfert radiatif. Une luminance, également appelée radiance (que l'on nommera ainsi dans la suite de la thèse) monochromatique dans un élément de volume cylindrique, notée $dL_\lambda(l, \mathbf{s})$ axé sur \mathbf{s} et de longueur dl , est définie en fonction des termes d'extinction dL_λ^{ext} , dépendant de l'absorption et de la rétro-diffusion, d'émission dL_λ^{emis} et de diffusion vers l'avant dL_λ^{dif} ,

2.2. Bilan radiatif de la Terre

de la manière suivante :

$$\begin{aligned}
 dL_\lambda(l, \mathbf{s}) &= dL_\lambda^{ext} + dL_\lambda^{emis} + dL_\lambda^{dif} \\
 &= \underbrace{-\sigma_\lambda^{ext} L_\lambda(l, \mathbf{s}) dl}_{Extinction} + \underbrace{B_\lambda(T) \sigma_\lambda^{abs} dl}_{Émission} + \underbrace{\frac{\sigma_\lambda^{dif}}{4\pi} \left(\iint_{4\pi} \mathbf{p}(\mathbf{s}, \mathbf{s}_i) L_\lambda(l, \mathbf{s}_i) d\omega_i \right) dl}_{Diffusion} \quad (2.20)
 \end{aligned}$$

où $\sigma_\lambda^{ext} = \sigma_\lambda^{abs} + \sigma_\lambda^{dif}$ correspond au coefficient d'extinction, dont les termes σ_λ^{abs} et σ_λ^{dif} sont définis respectivement dans les équations 2.11 et 2.19, ainsi que $\mathbf{p}(\mathbf{s}, \mathbf{s}_i)$ qui décrit la fonction de phase d'un photon dans la direction \mathbf{s}_i et d'angle ω_i définie dans l'équation 2.17. La variable $\sigma_\lambda^{abs} dl$, présente dans le terme d'émission, équivaut à l'équilibre thermodynamique à l'élément d'émissivité monochromatique $d\epsilon_\lambda$.

2.2 Bilan radiatif de la Terre

L'énergie thermique issue des océans et des continents sur la Terre est fournie essentiellement par le Soleil, quand à peine 0.01% de cette énergie est produite par l'activité géothermique. Le Soleil, situé à 149.6 millions de kilomètres de la Terre, possède à sa surface visible (ou photosphère) une température de 5778 K. Comme expliqué dans la partie 2.1.2, il est assimilé à un corps noir, c'est-à-dire qu'il émet à l'équilibre thermodynamique un rayonnement électromagnétique équivalent au rayonnement qu'il absorbe. Autrement dit, il possède une émissivité globale égale à 1. L'énergie radiative libérée par un tel corps s'exprime par la loi de Planck (eq. 2.12).

L'irradiance totale maximum F_0 reçue sur la Terre par le Soleil est d'environ 1360 W.m⁻². Elle vaut en moyenne 340 W.m⁻². Cette valeur est obtenue en rapportant le flux émis sur le disque terrestre observé depuis le Soleil à l'ensemble de la sphère terrestre :

$$F_s = \frac{F_0 \times \pi R^2}{4\pi R^2} = \frac{F_0}{4}$$

où F_s et $R = 6371$ km représentent respectivement l'irradiance terrestre moyenne et le rayon moyen la Terre.

La Terre est, tout comme le Soleil, assimilée à un corps noir, dont son émittance s'exprime selon la loi de Stéphan-Boltzmann (eq. 2.13). Elle rayonne à une température

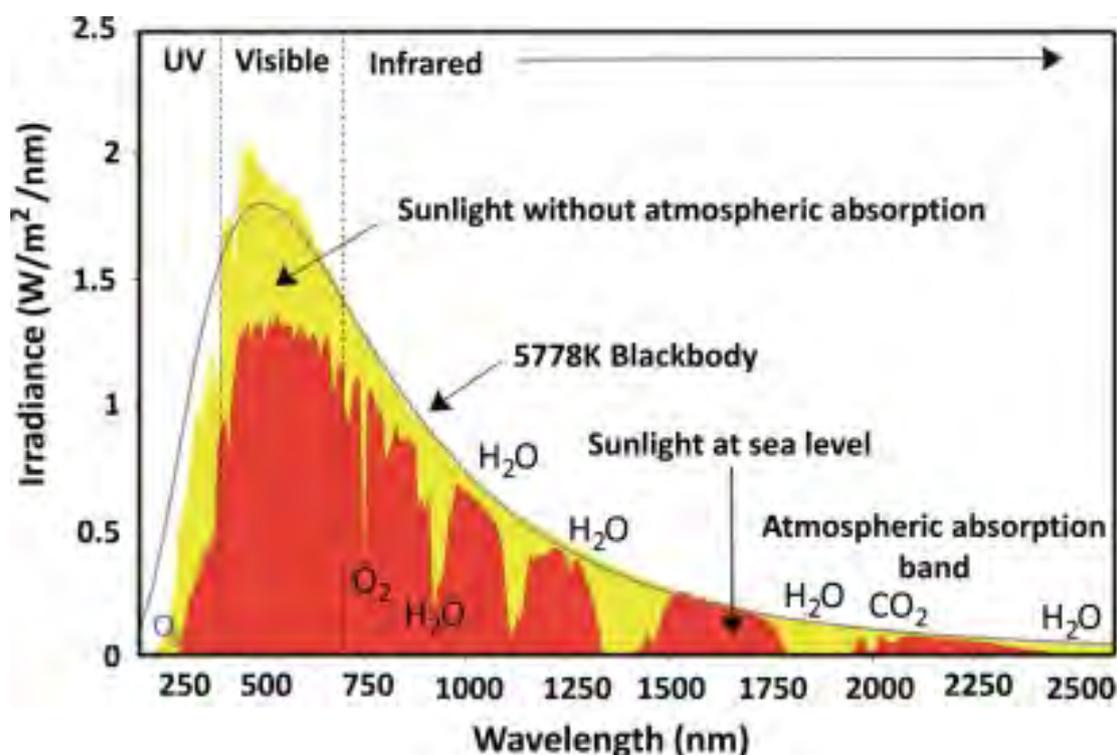


FIGURE 2.4 – Irradiance spectrale ($\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{nm}^{-1}$) du Soleil reçue au sommet de l’atmosphère (jaune) et à la surface (rouge) ainsi que l’irradiance spectrale reçue au sommet de l’atmosphère issue d’un corps noir d’une température de 5778 K, équivalente à celle du Soleil (courbe noire). Source : ScienceDirect.com

$T_s = 15^\circ\text{C}$. A une telle température, un corps noir rayonne dans la bande infrarouge thermique (TIR), avec un maximum autour de $10 \mu\text{m}$, valeur retrouvée par la loi de Wien (eq. 2.14). Le spectre d’irradiance solaire reçu à la surface de la Terre est montré en figure 2.4. Les raies d’absorption des molécules présentes dans l’atmosphère telles que O_2 et H_2O dans le visible (VIS) et le proche infrarouge (NIR) ainsi que O_3 dans l’ultra-violet (UV) ou encore CO_2 dans le NIR sont d’ailleurs visibles sur ce spectre. L’atténuation du rayonnement solaire observée dans la bande visible est principalement due à la diffusion Rayleigh (partie 2.1.3.1). Cette diffusion est causée par les molécules présentes dans l’atmosphère (N_2 et O_2 notamment), qui possèdent une taille de l’ordre de 10 nanomètres. L’atténuation augmente en λ^4 en raison de la diffusion Rayleigh et explique le fait que les molécules diffusent davantage le rayonnement dans la bande UV-VIS.

Dû à ce processus de diffusion, l’atmosphère absorbe et diffuse le rayonnement solaire incident à une quantité non-négligeable de $79 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ (fig. 2.5). En outre, les nuages présents dans l’atmosphère ainsi que les molécules réfléchissent ce même rayonnement. Les

2.2. Bilan radiatif de la Terre

nuages agissent comme une surface réfléchissante tandis que les molécules rétro-diffusent par diffusion Rayleigh vers le sommet de l'atmosphère. Selon le type de nuage, son albédo, correspondant au rapport entre le rayonnement réfléchi et incident, varie entre 0.1 et 0.9. Au total, ces deux phénomènes sont responsables de la réflexion de 100 W.m^{-2} de rayonnement solaire incident (fig. 2.5). Le rayonnement solaire incident qui arrive à la surface atteint finalement 185 W.m^{-2} (fig. 2.5). Il est ensuite soit réfléchi dans l'atmosphère, soit absorbé. La réflexion à la surface est estimée à 24 W.m^{-2} , soit 13% du rayonnement incident, tandis que l'absorption est de 161 W.m^{-2} , ce qui représente les 87% restants (fig. 2.5). Or, la seule absorption de rayonnement solaire ne permet pas d'expliquer la température à sa surface qui est d'environ 15°C . L'effet de serre, dont un schéma simplifié est détaillé en 2.3, contribue à l'augmentation de la température à la surface de la Terre de 34°C , passant donc de -19°C à 15°C . Le rayonnement infrarouge émis par la Terre est en réalité absorbé en grande partie par les molécules contenues dans l'atmosphère. Ces molécules telles que H_2O , CO_2 , CH_4 ou N_2O , vont ré-émettre une partie de ce rayonnement infrarouge à la surface. L'autre partie est renvoyée vers le sommet de l'atmosphère. D'autres phénomènes

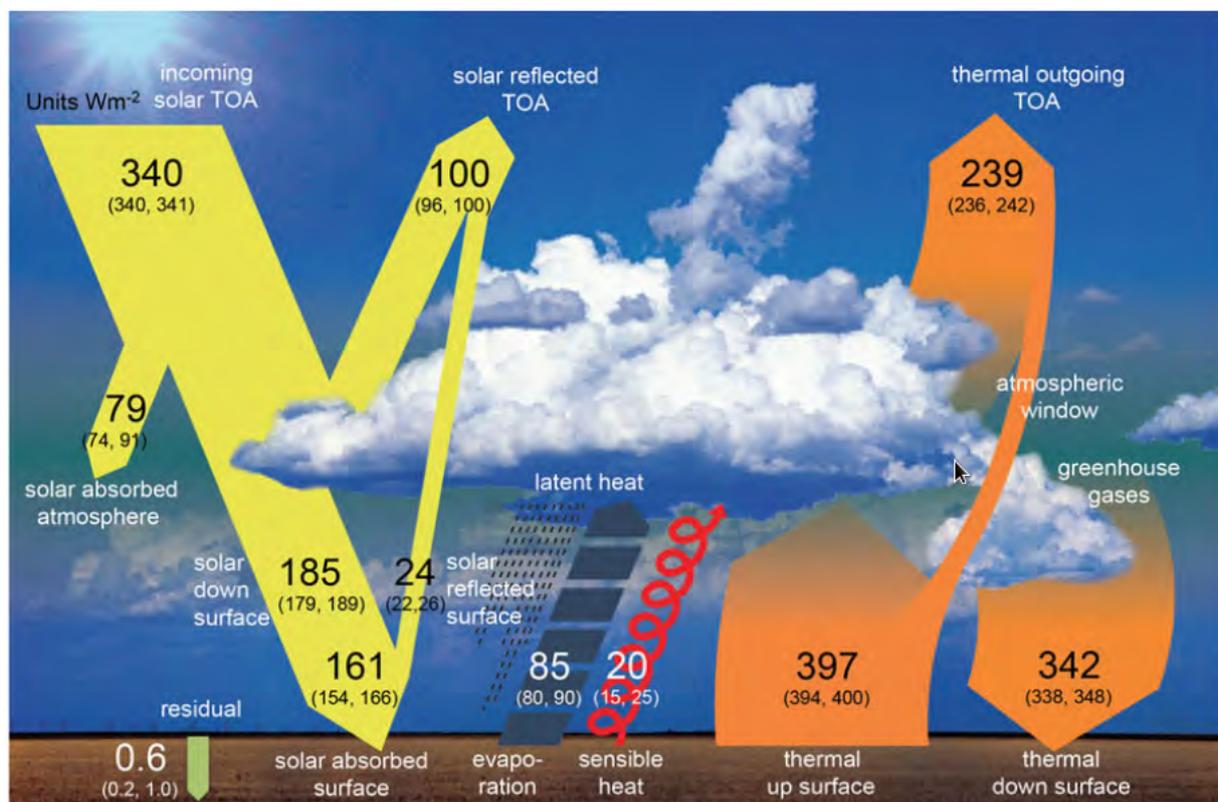


FIGURE 2.5 – Schéma du bilan radiatif de la Terre. Tiré de Wild et al. (2013).

produisent de l'énergie à la surface et contribuent à augmenter l'effet de serre. La vapeur d'eau issue de l'évaporation du sol apporte à l'atmosphère 85 W.m^{-2} de flux énergétique contenue sous forme de chaleur latente (fig. 2.5). De plus, 20 W.m^{-2} de chaleur sensible sont émis à la surface et apportent de l'énergie à l'atmosphère (fig. 2.5). Au total le bilan d'énergie émis à la surface s'élève à 503 W.m^{-2} , dont 397 W.m^{-2} proviennent du rayonnement infrarouge de la Terre (fig. 2.5). L'atmosphère ré-émet à la surface 342 W.m^{-2} , correspondant à l'effet de serre et 239 W.m^{-2} , provenant à la fois de la Terre et de l'atmosphère s'échappent vers l'espace (fig. 2.5). C'est cette dernière quantité qui est mesurée par des observations spatiales et qui permet, une fois analysée de remonter aux concentrations de gaz à effet de serre dans l'atmosphère.

2.3 Modèle d'effet de serre à une couche d'atmosphère

Selon le modèle que l'on choisit, la quantité de rayonnement ré-émis à la surface est différente. Dans la configuration d'une atmosphère à une couche, dont l'effet de serre est schématisé en figure 2.6, le rayonnement émis par la Terre ne sera absorbé et ré-émis qu'une seule fois à la surface par l'atmosphère. L'atmosphère est considérée comme un corps gris,

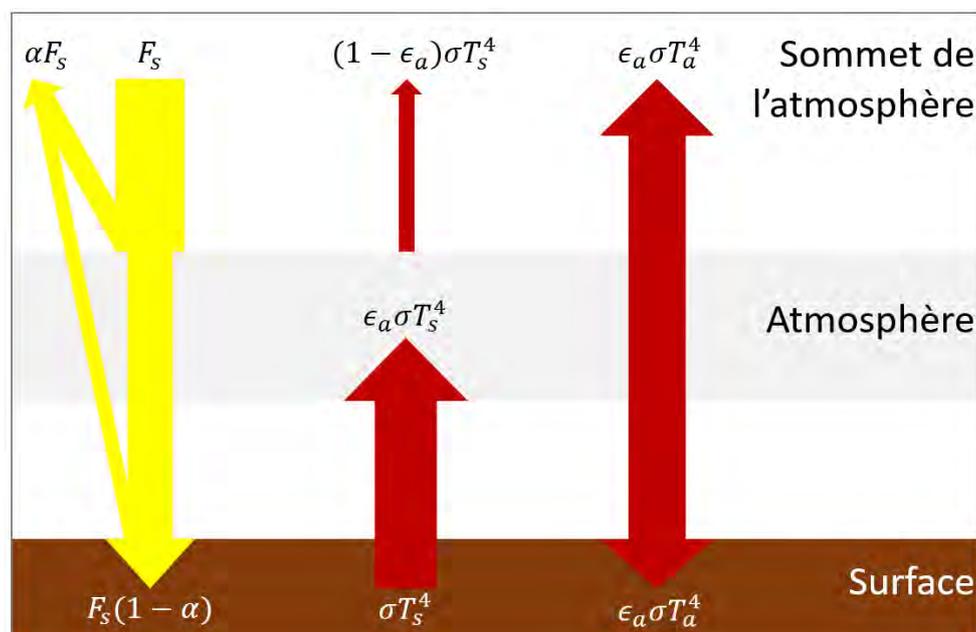


FIGURE 2.6 – Schéma du modèle d'effet de serre avec l'atmosphère représentée par une couche.

2.3. Modèle d'effet de serre à une couche d'atmosphère

c'est-à-dire qu'il ne va absorber qu'une partie du rayonnement infrarouge émis par la Terre. La loi du rayonnement de Kirchhoff dit qu'à l'équilibre thermodynamique, l'absorptivité, autrement dit la capacité d'un corps à absorber un rayonnement, est équivalente à l'émissivité :

$$a_a = \epsilon_a$$

avec a_a l'absorptivité de l'atmosphère et ϵ_a son émissivité. De plus, dans le cas où l'atmosphère est considérée comme un milieu isotrope, c'est à dire que la quantité de rayonnement infrarouge émis sera identique dans toutes les directions, la moitié du rayonnement infrarouge émis par l'atmosphère le sera vers la Terre. En reconsidérant l'effet de serre provoqué par l'atmosphère, le bilan radiatif à la surface est donc :

$$F_s(1 - \alpha) + \epsilon_a \sigma T_a^4 = \sigma T_s^4 \quad (2.21)$$

où $\alpha = 0.30$ est l'albédo global de la Terre et T_a puis T_s sont respectivement la température de l'atmosphère et de la Terre. Dans l'atmosphère, une partie du rayonnement infrarouge émis par la Terre est absorbé. Ce rayonnement est ré-émis à la fois vers l'espace et la surface, dont les rayonnements respectifs sont notés $\epsilon_a \sigma T_a^4(\uparrow)$ et $\epsilon_a \sigma T_a^4(\downarrow)$. Le bilan radiatif dans l'atmosphère s'écrit donc :

$$\epsilon_a \sigma T_s^4 = \epsilon_a \sigma T_a^4(\downarrow) + \epsilon_a \sigma T_a^4(\uparrow) = 2\epsilon_a \sigma T_a^4 \quad (2.22)$$

Au sommet de l'atmosphère, on retrouve la partie du rayonnement terrestre non absorbé par l'atmosphère ainsi que la moitié du rayonnement émis par l'atmosphère. Le bilan radiatif est donc :

$$F_s(1 - \alpha) = \epsilon_a \sigma T_a^4 + (1 - \epsilon_a) \sigma T_s^4 \quad (2.23)$$

C'est donc une partie du rayonnement infrarouge émis par la surface de la Terre et par l'atmosphère, qui est observée par les instruments de télédétection en orbite autour de la Terre. En utilisant les équations du bilan radiatif 2.21 et 2.22, l'équation 2.24 permet d'obtenir pour un modèle d'atmosphère à une couche la température à la surface de la Terre en fonction de ϵ_a :

$$T_s = \left(\frac{S(1 - \alpha)}{\sigma(1 - \frac{\epsilon_a}{2})} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (2.24)$$

Avec une émissivité de l'atmosphère d'une valeur proche de 0.8, la température de la Terre obtenue à partir de l'équation 2.24 est d'environ 16°C, ce qui est assez proche de la valeur

de référence de 15°C.

2.4 Télédétection spatiale

2.4.1 Généralités

La télédétection spatiale constitue l'ensemble des techniques scientifiques permettant l'observation et la surveillance de la Terre dans son ensemble, regroupant la surface et l'atmosphère. Les premiers instruments sont apparus dans les années 1960 dans le cadre du programme spatial de la NASA TIROS (Television InfraRed Observation Satellite). Depuis, de nombreux instruments spatiaux sont utilisés non seulement pour observer la Terre, mais aussi pour observer d'autres sources de rayonnement observables depuis l'espace (planètes, étoiles, comètes, galaxies, etc.). La majorité des instruments est placée sur des satellites en orbite soit héliosynchrone, soit géostationnaire. Une orbite héliosynchrone désigne une orbite géocentrique dont l'angle entre le plan de l'orbite et la direction du Soleil est constant, ce qui signifie que le satellite passe au-dessus d'un point de la surface terrestre à la même heure solaire locale en phase ascendante (sud-nord) et descendante (nord-sud). Autrement dit, à chaque instant et pendant chaque phase, le point d'observation du satellite bénéficie du même éclairage solaire. Les satellites placés sur de telles orbites sont situés à une altitude comprise entre 200 et 1700 km, tournent autour de la Terre à une vitesse située entre 88 et 120 minutes par orbite, et ont une inclinaison orbitale comprise entre 96 et 103°, ce qui permet de couvrir un maximum de latitude terrestre. Une orbite géostationnaire désigne quant à elle une orbite géocentrique dont le plan passe par l'équateur (plan équatorial) et dont la vitesse de rotation du satellite autour de la Terre correspond à la période de rotation de la Terre. Ce qui signifie qu'un tel instrument est situé au-dessus d'un seul même point au niveau de l'équateur et ne permet donc pas une observation de la Terre à l'échelle globale. Sur cette orbite, les satellites sont situés à près de 36000 km d'altitude, ce qui provoque, en plus d'une couverture limitée, une diminution du signal reçu par rapport aux instruments situés sur des orbites héliosynchrones. Ces instruments peuvent également avoir plusieurs angles d'observations. Il en existe en général deux types. L'observation au nadir permet d'obtenir un signal sur l'ensemble de la verticale de l'atmosphère, tandis que l'observation au limbe correspond à une visée tangente à la surface de la Terre. De plus, deux types d'instruments spatiaux permettent la surveillance

2.4. Télédétection spatiale

de la Terre. Il s'agit des instruments actifs et des instruments passifs.

Dans le cas des instruments actifs comme les LIDARs (Light Detection And Ranging), le principe de mesure est similaire à l'écholocation utilisée par les RADARs (Radio Detection And Ranging). Un signal lumineux monochromatique est émis depuis l'instrument dans l'atmosphère et l'information qu'il reçoit en retour provient de la réflexion d'une partie du signal d'origine. Cette réflexion est l'effet de la rétro-diffusion du signal causée par les phénomènes de diffusion Rayleigh, Mie ou Raman qui est une diffusion inélastique correspondant au changement de longueur d'onde du rayonnement rétro-diffusé dû à un échange d'énergie entre la particule et le photon incident. Dans l'intérêt d'observer ces rétro-diffusions, le signal est émis dans la gamme UV-VIS. Certains LIDAR, appelés DIAL (Differential Absorption LIDAR) émettent même deux signaux monochromatiques à différentes longueur d'onde. L'un d'eux est absorbé par le constituant cible du LIDAR dans l'atmosphère, tandis que l'autre l'est plus faiblement. Ainsi, le rapport des intensités des deux signaux réfléchis par rapport à celles des deux signaux émis permet de déterminer la concentration du constituant souhaité. Les LIDAR permettent la mesure d'une grande quantité de paramètres atmosphériques telles que les données de vent, les données nuageuses, la concentration des aérosols, de la vapeur d'eau et de certains gaz, notamment O_3 .

Dans le cas des instruments à télédétection passive tels que les spectromètres et les radiomètres, l'information reçue est fournie par le rayonnement électromagnétique provenant de la Terre, allant de l'UV-VIS jusque dans la gamme micro-onde. La mesure du rayonnement électromagnétique permet, par le biais de différentes méthodes numériques basées sur l'intelligence artificielle ou sur l'inversion de données, de remonter à une grande quantité d'information. Il peut s'agir de données de température, de concentrations de composés atmosphériques tels que la vapeur d'eau, les gaz traces (CO_2 , CH_4 , N_2O , etc.) ou encore les aérosols, ainsi que des paramètres de surface comme l'albédo ou l'émissivité. Il existe de nombreuses techniques de mesure par télédétection passive. Nous détaillerons dans la section suivante celle qui est utilisée par les instruments nous fournissant les mesures dont nous disposons dans le cadre de cette thèse : la technique de mesure par interféromètre de Michelson, appelée également spectroscopie à transformée de Fourier, méthode largement utilisée en spectroscopie IR.

2.4.2 Spectroscopie à transformée de Fourier

Dans la gamme IR, les spectromètres à transformée de Fourier (FTIR) utilisent la technique de mesure basée sur l'interféromètre de Michelson pour d'obtenir des spectres de rayonnement. Le rayonnement polychromatique reçu par le spectromètre arrive sur une lame séparatrice semi-réfléchissante inclinée à 45° , séparant ainsi le faisceau lumineux incident en deux faisceaux perpendiculaires d'intensité égale. L'un est réfléchi en direction d'un miroir $M1$ fixe à une distance d de la lame et l'autre est transmis en direction d'un miroir $M2$ mobile situé à une distance d' . Les faisceaux séparés par la lame séparatrice sont ensuite redirigés par réflexion vers celle-ci par les deux miroirs. Comme pour le faisceau lumineux incident, chacun des faisceaux divisés est soit transmis soit réfléchi par la lame séparatrice. La moitié du faisceau provenant du miroir $M1$ est transmis à l'arrière de la lame en direction d'un détecteur et la moitié du faisceau provenant du miroir $M2$ est réfléchi par la lame en direction de ce même détecteur. La différence de chemin optique entre les deux faisceaux δ , appelée différence de marche, liée à la différence entre d et d' , permet de créer des interférences entre les faisceaux issus de la lame séparatrice avant entrée dans le détecteur. Ce signal interféré correspond finalement à l'interférogramme qui représente la mesure de l'interféromètre.

Théoriquement et dans le cas où la différence de marche est contenue dans l'ensemble de l'espace des réels \mathcal{R} , autrement où le miroir mobile se déplace jusqu'à l'infini, le spectre total de la source $\mathcal{F}(\nu)$ s'obtient par transformée de Fourier de l'intensité de l'interférogramme :

$$\mathcal{F}(\nu) = TF(I(\delta)) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\delta)e^{-i2\pi\nu\delta} d\delta \quad (2.25)$$

Cependant, dans un espace où le déplacement du miroir mobile est fini et limité, par transformée de Fourier de l'intensité de l'interférogramme notée $I(\delta)$, on obtient le spectre de la source $B(\nu)$ en nombre d'onde dans la gamme spectrale $[\nu_{min}, \nu_{max}]$:

$$B(\nu) = \int_{-\frac{\Delta_{max}}{2}}^{+\frac{\Delta_{max}}{2}} I(\delta)e^{-i2\pi\nu\delta} d\delta \quad (2.26)$$

où $-\frac{\Delta_{max}}{2}$ et $+\frac{\Delta_{max}}{2}$ sont respectivement les maxima négatif et positif de la différence de marche correspondant respectivement à la distance minimum d'_{min} et maximum d'_{max} du miroir mobile à la lame séparatrice avec l'écart entre le minimum et le maximum de

2.4. Télédétection spatiale

la différence de marche Δ_{max} . Il est possible de simplifier l'équation 2.26 en utilisant la fonction porte, noté $\Pi(\delta)$ définie de la manière suivante :

$$\Pi(\delta) = \begin{cases} 1 & \text{pour } -\frac{\Delta_{max}}{2} \leq \delta \leq +\frac{\Delta_{max}}{2} \\ 0 & \text{ailleurs.} \end{cases}$$

afin d'obtenir :

$$B(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Pi(\delta) I(\delta) e^{-i2\pi\nu\delta} d\delta \quad (2.27)$$

L'équation 2.27 équivaut au produit de convolution de la transformée de Fourier (TF) de la fonction $\Pi(\delta)$, notée $f(\nu)$ par le spectre total de la source $\mathcal{F}(\nu)$:

$$B(\nu) = f(\nu) * \mathcal{F}(\nu) = TF^{-1} [TF(f(\nu)).TF(\mathcal{F}(\nu))] \quad (2.28)$$

avec $f(\nu)$, caractérisant en fait la fonction d'appareil de l'interféromètre définie ci-dessous :

$$f(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} \Pi(\delta) e^{-i2\pi\nu\delta} d\delta = \int_{-\frac{\Delta_{max}}{2}}^{+\frac{\Delta_{max}}{2}} \Pi(\delta) e^{-i2\pi\nu\delta} d\delta = \Delta_{max} \cdot sinc(\pi\nu\Delta_{max})$$

La résolution spectrale $\delta\nu$ de l'instrument est généralement donnée par la largeur à mi-hauteur $FWHM$ (Full Width at Half Maximum) de la fonction $f(\nu)$, c'est-à-dire : $\delta\nu = FWHM$. De plus, le bruit associé à un spectromètre à transformée de Fourier, appelé communément NEDT (Noise Equivalent Differential Temperature) exprimé généralement en température de brillance, correspond spectralement à la détection de la plus faible variation de signal sur le spectre de la source. Plus le bruit est élevé et plus le signal doit être fort pour obtenir de l'information. Cette information est définie d'ailleurs comme le rapport signal sur bruit, appelé SNR (Signal to Noise Ratio) :

$$SNR(\nu) = \frac{B(\nu)}{NEDT(\nu)} \quad (2.29)$$

où le SNR est exprimé soit en température de brillance (K) soit en radiance ($W \cdot m^{-2} \cdot sr^{-1} \cdot (cm^{-1})^{-1}$). Un rapport signal sur bruit élevé permet d'obtenir un maximum d'information de la part du spectre.

Chapitre 3

L'outil d'inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

Sommaire

3.1	L'instrument IASI	68
3.2	RTTOV	74
3.3	Inversion de données	79
3.3.1	Méthode de Levenberg-Marquardt	80
3.3.2	Sensibilité verticale	82
3.3.3	Analyse des erreurs	84
3.4	TN₂OR	85
3.4.1	Données d'entrée	86
3.4.2	Calibration des radiances	91
3.5	TN₂OR v1.7 vs TN₂OR v2.0	94
3.5.1	Radiances	96
3.5.2	Jeu de données "HIPPO/NOAA"	97

Le chapitre 3 est consacré au développement d'un outil d'inversion, appelé TN₂OR (Toulouse N₂O Retrieval), comprenant le modèle de transfert radiatif rapide RTTOV, couplé à la méthode d'estimation optimale de Levenberg-Marquardt. Cet outil est spécifique à la restitution du N₂O obtenu à partir des mesures spatiales de l'instrument IASI installé sur

Chapitre 3. L'outil d'inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

la plateforme Metop-A. Au cours de cette thèse, deux versions de TN₂OR ont été évaluées. Au cours de ce chapitre, nous détaillons l'instrument IASI ainsi que l'ensemble des composants constituant TN₂OR, à savoir RTTOV et la méthode de Levenberg-Marquardt. Nous décrivons également les données d'entrée utilisées lors des restitutions, puis la méthode de correction, dans TN₂OR, des radiances spectrales calculées par RTTOV. Au cours de cette thèse, deux versions majeures de TN₂OR ont été produites. Nous comparons donc, pour finir, les résultats d'évaluation des restitutions de N₂O obtenus avec les deux versions de TN₂OR : TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0.

3.1 L'instrument IASI

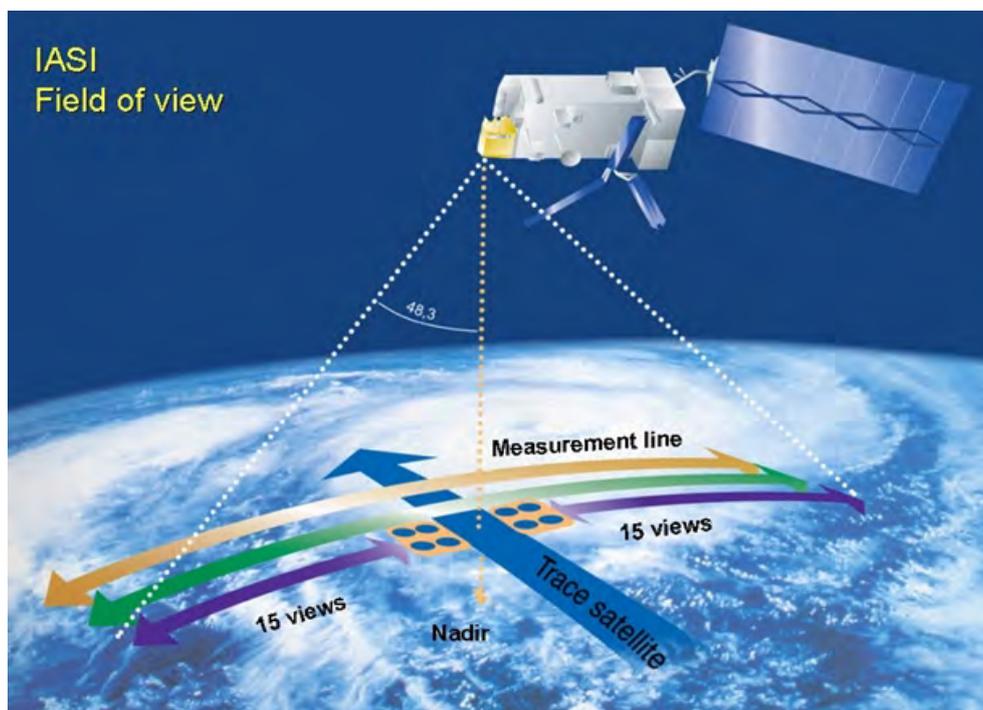


FIGURE 3.1 – Champ de vision de l'instrument IASI. Source : eumetsat.int

IASI (Infrared Atmospheric Sounder Interferometer) est un interféromètre de Michelson composé d'un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier. Le spectromètre est développé par le Centre national d'études spatiales (CNES) en collaboration avec l'agence européenne EUMETSAT. Cette dernière fournit les mesures de IASI de niveau L1C, correspondant aux radiances calibrées utilisées dans le cadre de cette thèse. Il est embarqué

3.1. L'instrument IASI

sur trois plateformes satellitaires, Metop-A lancé en octobre 2006 et à l'arrêt depuis 2021, Metop-B en septembre 2012 et Metop-C en novembre 2018. Ces trois satellites, initialement prévus pour une durée de vie de 5 ans, sont placés sur orbite héliosynchrone à 817 km d'altitude et possèdent un angle d'inclinaison de 98.7° par rapport au plan équatorial. Les plateformes Metop effectuent un passage à 9h30 heure locale en phase descendante et 21h30 heure locale en phase ascendante. De plus, celles-ci tournent 14 fois autour de la Terre par jour. Leur période de révolution est d'environ 101 min. Au total, elles recouvrent la surface terrestre 2 fois par jour. IASI quant à lui, permet la mesure simultanée de quatre pixels disposés en matrice 2×2 , couvrant chacun une zone de mesure appelée champ de vision instantané que l'on note IFOV (Instantaneous Field Of View). La résolution spatiale des pixels varie de $12 \text{ km} \times 12 \text{ km}$ au nadir jusqu'à $39 \text{ km} \times 20 \text{ km}$ à l'extrémité d'une fauchée de $\pm 1100 \text{ km}$. Le balayage de IASI correspondant à la largeur de cette fauchée est de $\pm 48.3^\circ$. Il dispose également de 2×15 miroirs, chacun d'entre eux collectant le rayonnement provenant d'une zone effective de la fauchée appelée champ de vision élémentaire que l'on note EFOV (Elementary Field Of View). Le temps d'acquisition d'un interférogramme pour chaque pixel est de 151 ms. Toutes les 216 ms ($8/37 \text{ s}$), de l'extrémité gauche à l'extrémité droite de la fauchée, IASI effectue un changement d'EFOV, se place aux positions d'analyse correspondant à chacun des miroirs et procède à l'acquisition d'un signal pour chaque EFOV. Le temps de mesure sur l'ensemble de la fauchée dure 6.486 s et est suivi durant 1.514 s de deux étapes de calibration et d'un temps de repos, afin d'atteindre 8 secondes, dans le but d'être synchronisé avec les instruments ATOVS (Advanced TIROS Operational Vertical Sounder) placés sur les plateformes Metop que sont AMSU (Advanced Microwave Sounding Unit) et MHS (Microwave Humidity Sounder). Les calibrations faites à partir des mesures d'interférogramme de l'espace "froid" et d'un corps noir interne à IASI permettent d'ajuster les bruits de fonds des signaux des EFOV. Au final, 4×30 pixels sont donc mesurés toutes les 8 secondes sur l'ensemble de la fauchée.

Chacune de ces mesures passe par des chaînes d'acquisition et de traitement dont certaines étapes sont effectuées à bord de Metop, donnant le niveau L0. Les spectres du niveau L0 sont ensuite post-traités et recalibrés à l'aide des mesures radiométriques de l'instrument AVHRR (Advanced Very High Resolution Radiometer), correspondant au niveau L1A. Un ré-échantillonnage spectral est ensuite effectué, fournissant des mesures à une résolution spectrale de 0.5 cm^{-1} de moyenne tous les 0.25 cm^{-1} , représentant ainsi des spectres de niveau L1B. Le spectre de mesure contient donc 8461 échantillons spectraux. La dernière étape de traitement permet d'obtenir les données L1C transmises par EUMETSAT, don-

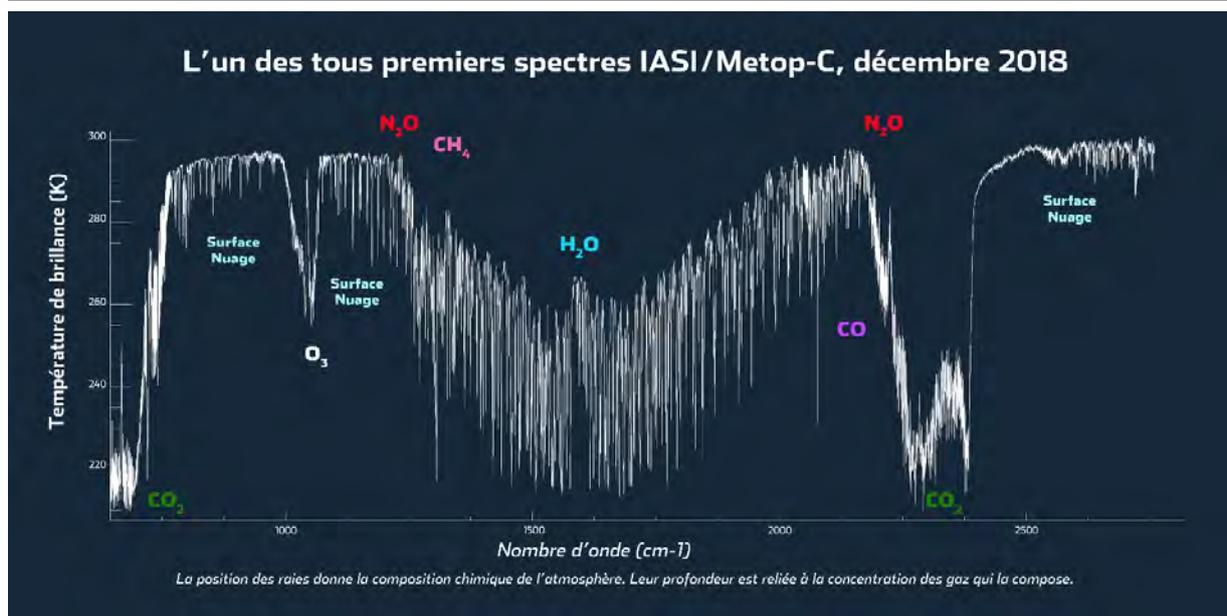


FIGURE 3.2 – Illustration d'un spectre de température de brillance (K) en fonction du nombre d'onde (cm⁻¹) mesuré par IASI sur Metop-C en décembre 2018. Source : cnes.fr

nant un spectre illustré sur la figure 3.2. Elle demande une étape d'apodisation, autrement dit un lissage du signal afin que celui-ci soit observable sur une durée fini, ainsi qu'une analyse plus précise des données de radiances de l'instrument d'AVHRR sur les IFOV de IASI (Blumstein et al., 2004). Un schéma des étapes de traitement des mesures IASI est montré en figure 3.3.

La gamme spectrale de IASI, recouvrant le NIR et le TIR, est séparée en trois fenêtres spectrales, ayant chacune des objectifs de mesures particuliers :

- La bande spectrale B1 de IASI située dans l'intervalle 645-1210 cm⁻¹ (15.5-8.26 μm) permet d'obtenir de l'information sur la surface, les nuages, le CO₂ ainsi que sur O₃.
- La bande B2 comprise entre 1210 et 2000 cm⁻¹ (8.26-5.0 μm) fournit de l'information sur H₂O, le CH₄ et le N₂O.
- La bande B3 comprise dans l'intervalle du spectre 2000-2760 cm⁻¹ (5.0-3.6 μm) permet de restituer le CO, le N₂O, le CH₄ ainsi que les propriétés de surface et de l'information sur les nuages.

Les raies d'absorption de chacune de ces molécules ainsi que les raies d'intérêt pour certains paramètres atmosphériques sont d'ailleurs indiquées sur la figure 3.2. La température peut

3.1. L'instrument IASI

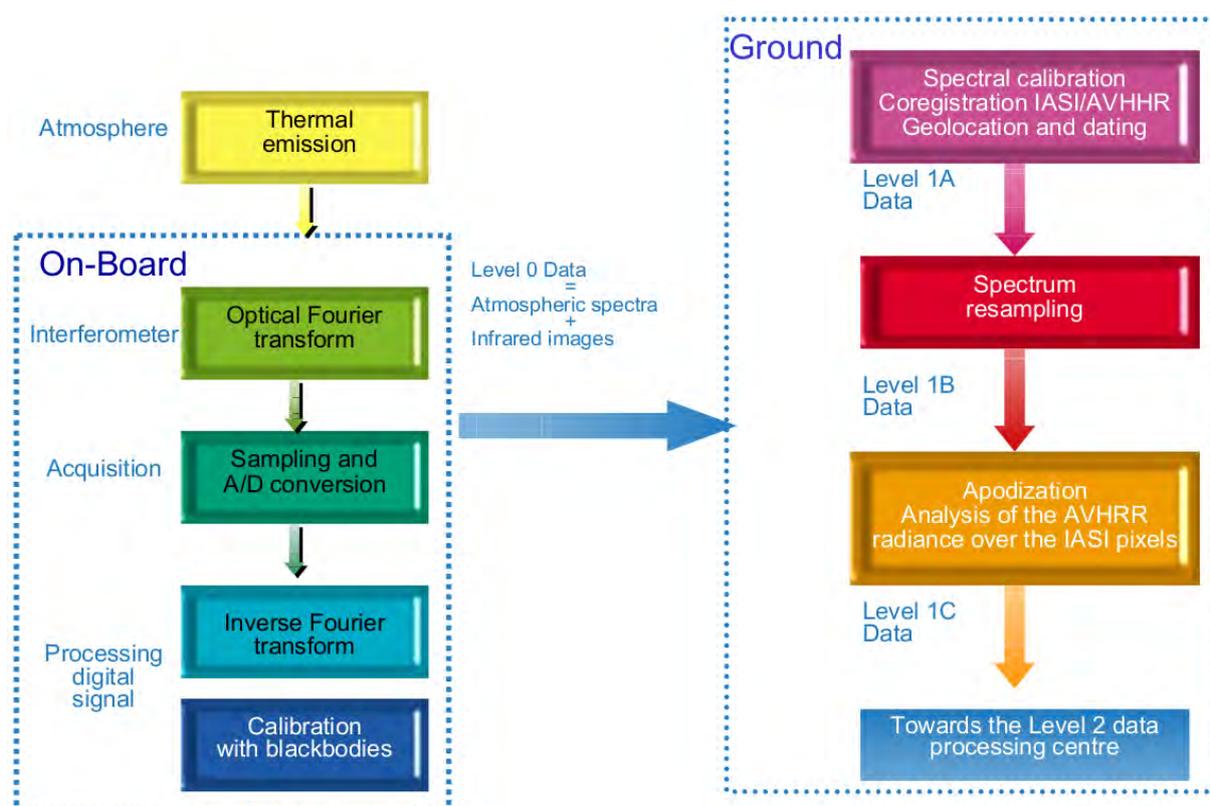


FIGURE 3.3 – Schéma de la chaîne de traitement des données IASI. Tiré de Blumstein et al. (2004).

généralement être restituée en utilisant l'ensemble du spectre. D'autres molécules absorbantes dans la bande spectrale de IASI peuvent être également étudiées, ainsi que certains aérosols, tels que les poussières désertiques, les cristaux de glace ainsi que les cendres volcaniques (Clerbaux et al., 2009). L'ensemble des caractéristiques instrumentales de IASI est synthétisé dans le tableau 3.1.

Le bruit de IASI est quant à lui indiqué en figure 3.4. Comme le montre l'équation 2.29, plus ce bruit est faible et plus le rapport signal sur bruit est important. On peut croire si on observe le bruit en terme de radiance, qu'il est plus faible au fur et à mesure que l'on atteint la bande NIR. Cependant, le signal du spectre d'une source infrarouge s'affaiblit lorsqu'on s'éloigne du TIR. Il est donc plus judicieux d'étudier le bruit équivalent en différence de température que l'on note $Ne\Delta T$, qui prend en compte l'intensité d'un corps noir à une température de référence (ici 280 K). Pour passer d'un bruit à l'autre, il suffit d'utiliser la fonction de Planck (eq. 2.12). Tout d'abord, dans la bande B1 de IASI comprise dans l'intervalle $645-1210\text{ cm}^{-1}$, la valeur moyenne du bruit est située autour de 0.2 K. Ensuite,

Chapitre 3. L’outil d’inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

TABLE 3.1 – Caractéristiques instrumentales de IASI, (EUMETSAT, IASI, 2019).

Paramètres	Valeurs
Altitude	819 km
Angle d’inclinaison par rapport au plan équatorial	98.7°
Période de révolution autour de la Terre	101 min
Taille de la fauchée	±1100 km
Résolution spatiale des IFOV	12 km×12 km au nadir 39 km×20 km au bord de la fauchée
Nombre de scans de la Terre (EFOV) par fauchée	30
Temps de scan	151 ms
Fréquence des scans	216 ms (8/37 s)
Temps de mesure d’une fauchée	8 s
Nombre de mesures sur une fauchée	120
Domaine spectral	645-2760 cm ⁻¹ (15.5-3.6 μm) B1 : 645-1210 cm ⁻¹ (15.5-8.26 μm) B2 : 1210-2000 cm ⁻¹ (8.26-5.0 μm) B3 : 2000-2760 cm ⁻¹ (5.0-3.6 μm)
Résolution spectrale	0.5 cm ⁻¹
Échantillonnage spectral	0.25 cm ⁻¹
Nombre de canaux	8461

dans la bande B2 comprise entre 1210 et 2000 cm⁻¹, le bruit augmente quasi linéairement entre 1210 cm⁻¹, où il est le plus faible, avec une valeur de 0.1 K, et 1900 cm⁻¹ où il atteint 0.4 K. Puis il rediminue à 0.2 K à 2000 cm⁻¹. Enfin, dans la bande B3 située entre 2000 et 2760 cm⁻¹, le NeΔT augmente de manière exponentielle, atteignant au final 2.3 K. Le bruit minimum se situe donc au début de B2, dans la fenêtre 1210-1500 cm⁻¹. Dans le cadre des études sur la restitution du N₂O (chap. 4) et des sensibilités de MIN₂OS (chap. 5), on expliquera dans la suite de la thèse en quoi le choix de cette fenêtre spectrale est déterminante.

Opérationnel depuis 2008 sur Metop-A, IASI devrait toutefois être remplacé par son successeur dans les prochaines années. Initialement prévus pour 2021 pour le premier satellite, les lancements des plateformes nouvelles générations Metop-SG (Metop-Second Generation), c’est-à-dire Metop-SG-A1, Metop-SG-A2 et Metop-SG-A3 devraient être effectués en 2024, 2031 et 2038 avec à leur bord l’instrument spatial IASI-NG (IASI-New Generation).

3.1. L'instrument IASI

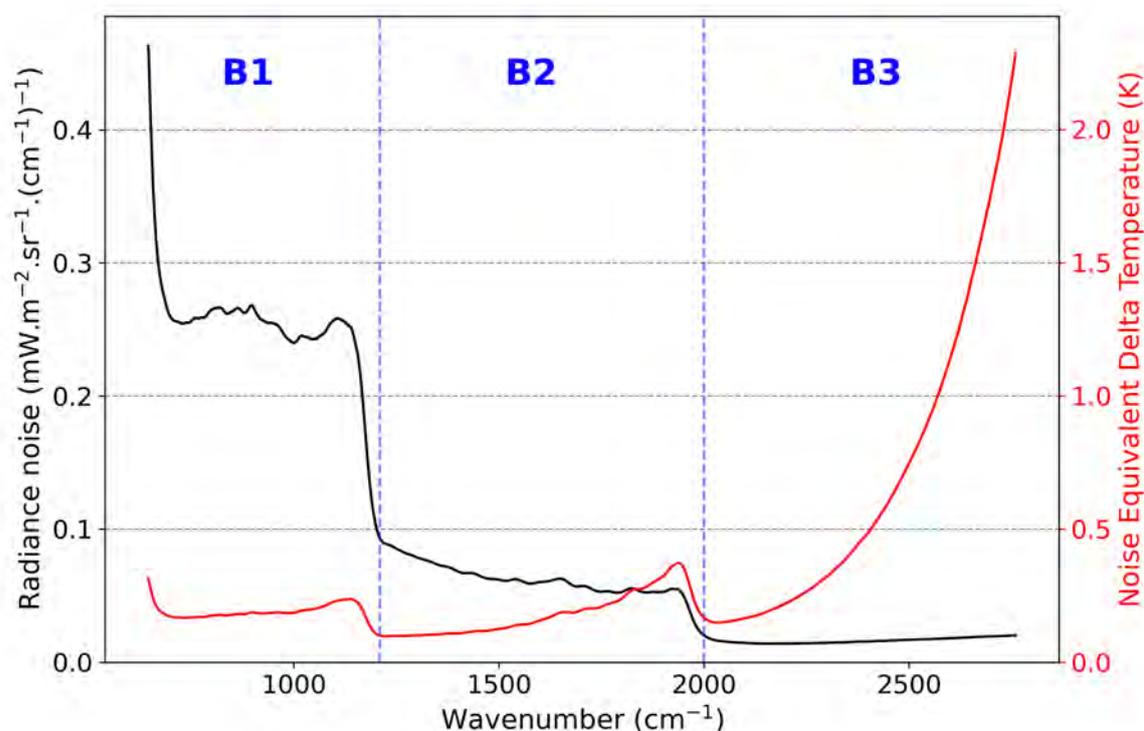


FIGURE 3.4 – Bruit de IASI fourni par le CNES et utilisé dans le cadre de cette thèse exprimé en radiance ($\text{mW.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{(cm}^{-1}\text{)}^{-1}$) (noir) et en Ne Δ T (Noise Equivalent Delta Temperature) pour une température de référence de 280 K (K) (rouge) en fonction du nombre d'onde (cm^{-1}). Les bandes IASI B1, B2 et B3 sont séparées par les traits représentés en pointillés bleus.

Des mesures seraient produites sur une durée minimum de 8.5 ans (cf. www.eumetsat.int). IASI-NG disposera d'une résolution spectrale et d'un échantillonnage spectral deux fois plus grands ainsi qu'un bruit spectral deux fois plus faible que celui de IASI. Il permettra par conséquent d'obtenir des informations sur le spectre avec des estimations d'erreurs plus faibles sur les niveaux L2 que celles de IASI, notamment pour les restitutions de la température et de la vapeur d'eau avec des erreurs respectives de 1 K et 10% (Pougatchev et al., 2009). Un autre instrument basé sur les caractéristiques spectrales de IASI-NG spécifique à la mesure du N₂O pourrait voir le jour. Il s'agit de l'instrument MIN₂OS (Monitoring Nitrous Oxide Sources), cité précédemment (chap. 5).

3.2 RTTOV

RTTOV (Radiative Transfer for TIROS Optical Vertical sounder) est un modèle de transfert radiatif rapide dont les versions RTTOV v11.2 et RTTOV v12.3 sont utilisées dans le cadre de cette thèse. Initialement développé pour les radiomètres TOVS (TIROS Optical Vertical Sounder) de la plateforme TIROS, RTTOV actuellement à la version 13, permet de simuler des radiances spectrales dans le VIS, l'IR et le MW entre 100 et 25000 cm⁻¹ avec 115 instruments présents sur 63 plateformes satellitaires différentes (EUMETSAT, 2020). Créé dans les années 1990 en collaboration avec le centre européen de météorologie ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts) puis avec EUMETSAT dans le cadre du projet NWP SAF (Numerical Weather Prediction Satellite Application Facility) (Saunders et al., 1999), il compte désormais plus de 1000 utilisateurs (Saunders et al., 2018).

RTTOV est basé sur les équations de transfert radiatif détaillées dans Saunders et al. (1999) qui décrivent, dans le cas où la diffusion est négligeable, la radiance monochromatique reçue de l'atmosphère $L(\nu, \theta)$ en fonction de la fréquence de l'onde ν et de l'angle observation du zénith à la surface θ comme :

$$L(\nu, \theta) = (1 - n)L^{Clr}(\nu, \theta) + nL^{Cld}(\nu, \theta) \quad (3.1)$$

où $L^{Clr}(\nu, \theta)$ et $L^{Cld}(\nu, \theta)$ désignent respectivement la radiance monochromatique provenant de l'atmosphère en ciel clair et en ciel complètement nuageux, et n correspond à la fraction nuageuse. $L^{Clr}(\nu, \theta)$ est définie de la manière suivante :

$$\begin{aligned} L^{Clr}(\nu, \theta) = & \tau_s(\nu, \theta)\epsilon_s(\nu, \theta)B(\nu, T_s) \\ & + (1 - \epsilon_s(\nu, \theta))\tau_s(\nu, \theta)^2 \int_{\tau_s}^1 \frac{B(\nu, T)}{\tau^2} d\tau \\ & + \int_{\tau_s}^1 B(\nu, T) d\tau \end{aligned} \quad (3.2)$$

avec τ_s et τ la transmittance du rayonnement, respectivement de la surface au sommet de l'atmosphère et dans une couche de l'atmosphère, $B(\nu, T)$ la fonction de Planck en fonction de la température T dans une couche de l'atmosphère et T_s à la surface et ϵ_s l'émissivité de surface. Le 1^{er} et le 2nd terme correspondent à la radiance monochromatique provenant de la surface, respectivement émise et réfléchiée. Le dernier terme désigne quant à lui la radiance

3.2. RTTOV

monochromatique émise depuis l'atmosphère. Enfin, $L^{Cld}(\nu, \theta)$ est définie comme :

$$L^{Cld}(\nu, \theta) = \tau_{Cld}(\nu, \theta)B(\nu, T_{Cld}) + \int_{\tau_{Cld}}^1 B(\nu, T)d\tau \quad (3.3)$$

où τ_{Cld} est la transmittance du rayonnement entre le sommet du nuage et le sommet de l'atmosphère et T_{Cld} est la température de l'atmosphère au sommet du nuage.

Numériquement, dans le cas d'une atmosphère à N couches allant de $j=1$ jusqu'à N , pour une fréquence correspondant au canal i d'un instrument et pour un rayonnement unidirectionnel vertical, l'équation 3.2 devient :

$$\begin{aligned} L_i^{Clr} = & \tau_{i,s}\epsilon_{i,s}B_i(T_s') + \frac{1}{2}(1 - \epsilon_{i,s})\tau_{i,s}^2 \sum_{j=1}^N [B_i(T_j') + B_i(T_{j-1}')] \left(\frac{\tau_{i,j-1} - \tau_{i,j}}{\tau_{i,j-1}\tau_{i,j}} \right) \\ & + \frac{1}{2} \sum_{j=1}^N [B_i(T_j') + B_i(T_{j-1}')] (\tau_{i,j-1} - \tau_{i,j}) + L_i' \end{aligned} \quad (3.4)$$

où T' correspond à une correction de la température T obtenue à partir des moyennes de radiance calculées à chaque canal par la fonction de Planck et L_i' est une petite contribution de l'atmosphère dans son ensemble. L'équation 3.3, dans les mêmes conditions que l'équation 3.4, prend la forme suivante :

$$L_i^{Cld} = \tau_{i,Cld}B_i(T_{Cld}') + L_i'' + \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{N_{Cld}} [B_i(T_j') + B_i(T_{j-1}')] (\tau_{i,j-1} - \tau_{i,j}) \quad (3.5)$$

avec N_{Cld} la couche de l'atmosphère située au dessus du sommet du nuage et L_i'' est la radiance interpolée correspondant à l'épaisseur de la couche $N_{Cld} - 1$ comprise entre le sommet du nuage et le début de la couche N_{Cld} .

Pour RTTOV v11.2 et RTTOV v12.3, les transmittances atmosphériques sont calculées pour chaque configuration possible à l'aide d'un modèle de transfert radiatif raie par raie. Pour ce faire, RTTOV dispose d'un jeu de données comprenant 83 profils d'entraînement pour chacun des multiples gaz traces exploitables, parmi eux le CO₂, le CH₄, et le CO fournis par ECMWF dans le cadre du programme GMES (Global Monitoring for Environment and Security) ainsi que le N₂O dont les données proviennent de la NOAA et d'AGAGE pour la basse troposphère et des mesures de CLAES (Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer) dans la stratosphère (Matricardi, 2008). Les profils atmosphériques de H₂O, de O₃ et de température sont également fournis par ECMWF (Chevallier et al., 2006). La

Chapitre 3. L'outil d'inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

mise à jour de RTTOV v11.2 à RTTOV v12.3 a toutefois apporté une différence pour certains profils d'entraînement. Les profils d'entraînement, référencés à l'année 2008 pour RTTOV v11.2 ont été recalés afin d'être référencés à 2016 pour le CO₂, le N₂O et le CH₄ pour RTTOV v12.3 (Saunders et al., 2017). Dans la gamme IR, les émissivités de surface terrestres sont tirées des atlas BRDF (Bidirectional Reflectance Distribution Function), à savoir UWIREMIS (University of Wisconsin InfraRed land surface EMISsivity) pour RTTOV v11.2 (Seemann et al., 2008) et MEaSURES CAMEL (Making Earth System data records for Use in Research Environments Combined ASTER and MODIS Emissivity for Land), produit par la NASA, pour RTTOV v12.3 (Saunders et al., 2017). Les émissivités de surface maritimes sont quant à elles tirées du modèle ISEM (Infrared Surface Emissivity Model) (Sherlock and Saunders, 1999) et IREMIS (InfraRed Surface Emissivity Model) (Saunders et al., 2017), respectivement pour RTTOV v11.2 et RTTOV v12.3. D'autres paramètres d'entrées tels que la température de la couche, l'angle d'observation, la pression atmosphérique de la couche permettent au modèle raie par raie de calculer dans un premier temps l'épaisseur optique σ_j de chacun des absorbants pour chaque couche d'atmosphère :

$$\sigma_{i,j} = \sigma_{i,j-1} + \sum_{k=1}^m a_{i,j-1,k} X_{i,j-1,k} \quad j \in [2, N] \quad (3.6)$$

où m correspond au nombre de paramètres impactant l'épaisseur optique appelés prédicteurs, notés ici $X_{j-1,k}$ et $a_{j-1,k}$ est le coefficient appliqué au prédicteur. Les prédicteurs utilisés dans le cadre de la thèse sont les prédicteurs version 9 de RTTOV. Dans RTTOV v11.2 et RTTOV v12.3, les coefficients appliqués à ces prédicteurs sont calculés par le modèle LBLRTM v12.2 (Saunders et al., 2017). Enfin dans RTTOV, en utilisant l'équation 3.6, les épaisseurs optiques sont converties en transmittances ainsi qu'en transmittances relatives, d'après McMillin et al. (1995) :

$$\tau_{i,j}^{tot} = \tau_{i,j}^{mix} \cdot \frac{\tau_{i,j}^{mix+mv}}{\tau_{i,j}^{mix}} \cdot \frac{\tau_{i,j}^{mix+mv+oz}}{\tau_{i,j}^{mix+mv}} \quad (3.7)$$

où $\tau_{i,j}^{tot}$ est l'épaisseur optique totale, $\tau_{i,j}^{mix}$ correspond à l'épaisseur optique des gaz mélangés autre que H₂O et O₃, et $\tau_{i,j}^{mix+mv}$ et $\tau_{i,j}^{mix+mv+oz}$ sont les épaisseurs optiques des gaz mélangés auxquelles on ajoute respectivement l'épaisseur optique de H₂O puis celle de H₂O et de O₃.

L'avantage de la mise à jour effectuée sur RTTOV repose évidemment sur la réduction des erreurs obtenues entre les radiances observées par les instruments de mesure et les

3.2. RTTOV

radiances recalculées par RTTOV, apportée entre autre par la correction effectuée sur les transmittances, comme le montre la figure 3.5, mais aussi sur l'ajout d'autres gaz tels que le dioxyde de soufre (SO₂), par exemple, ou encore sur la mise à jour des atlas d'émissivité, notamment dans la bande IR où l'atlas UWIREMIS a été remplacé par MEaSURES CAMEL (Saunders et al., 2017). Pour RTTOV v12.3, l'erreur de calcul sur les températures de brillance observées de IASI est de ± 0.5 K pour la bande comprise entre 645 et 2000 cm⁻¹ et de ± 1 K entre 2000 et 2760 cm⁻¹ (Saunders et al., 2018).

RTTOV est également capable de calculer les matrices jacobiennes, plus communément appelées jacobiens notés K , qui correspondent à pression P constante à la variation de radiance ou de température de brillance y en fonction de la variation du paramètre émettant/absorbant x :

$$K = \frac{dy}{dx} = \begin{pmatrix} \frac{dy_1}{dx_1 P_1=cte} & \dots & \frac{dy_M}{dx_1 P_1=cte} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{dy_1}{dx_N P_N=cte} & \dots & \frac{dy_M}{dx_N P_N=cte} \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

où y_1 et y_M sont respectivement la radiance/température de brillance aux canaux 1 et M , puis x_1 et x_N sont respectivement l'état du paramètre x dans la couche 1 à pression P_1 et N à pression P_N . Pour cela, en plus de la transmittance du paramètre x , RTTOV utilise les paramètres de l'instrument tels que les angles de visée, sa position ainsi que l'angle zénithal et azimutal satellitaire. Dans le cas du N₂O dans l'atmosphère, les jacobiens calculés par RTTOV sont montrés en figure 3.6 pour les 3 bandes d'absorption du N₂O présentes dans la gamme spectrale de IASI, déduites de Clerbaux et al. (2009) et également visibles sur la figure 3.5.

Ces 3 bandes spectrales que l'on appellera par la suite B1_{N₂O}, B2_{N₂O} et B3_{N₂O} sont centrées respectivement sur 1280 cm⁻¹ (7.8 μm), 2220 cm⁻¹ (4.5 μm) et 2550 cm⁻¹ (3.9 μm). Chacune de ces bandes spectrales présente un jacobien dont la valeur est plus ou moins importante, signifiant que le spectre de radiance/température de brillance sera plus ou moins sensible à la variation de concentration de N₂O dans l'atmosphère. La bande d'absorption située dans B1_{N₂O} entre 1250 et 1310 cm⁻¹ est sensible au N₂O compris entre 1000 et 100 hPa. La bande B2_{N₂O} est la bande d'absorption la plus intense. Elle se situe entre 2190 et 2240 cm⁻¹. Dans la troposphère, la sensibilité au N₂O est la plus basse à 100 hPa et son maximum est compris entre 500 et 200 hPa. La troisième bande, située dans

Chapitre 3. L'outil d'inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

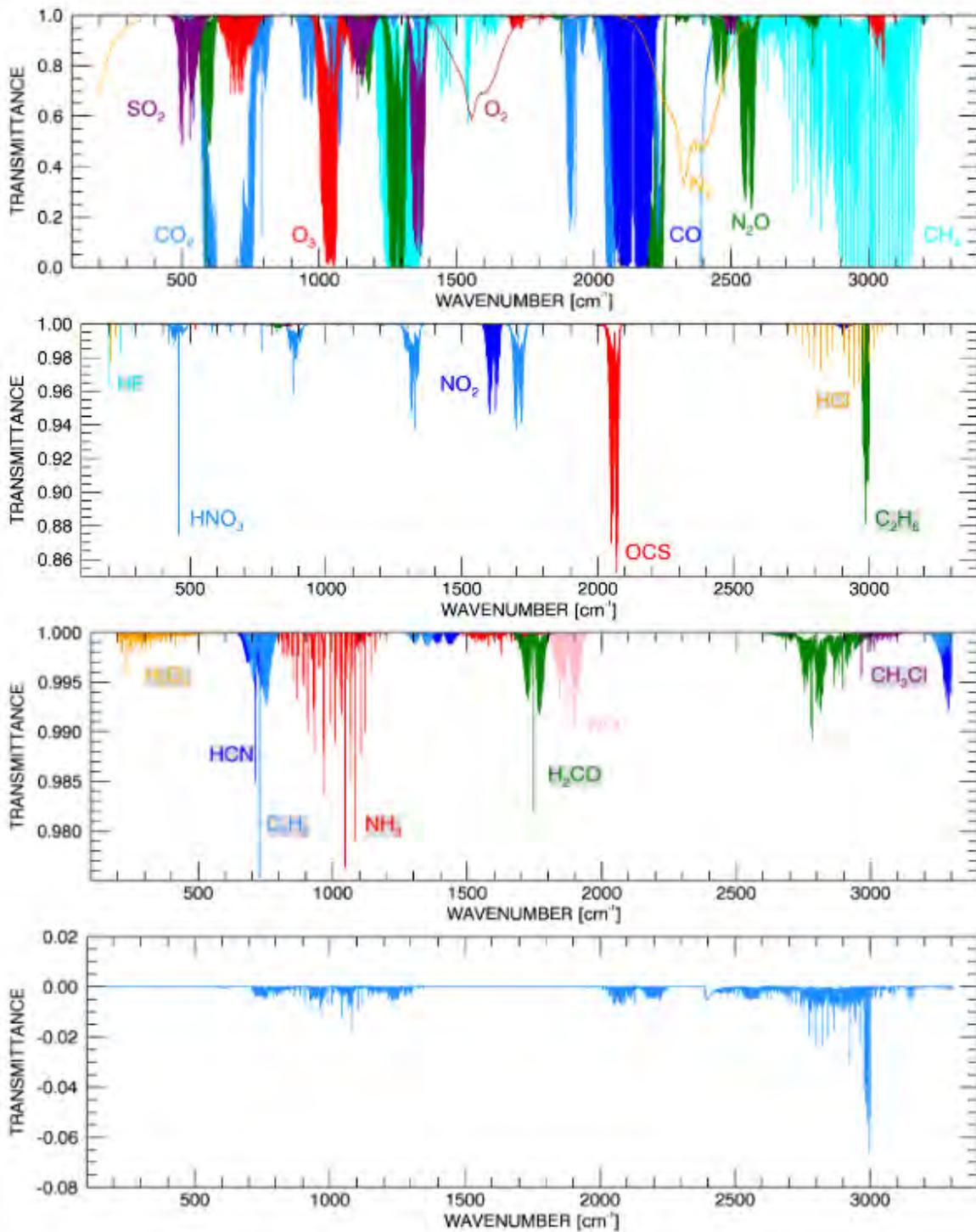


FIGURE 3.5 – Transmittances des différents composants dans RTTOV et différence des transmittances obtenues par LBLRTM v12.2 entre RTTOV v11 et RTTOV v12. Tiré de Saunders et al. (2017).

3.3. Inversion de données

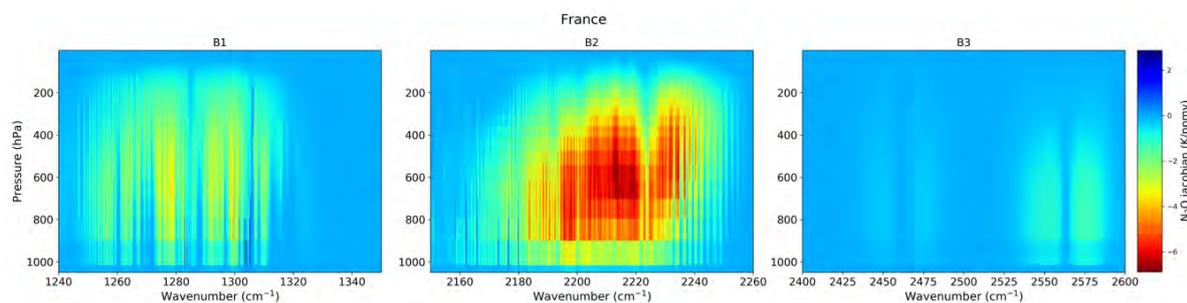


FIGURE 3.6 – Jacobiens du N_2O dans l’atmosphère exprimés en température de brillance par concentration de N_2O en $K.ppmv^{-1}$ dans les bandes spectrales du N_2O $B1_{N_2O}$ ($1240-1350\text{ cm}^{-1}$), $B2_{N_2O}$ ($2150-2260\text{ cm}^{-1}$) et $B3_{N_2O}$ ($2400-2600\text{ cm}^{-1}$), de gauche à droite, pour un pixel IASI mesuré en France en phase descendante le 2 juillet 2011.

$B3_{N_2O}$ entre 2500 et 2600 cm^{-1} , est beaucoup moins intense que les deux précédentes et est sensible au N_2O situé entre 900 et 300 hPa . Comme on a vu précédemment sur la figure 3.4, le bruit trop élevé observé dans $B2_{N_2O}$ ne nous permet pas de restituer convenablement le N_2O , même si on constate dans la bande spectrale comprise entre 2150 et 2250 cm^{-1} , que le N_2O absorbe fortement le rayonnement infrarouge entre 200 et 600 hPa . En effet, dans cette bande, la température de brillance diminue de plus de 5 K.ppmv^{-1} de N_2O . C’est pourquoi on se focalise sur l’absorption de la radiance spectrale due au N_2O dans la bande $B1_{N_2O}$, où on a certes une variation de la radiance spectrale due au N_2O moindre, d’une valeur de -2.5 K.ppmv^{-1} , mais un bruit plus faible que dans $B2_{N_2O}$, qui permet par conséquent d’effectuer une restitution de N_2O . La figure 3.6 permet de connaître plus en détail l’intervalle de nombre d’onde que l’on va choisir par la suite dans RTTOV et dans lequel on pourra recalculer la radiance spectrale dans notre système d’inversion, détaillé en 3.3. Comme expliqué précédemment, la signature de la présence de N_2O dans l’atmosphère est incorporée dans la radiance spectrale entre 1250 et 1310 cm^{-1} . La bande spectrale choisie méthodiquement lors de la méthode d’inversion doit donc nécessairement contenir ce domaine spectral.

3.3 Inversion de données

Les inversions de données ont débuté bien avant l’avènement des premiers ordinateurs, dans les années 1920. Ce fut Dobson, physicien et météorologue britannique, qui tenta de restituer la colonne totale d’ozone à partir d’un spectromètre UV, celui-même qui donna

par la suite son nom à l'unité de mesure de l'ozone. Puis Götz, astronome allemand, réalisa en 1930 qu'il était possible d'obtenir la distribution verticale d'O₃ à partir de la méthode Umkehr, c'est-à-dire la mesure de la diffusion Rayleigh au couché du soleil. Depuis, de nombreuses méthodes d'inversion de données existent. Elles sont généralement basées sur la mesure du spectre électromagnétique et sont couplées à des codes de transfert radiatif. Nous allons présenter dans cette section la méthode d'inversion utilisée pendant cette thèse. Il s'agit de l'algorithme de Levenberg-Marquardt pratiqué pour l'inversion de données atmosphériques et détaillé dans Rodgers (2000).

3.3.1 Méthode de Levenberg-Marquardt

La méthode de Levenberg-Marquardt (Levenberg, 1944; Marquardt, 1963) est un algorithme d'estimation optimale non-linéaire, schématisé dans la figure 3.7, permettant par minimisation de déterminer l'état de l'atmosphère, noté \hat{x} , dont le résultat à l'itération $i + 1$, noté x_{i+1} donne :

$$x_{i+1} = x_a + \left[(1 + \gamma)S_a^{-1} + K^T S_y^{-1} K \right] \left[K^T S_y^{-1} (y - F(x_i)) - S_a^{-1} (x_i - x_a) \right] \quad (3.9)$$

où x_a et x_i représentent respectivement l'état a priori de l'atmosphère, c'est-à-dire l'état attendu de l'atmosphère ainsi que l'état de l'atmosphère à l'itération i ; ces deux états sont définis tel que :

$$x_a = \begin{pmatrix} x_{a1} \\ \vdots \\ x_{aN} \end{pmatrix}, \quad x_i = \begin{pmatrix} x_{i1} \\ \vdots \\ x_{iN} \end{pmatrix}$$

En (3.9) y correspond à la radiance observée par l'instrument et $F(x_i)$ est la radiance calculée par le code de transfert radiatif pour l'état x_i . S_a et S_y sont respectivement la matrice de covariance d'erreur des paramètres a priori du système pour N niveaux et la matrice de covariance d'erreur sur les radiances observées pour M canaux définies comme :

$$S_a = \begin{pmatrix} \sigma_{x_{a1}}^2 & \sigma_{x_{a1}x_{a2}} & \cdots & \sigma_{x_{a1}x_{aN}} \\ \sigma_{x_{a2}x_{a1}} & \ddots & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \sigma_{x_{aN-1}x_{aN}} \\ \sigma_{x_{aN}x_{a1}} & \cdots & \sigma_{x_{aN}x_{aN-1}} & \sigma_{x_{aN}}^2 \end{pmatrix}, \quad S_y = \begin{pmatrix} \sigma_{y1}^2 & \sigma_{y1y2} & \cdots & \sigma_{y1yM} \\ \sigma_{y2y1} & \ddots & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \sigma_{y_{M-1}yM} \\ \sigma_{yMy1} & \cdots & \sigma_{yMy_{M-1}} & \sigma_{yM}^2 \end{pmatrix}$$

3.3. Inversion de données

K est la matrice jacobienne, appelée communément jacobien et défini dans l'équation 3.8. Enfin, γ est le paramètre d'amortissement qui varie au cours de la minimisation. Dans le cas où la minimisation converge trop rapidement, ce paramètre diminue. Lorsque cette dernière converge trop lentement, γ augmente. La vitesse de convergence de la méthode d'estimation optimale est définie par le critère de convergence, noté χ^2 . À l'itération i , la valeur de χ_i^2 devient :

$$\chi_i^2 = [(x_i - x_a)^T S_a^{-1} (x_i - x_a)] + [(y - F(x_i))^T S_y^{-1} (y - F(x_i))] \quad (3.10)$$

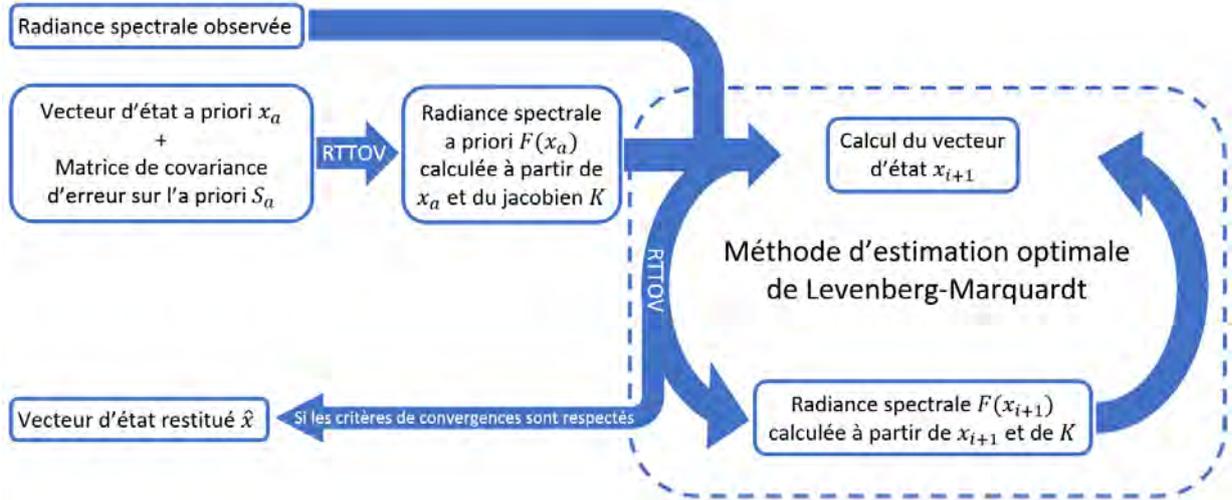


FIGURE 3.7 – Schéma de la méthode itérative de Levenberg-Marquardt utilisée durant cette thèse.

Si à l'itération $i + 1$, $\chi_{i+1}^2 < \chi_i^2$, alors le paramètre γ diminue. Cependant, si $\chi_{i+1}^2 \geq \chi_i^2$, γ augmente et on recalcule l'état x_{i+1} dans l'équation 3.9 puis on répète cette opération jusqu'à ce que $\chi_{i+1}^2 < \chi_i^2$. En théorie, lorsque l'état restitué \hat{x} correspond à l'état réel de l'atmosphère x , les termes s'additionnant dans l'équation 3.10 correspondent aux degrés de liberté respectivement de l'état de l'atmosphère notés $dim(x)$ et des radiances notés $dim(y)$:

$$\chi^2 = dim(x) + dim(y) \quad (3.11)$$

Par choix de l'utilisateur, la minimisation prend fin de deux manières par calcul de la fonction test d^2 détaillée dans Rodgers (2000), qui définit l'arrêt de la minimisation :

— On définit d^2 en fonction de la radiance calculée :

$$d^2 = [F(x_{i+1}) - F(x_i)]^T \left[S_y \left(K S_a K^T + S_y \right)^{-1} S_y \right]^{-1} [F(x_{i+1}) - F(x_i)] \quad (3.12)$$

Dans ce cas, l'arrêt du calcul de l'état \hat{x} se produit lorsque $d^2 \ll \dim(y)$ (au moins un ordre de grandeur d'écart). Cette procédure est privilégiée si $\dim(y) < \dim(x)$.

— On définit d^2 en fonction de l'état de l'atmosphère :

$$d^2 = (x_i - x_{i+1})^T \left[S_a^{-1} + K^T S_y^{-1} K \right] (x_i - x_{i+1}) \quad (3.13)$$

Dans ce cas, l'arrêt du calcul de l'état \hat{x} se produit lorsque $d^2 \ll \dim(x)$ (au moins un ordre de grandeur d'écart). Cette procédure est privilégiée si $\dim(x) < \dim(y)$.

3.3.2 Sensibilité verticale

La sensibilité verticale de l'état \hat{x} s'obtient à l'aide du calcul de la matrice des fonctions de balayage, communément appelée en anglais "averaging kernels". Notée A , cette matrice désigne mathématiquement la variation de l'état restitué de l'atmosphère au niveau i , \hat{x}_i par rapport à celle de l'état réel au niveau j , x_j :

$$A = \frac{\partial \hat{x}}{\partial x} = \begin{pmatrix} \frac{\partial \hat{x}_1}{\partial x_1} & \dots & \frac{\partial \hat{x}_N}{\partial x_1} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial \hat{x}_1}{\partial x_N} & \dots & \frac{\partial \hat{x}_N}{\partial x_N} \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

Numériquement, A s'obtient à partir de K et de la matrice de gain G_y correspondant à la sensibilité de l'inversion à la mesure de la radiance :

$$A = G_y K \quad (3.15)$$

avec :

$$G_y = \left(K^T S_y^{-1} K + S_a^{-1} \right)^{-1} K^T S_y^{-1}$$

Dans le cas où les valeurs diagonales des averaging kernels sont proches de 1, cela signifie que la variation de l'état réel au niveau j affecte au même degré celle de l'état restitué au niveau i , autrement dit, la sensibilité de l'instrument à l'état de l'atmosphère

3.3. Inversion de données

est maximum et le résultat de la restitution dans le niveau i ne dépend en aucun cas de l'a priori au niveau j . Dans le cas où les valeurs sont proches de 0, la variation de l'état réel au niveau j n'a aucun impact sur la variation de la restitution au niveau i , autrement dit, la sensibilité est nulle et le résultat de la restitution au niveau i ne dépend que de l'a priori du niveau j . Une équation permet justement de déterminer un état restitué \hat{x} à partir de A , de l'état a priori x_a et d'un état connu x , généralement tiré de mesures ou d'un modèle atmosphérique :

$$\hat{x} = Ax + (I - A)x_a \quad (3.16)$$

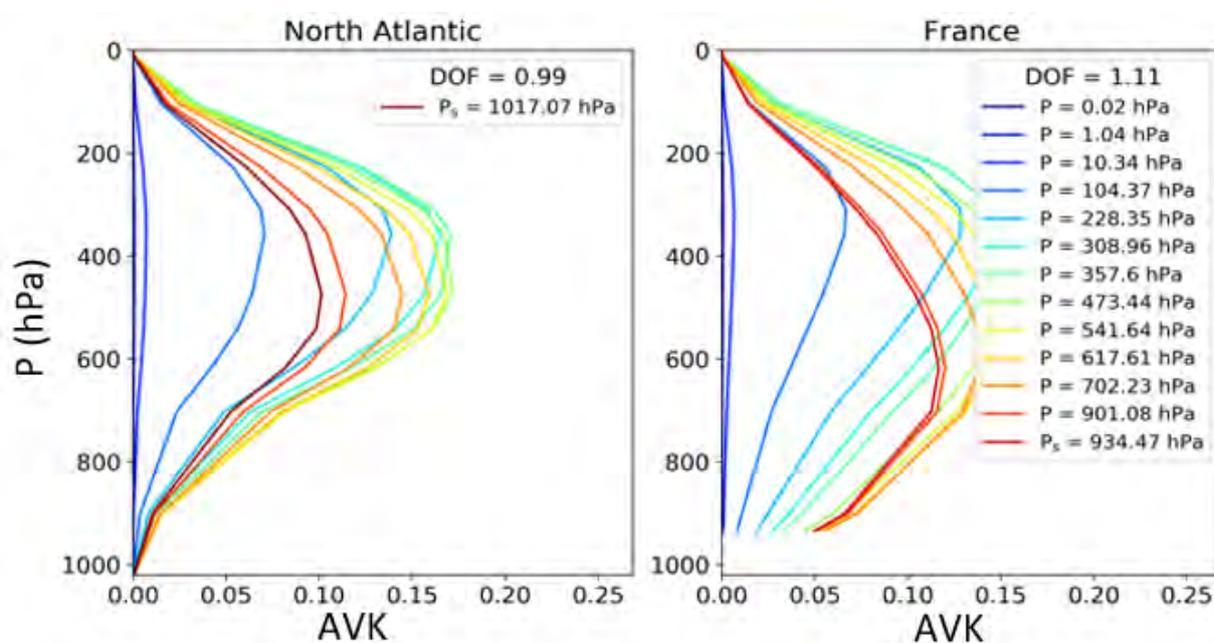


FIGURE 3.8 – Illustration de deux fonctions de balayage (averaging kernels) du N_2O en fonction de la pression (hPa) pour deux mesures de IASI obtenues avec TN_2OR v1.7 : (gauche) pixel IASI mesuré en Atlantique nord le 12 juillet 2011 et (droite) pixel IASI mesuré en France le 02 juillet 2011, tous deux en phase descendante (9h30 au nadir).

De manière générale, les sensibilités maximales sont présentes sur la diagonale de la matrice, c'est-à-dire pour un même niveau de pression ($P_i = P_j$), comme l'indique la figure 3.8. Un autre paramètre permet de quantifier la sensibilité de l'instrument sur l'intégralité du profil vertical. Il s'agit du degré de liberté, noté DOF (Degree Of Freedom), correspondant à la trace de l'averaging kernel :

$$DOF = tr(A) \quad (3.17)$$

Plus cette valeur est importante et plus la sensibilité sur le profil vertical est grande.

3.3.3 Analyse des erreurs

L'erreur sur l'inversion provient de multiples sources liées aux modèles utilisés ainsi qu'à l'instrument mesurant la source de rayonnement. Il existe quatre types d'erreur qui, additionnées, donnent l'erreur totale, comme le montre l'équation 3.18.

$$\hat{x} - x = \underbrace{(A - I)(x - x_a)}_{\text{Erreur de lissage}} + \underbrace{G_y K_b (b - \hat{b})}_{\text{Erreur liée au paramètre du modèle}} + \underbrace{G_y \Delta f(x, b, b')}_{\text{Erreur du modèle}} + \underbrace{G_y \epsilon}_{\text{Bruit de l'inversion}} \quad (3.18)$$

où b , \hat{b} et K_b représentent respectivement les paramètres réels, estimés et leur jacobien pris en compte lors de l'inversion de x . I est la matrice identité, $\Delta f(x, b, b')$ est l'erreur du modèle liée au calcul de la radiance et dépendant de x , b mais aussi b' qui correspondent aux paramètres ignorés qui impactent la mesure de la radiance. Enfin, ϵ désigne l'erreur sur la mesure de la radiance par l'instrument.

L'erreur de lissage dont la matrice de covariance, notée S_s , est l'erreur liée à la sensibilité verticale de l'instrument et à l'erreur fixée sur les paramètres a priori. La matrice S_s s'obtient de la manière suivante :

$$S_s = (A - I) S_a (A - I)^T \quad (3.19)$$

L'erreur sur les paramètres du modèle est également liée à l'erreur fixée sur les paramètres a priori. La matrice S_f associée à cette erreur est calculée à partir de G_y , K_b et également S_b qui correspond à la matrice de covariance d'erreur des paramètres a priori pris en compte lors de l'inversion :

$$S_f = G_y K_b S_b K_b^T G_y^T \quad (3.20)$$

L'erreur de la restitution liée à l'erreur sur le calcul de la radiance vaut $G_y \Delta f$, comme indiqué dans l'équation 3.18. Il s'agit de l'erreur la plus complexe à calculer. En effet, la connaissance de tous les constituants émettants/absorbants et diffusants est nécessaire afin de la déterminer. Un modèle de transfert radiatif possédant un maximum de connaissances permet de retrouver de manière optimale la radiance observée. Dans ce cas, Δf est très faible et dans le cas contraire, cette erreur devient non négligeable.

3.4. TN₂OR

Enfin, la dernière erreur, correspondant au bruit de l'inversion, est liée à l'erreur instrumentale sur la mesure de la radiance. La matrice S_m associée à cette erreur s'écrit :

$$S_m = G_y S_y G_y^T \quad (3.21)$$

En général, pour définir l'apport de l'instrument dans le résultat de la restitution, en terme de précision sur la mesure de radiance ainsi que sur sa sensibilité verticale aux différents paramètres à restituer, on définit simplement l'erreur totale sur la restitution, en excluant les erreurs associées au modèle (Rodgers, 2000). La matrice de covariance d'erreur totale, notée S_{tot} , devient ainsi :

$$S_{tot} = S_s + S_m \quad (3.22)$$

Cette erreur dépend majoritairement de l'erreur de lissage, notamment lorsque la sensibilité verticale de l'instrument est faible voire nulle. De plus, elle est généralement minimum lorsque cette sensibilité est maximale. Cependant, l'erreur de lissage est compensée par l'erreur liée à la mesure instrumentale de la radiance. Cette dernière est maximum quand l'erreur de lissage est minimum, comme l'indique la figure 3.9.

3.4 TN₂OR

TN₂OR (Toulouse N₂O Retrieval) est l'outil d'inversion issu du travail de Kangah (2017) puis développé, retravaillé et mis à jour au cours de cette thèse. Il permet en premier lieu de restituer des profils atmosphériques de N₂O à partir des mesures de radiance de l'instrument spatial IASI. TN₂OR combine pour cela le modèle de transfert radiatif RTTOV, permettant de calculer des radiances/températures de brillance à partir de paramètres d'entrée/sortie terrestres et atmosphériques, et la méthode d'estimation optimale de Levenberg-Marquardt. Grâce à TN₂OR, il est possible d'inverser les profils atmosphériques de N₂O, qui demeure le gaz cible, mais aussi ceux de température, H₂O, CH₄, CO₂, CO, O₃, ainsi que la température de surface et l'émissivité de surface.

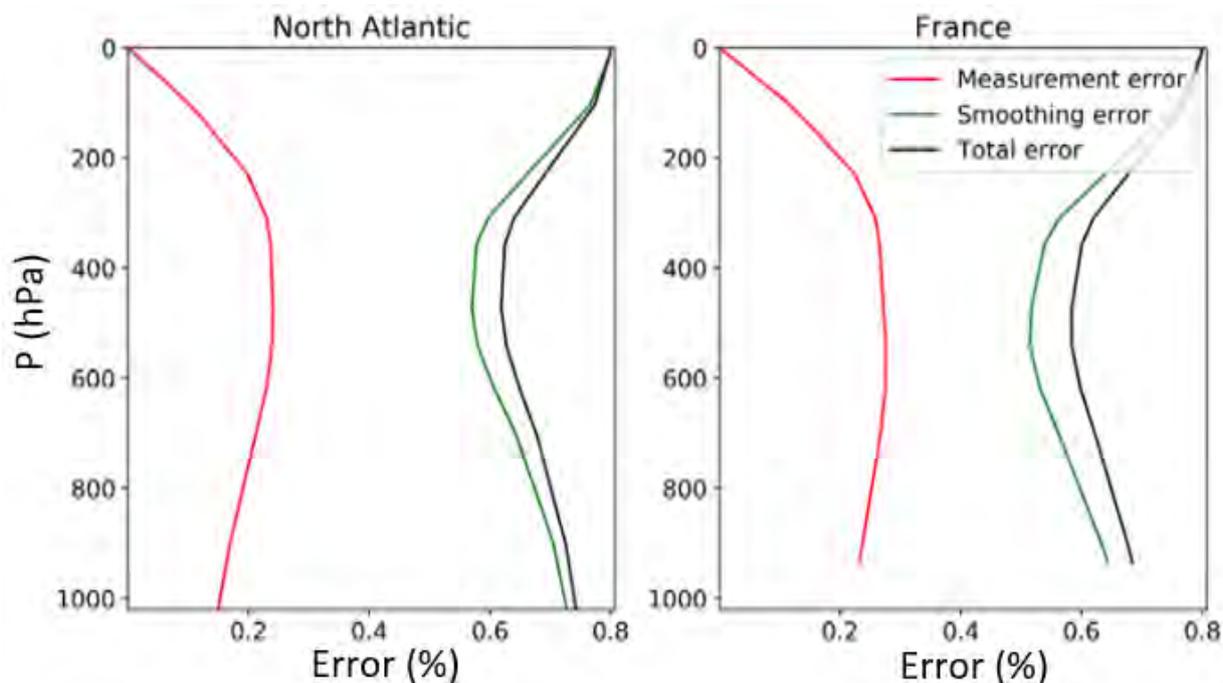


FIGURE 3.9 – Illustration des profils d'erreurs associées aux inversions du N₂O avec TN₂OR v1.7 (en %) en fonction de la pression (hPa) pour les mêmes pixels que ceux présentés sur la figure 3.8. En rouge, l'erreur liée à la mesure. En vert, l'erreur de lissage. En noir, l'erreur totale.

3.4.1 Données d'entrée

3.4.1.1 Niveaux L1C et L2 de IASI/Metop-A

Les radiances spectrales utilisées dans TN₂OR, correspondant aux niveaux L1C sont mesurées par IASI/Metop-A et fournies par le Data Centre de l'agence EUMETSAT (<https://www.eumetsat.int/iasi>). Chaque fichier produit avec la version 8 du système opérationnel d'EUMETSAT correspond aux données de radiances spectrales mesurées durant la période orbitale de Metop-A autour de la Terre. En plus de ces données, chaque fichier contient, pour chaque mesure, les coordonnées spatio-temporelles, les angles de visée de l'instrument ainsi que les angles zénithaux et azimutaux solaires et satellitaires. Des indications sur la surface mesurée (mesure sur terre, mer ou glace), sur la période de mesure (jour, nuit ou aube/crépuscule) et sur la couverture nuageuse (ciel clair, partiellement nuageux ou complètement nuageux) sont également contenues dans les fichiers. En entrée de TN₂OR, seules les données mesurées en ciel clair sont conservées. D'autres filtres additionnels peuvent s'ajouter. Ces derniers correspondent à la qualité des inversions (bonne

3.4. TN₂OR

convergence, mauvaise convergence ou divergence) des profils des niveaux L2 de IASI (également fournis par EUMETSAT et obtenus avec la version 5 du système opérationnel des niveaux L2) de température et de vapeur d'eau produits à partir des niveaux L1C (Turquety et al., 2004). Ils serviront par la suite en tant qu'a priori lors des inversions de N₂O. Chaque profil de niveau L2 de IASI restitué par EUMETSAT est construit sur 90 niveaux fixes allant de 0.001 à 1050 hPa, auxquels s'ajoute un niveau correspondant à la pression de surface, bénéficiant donc en plus de la température de surface comme donnée d'entrée a priori.

3.4.1.2 Données a priori

En plus des profils niveaux L2 de température et de vapeur d'eau, et de la température de surface de IASI/EUMETSAT, évoqué précédemment, d'autres données a priori sont nécessaires à l'inversion.

Pour le N₂O, un profil a priori unique a été construit à partir de 854 profils de N₂O mesurés à l'aide du spectromètre QCLS (Quantum Cascade Laser Spectrometer) lors des campagnes High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations (HIPPO) 1-5 entre 2009 et 2011 (Wofsy, 2011), sur un total de 1100 profils exploitables (fig. 3.10). On définit un profil exploitable lorsque le profil est mesuré sur une épaisseur de couche supérieure à 200 hPa. Les critères de sélection de ces 854 profils se basent sur la non-coïncidence spatio-temporelle de ces profils avec les mesures IASI, c'est-à-dire à une distance supérieure de 200 km ou un écart de plus de 12 heures des profils HIPPO avec les mesures IASI. Chacun de ces profils est extrapolé sur une grille commune dont les niveaux de pressions vont de la surface (virtuellement située à 1050 hPa) à la stratosphère (0.02 hPa) par des profils du modèle de circulation générale du Laboratoire de Météorologie Dynamique LMDz-INCA version v6 (Hauglustaine et al., 2004). Un profil est construit sur 39 niveaux et possède une grille de pression comprise entre 0.043 hPa (80 km) et 1008.96 hPa (correspondant à la surface). De plus, les profils LMDz sont journaliers et possèdent une résolution spatiale de $2.5^\circ \times 1.27^\circ$. Les profils LMDz choisis pour l'extrapolation, vers le haut et/ou vers le bas sont les plus proches des profils HIPPO mesurés en terme de temps et d'espace. Les valeurs des profils du modèle sont ensuite réajustées aux niveaux de pression minimum (resp. maximum) des mesures des profils HIPPO, afin d'obtenir un profil extrapolé vers le haut (resp. vers le bas) continu.

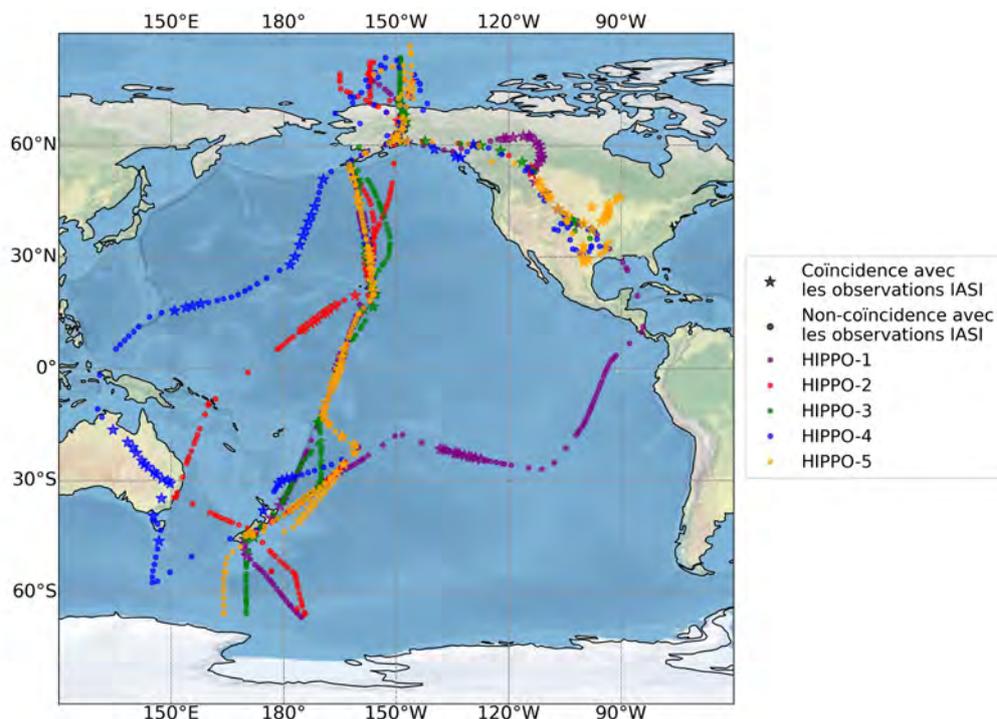


FIGURE 3.10 – Localisation des 1100 profils HIPPO exploitables utilisés durant cette thèse. Les étoiles correspondent aux profils coïncidant avec les observations IASI et les points aux profils non-coïncidant avec celles-ci. En violet, les profils des campagnes HIPPO-1 en janvier 2009. En rouge, les profils HIPPO-2 mesurés entre octobre et novembre 2009. En vert, les profils HIPPO-3 mesurés entre mars et avril 2010. En bleu, les profils HIPPO-4 mesurés entre juin et juillet 2011. En orange, les profils HIPPO-5 mesurés durant la période août-septembre 2011.

Pour chaque profil HIPPO, la valeur du réajustement correspond à un facteur d'échelle égal au rapport entre la concentration de N_2O de HIPPO et celle de LMDz à la pression minimum (resp. maximum) de mesure de HIPPO. On applique enfin ce facteur d'échelle sur tous les niveaux où la pression du modèle est inférieure (resp. supérieure) à la pression minimum (resp. maximum) de HIPPO.

La moyenne de l'ensemble des 854 profils extrapolés constitue l'a priori du N_2O . Quant à l'erreur associée au profil a priori, celle-ci est déterminée à partir de l'écart-type des 854 profils à 300 hPa, pression à laquelle les mesures de IASI sont le plus sensible au N_2O (chap. 4). L'écart-type à 300 hPa atteint une valeur proche de 0.8 %, comme le montre la figure 3.11. Cette valeur de référence est utilisée pour les deux versions de TN_2OR que l'on détaille dans la partie 3.5.

Les profils a priori de CH_4 et de CO utilisés lors des inversion sont des profils dyna-

3.4. TN₂OR

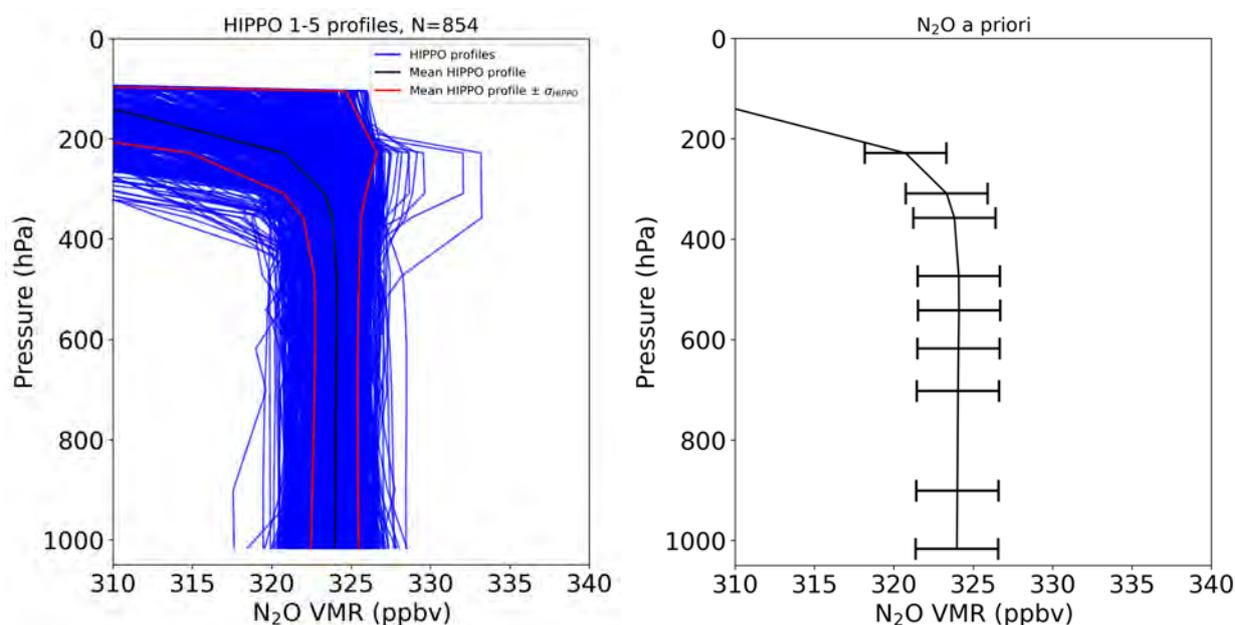


FIGURE 3.11 – (Gauche) Rapport de mélange de N₂O (ppbv) des 854 profils mesurés durant les campagnes HIPPO 1-5 et extrapolés par LMDZ en fonction de la pression (hPa) en bleu, dont les écarts-types de $\pm\sigma$ ainsi que la moyenne de ces profils sont représentés respectivement en rouge et noir. (Droite) a priori du N₂O (ppbv) en fonction de la pression (hPa) correspondant à la moyenne des rapports de mélange des profils HIPPO et dont l’erreur associée est représentée pour chaque niveau par des flèches horizontales.

miques variant en fonction des coordonnées spatio-temporelles. Les profils du CH₄ et du CO servant d’a priori proviennent des réanalyses de données atmosphériques MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate) fournies par CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service) dont la résolution horizontale est de 80 km et la résolution temporelle de 3 heures (MACC-II Consortium, 2011). Chaque profil peut contenir au maximum 23 niveaux de pression compris dans la troposphère et la stratosphère entre 1 et 1000 hPa. Ces données sont disponibles sur la période 2003-2012. Au delà de 2012, les profils a priori de CH₄ et CO utilisés sont les réanalyses de CAMS-EAC4 (ECMWF Atmospheric Composition reanalysis 4) dont les données couvrent la période de 2003 jusqu’aujourd’hui. MACC et CAMS-EAC4 partagent la même résolution horizontale et temporelle et un grand nombre de niveau de pression. Les profils de pression CAMS-EAC4 en possèdent en revanche 25, répartis sur la même étendue verticale que les profils MACC (Inness et al., 2019).

Les derniers profils atmosphériques a priori concernés sont ceux du CO₂ et de O₃. Tous deux sont uniques, tout comme le N₂O et proviennent des références atmosphériques

Chapitre 3. L’outil d’inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

de version 3 de l’instrument MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) correspondant à une climatologie de moyenne latitude (Remedios et al., 2007). Ces données datent de 2001. Pour le CO₂, un décalage de 2.3 ppmv.an⁻¹ a été appliqué sur le profil existant, d’après Ciaï et al. (2014).

Enfin, les émissivités de surface terrestres proviennent d’atlas, UWIREMIS pour RTTOV v11.2 avec TN₂OR v1.7 et MEaSUREs CAMEL pour RTTOV v12.3 avec TN₂OR v2.0 (voir section 3.5). Sur la mer, l’émissivité de surface est fixée dans l’IR à 0.984 d’après Konda et al. (1994).

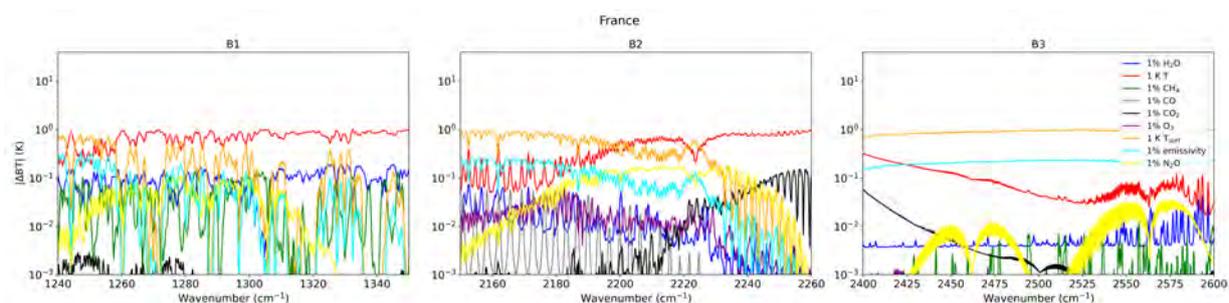


FIGURE 3.12 – Variabilité de la température de brillance (K) de IASI calculée par RTTOV v11.2 (TN₂OR v1.7) et RTTOV v12.3 (TN₂OR v2.0) en fonction du nombre d’onde (cm⁻¹) pour la variation de l’ensemble des paramètres susceptibles d’être restitués par TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0, sur un pixel mesuré en France en phase descendante le 02 juillet 2011 (Ricaud et al., 2021).

Pour chaque bande spectrale, B1_{N₂O}, B2_{N₂O} et B3_{N₂O} décrite sur la figure 3.6, les paramètres à restituer ont été choisis en fonction d’une étude menée sur la sensibilité de la température de brillance à l’ensemble des paramètres capables d’être restitués par TN₂OR. En faisant varier chaque paramètre de 1% (pour les gaz et l’émissivité de surface) par rapport à leur a priori respectif ou de 1 K pour la température et la température de surface, on observe la variabilité subie par la température de brillance (fig. 3.12). Pour être restitué, un paramètre doit apporter à la température de brillance de IASI une variabilité supérieure à 10⁻² K ($|\Delta BT| \geq 10^{-2}$ K), au moins pour un canal de la bande sélectionnée. On en conclut que sur B1_{N₂O}, les paramètres à restituer sont les profils de N₂O, de CH₄, de H₂O, de température, la température et l’émissivité de surface. Sur B2_{N₂O}, on restitue les profils de N₂O, de CO, de CO₂, d’O₃, de H₂O, de température ainsi que la température de surface et l’émissivité de surface. Enfin sur B3_{N₂O}, on restitue les profils de N₂O, de H₂O, de température, puis la température et l’émissivité de surface (tab.3.3). Notre paramètre cible reste avant tout le N₂O. C’est donc sur ce gaz que se concentrera la majorité des résultats publiés dans cette thèse. Par contrainte de temps et d’efficacité, on restituera

3.4. TN₂OR

le N₂O majoritairement dans la bande spectrale B1_{N₂O} (voir chap. 4). On s'intéressera toutefois à la sensibilité du N₂O dans les bandes spectrales B2_{N₂O} et B3_{N₂O} (voir chap. 5). À noter que dans les chapitres 4, et 5, B1_{N₂O}, B2_{N₂O} et B3_{N₂O} sont respectivement nommés B1, B2 et B3, en référence à leur désignation dans Chalinel et al. (2022) et Ricaud et al. (2021).

3.4.1.3 Erreurs a priori et définition des matrices de covariance d'erreur

Dans TN₂OR, les matrices de covariance d'erreur des profils a priori S_a sont définies symétriques et positives. Chaque indice $S_{a_{ij}}$ est défini d'après Rodgers (2000) de la manière suivante :

$$S_{a_{ij}} = \sigma_a^2 e^{-\left| \ln\left(\frac{P_i}{P_j}\right) \right|} \quad (3.23)$$

avec P_i et P_j les pressions respectivement aux niveaux i et j , et où σ_a représente l'erreur associée au paramètre a priori. Une illustration de la forme finale de la matrice de covariance d'erreur sur l'a priori du N₂O obtenue à partir de l'équation 3.23 est d'ailleurs montrée sur la figure 3.13.

Les matrices de covariance d'erreur sur les mesures de radiance S_y sont quant à elles définies uniquement sur la diagonale, en fonction des différents bruits instrumentaux utilisés au cours de la thèse, c'est-à-dire celui de IASI (fig. 3.4) et ceux des capteurs candidats pour MIN₂OS étudiés dans Ricaud et al. (2021) (fig. 5.1, voir chap. 5). Ses éléments non-diagonaux sont nuls :

$$S_y = \begin{pmatrix} \epsilon_1^2 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & \epsilon_2^2 & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \cdots & 0 & \epsilon_M^2 \end{pmatrix} \quad (3.24)$$

Physiquement, cela signifie que la mesure de la radiance spectrale à un canal i d'erreur instrumentale ϵ_i n'impacte pas la mesure de la radiance spectrale sur les autres canaux.

3.4.2 Calibration des radiances

Dans TN₂OR, la calibration des radiances IASI calculées par RTTOV est une méthode permettant d'améliorer grandement la qualité des résultats. Pour atteindre la procédure

Chapitre 3. L'outil d'inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

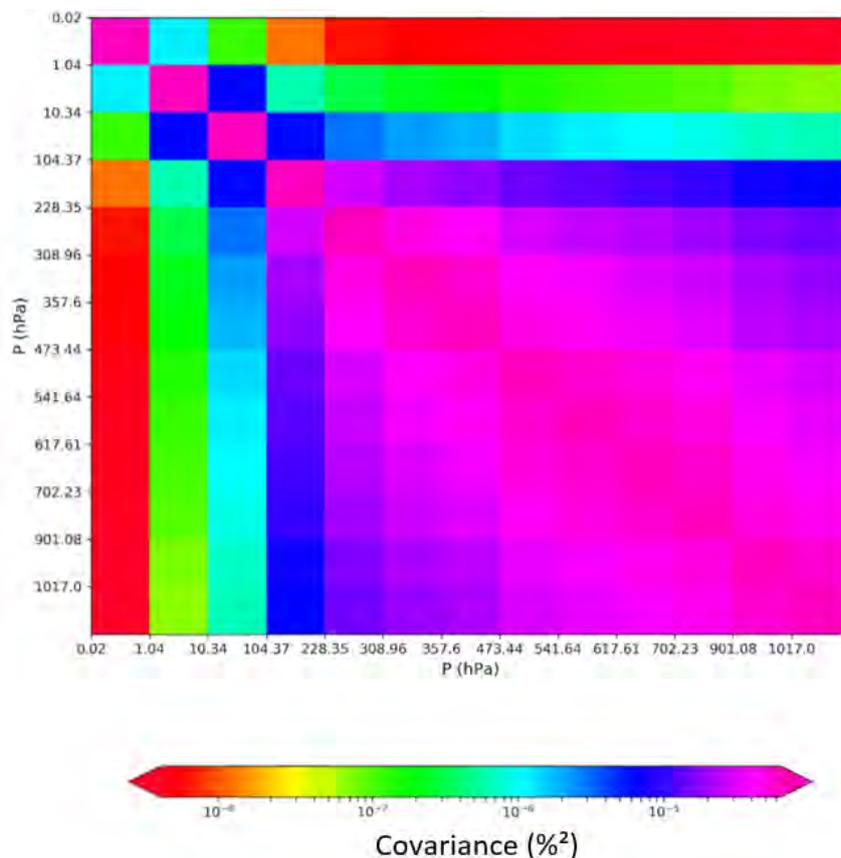


FIGURE 3.13 – Représentation de la matrice de covariance d'erreur sur l'a priori du N₂O exprimée en %² sur chaque niveau d'inversion pour TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0.

des restitutions finales, celle-ci passe par trois étapes.

Tout d'abord, on utilise un jeu de données IASI conséquent, contenant au moins 20000 mesures, choisi méthodiquement en fonction des données IASI que l'on souhaite restituer. Chaque étape de calibration correspond à une ou plusieurs étapes de restitutions. On conserve pour chaque étape uniquement les restitutions ayant convergé, avec un critère de convergence normalisé par le nombre de degré de liberté du système $\chi^2 \leq 10$. Une étude approfondie sur les radiances spectrales calculées par RTTOV est menée pour chacune de celles-ci. Par mesure de confidentialité, nous mettrons uniquement en avant les résultats obtenus lors de l'étape initiale et de l'étape finale.

L'étape initiale consiste à filtrer les canaux et déterminer les plus pertinents situés dans la fenêtre spectrale que l'on choisit. Pour cela, on effectue une première restitution de N₂O sur l'ensemble du jeu de données choisi. Cette restitution est produite à partir du calcul des

3.4. TN₂OR

radiances spectrales de chaque pixel du jeu de données, sur la totalité des canaux présents dans la bande spectrale sélectionnée. C'est ensuite en comparant les radiances calculées par RTTOV avec les radiances observées de IASI, que la sélection des canaux s'effectue.

L'étape intermédiaire consiste à effectuer une première calibration des radiances à partir des radiances calculées par RTTOV lors de la première restitution. Une seconde restitution de données est produite sur le même jeu de données que celui utilisé lors de la première restitution. Les paramètres de calibration calculés à partir de la première restitution permettront de calibrer les radiances calculées pour la seconde procédure de restitution.

Enfin, lors de l'étape finale, la combinaison des paramètres de calibration obtenus lors de ces deux premières restitutions permettent de construire un fichier de calibration finale, qui est introduit dans la procédure d'inversion finale. Les restitutions finales de N₂O issues de cette procédure seront par la suite, soit évaluées à partir de données in-situ, soit utilisées pour des études climatologiques de données mensuelles (Chalinel et al., 2022) voire annuelles, à l'avenir. Pour les versions de TN₂OR v1.7 et v2.0 détaillées dans la partie 3.5, les calibrations ont été réalisées à partir du jeu de données que l'on appelle "HIPPO/NOAA". Si l'on prend comme exemple les calibrations obtenues à partir du jeu de données "HIPPO/NOAA" avec TN₂OR v2.0, les résidus de radiance de l'étape initiale et de l'étape finale sont présentés sur la figure 3.14.

Tout d'abord, la calibration effectuée sur TN₂OR v2.0 a permis d'éliminer 9.8% des canaux, passant ainsi de 441 à 398 canaux. Ensuite, on observe globalement une diminution de l'ordre de 80% du résidu des radiances issues des restitutions produites à l'aide de la calibration, par rapport au résidu des radiances issues des restitutions brutes, notamment au-delà de 1260 cm⁻¹. Dans la fenêtre comprise entre 1260 et 1340 cm⁻¹, le résidu issu de la restitution finale est inférieur à 0.03 mW.m⁻².sr⁻¹.(cm⁻¹)⁻¹. Tandis que dans cette même fenêtre, le résidu issu de la restitution brute oscille entre 0.1 et 0.3 mW.m⁻².sr⁻¹.(cm⁻¹)⁻¹. Dans l'intervalle spectral 1240-1260 cm⁻¹, la différence entre les deux résidus est plus faible et comprise entre 10 et 30%, ceux-ci variant entre 0.1 et 0.2 mW.m⁻².sr⁻¹.(cm⁻¹)⁻¹. Dans cet intervalle, cette diminution de l'écart entre les deux résidus peut-être expliquée par un calcul de radiance plus délicat, en raison d'une sensibilité plus importante de la radiance aux paramètres restitués, notamment des paramètres de surface tels que la température et l'émissivité.

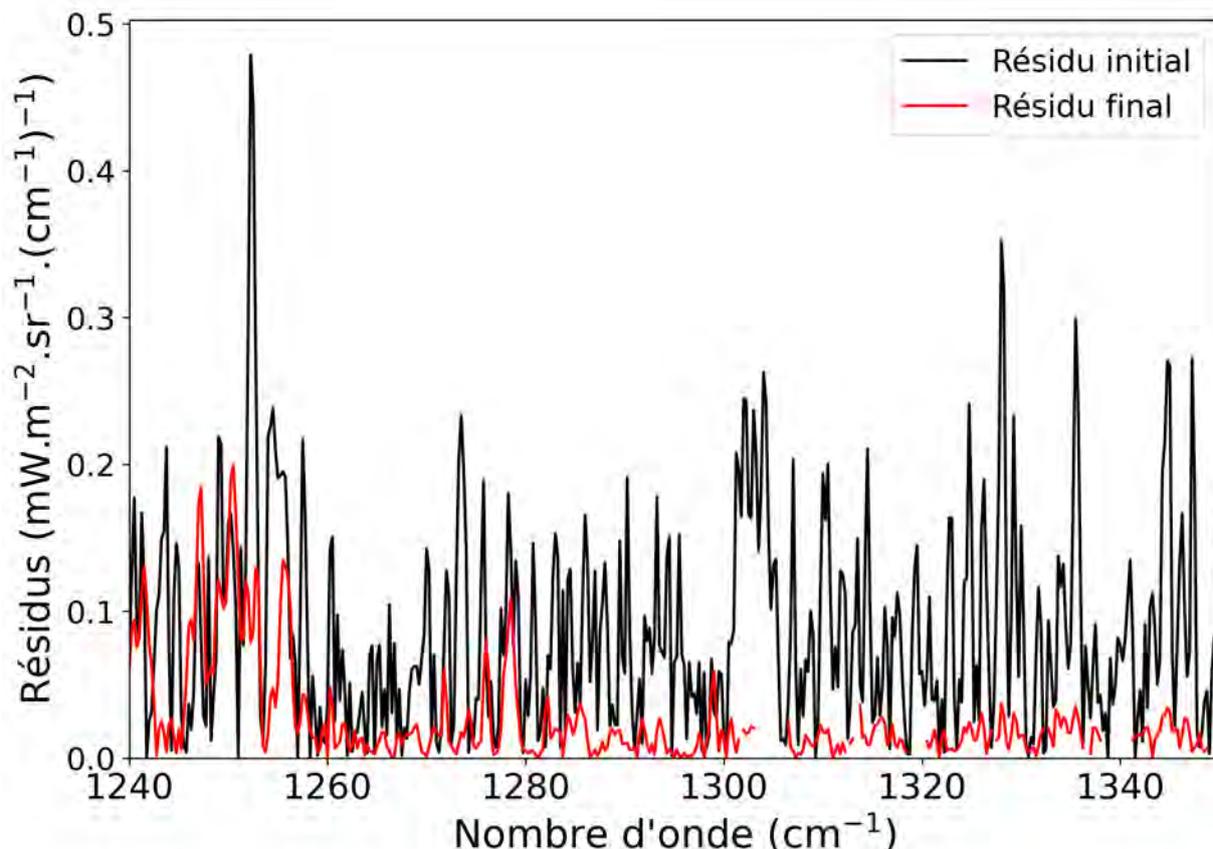


FIGURE 3.14 – Résidus entre les radiances observées et calculées par RTTOV v12.3 issus des inversions de données initiales (noir) et résultantes de la calibration des radiances calculées (rouge) du jeu de données "HIPPO/NOAA" dans la bande spectrale B1_{N₂O}.

3.5 TN₂OR v1.7 vs TN₂OR v2.0

Deux versions de TN₂OR ont été développées durant cette thèse. La mise à jour majeure entre les deux versions fut le changement de version de RTTOV. TN₂OR v1.7 utilise RTTOV v11.2 et TN₂OR v2.0 utilise RTTOV v12.3. En plus du changement de version de RTTOV, une mise à jour a été effectuée sur la grille d'inversion des profils atmosphériques (tableau 3.2). Au préalable, dans TN₂OR v1.7, les 13 niveaux de pressions fixes utilisés dans la grille d'inversion correspondent à 13 niveaux de pression choisis de manière équirépartie sur la grille verticale de MIPAS, initialement sur 121 niveaux de pression. Chacune de ces grilles est donc constituée de 13 niveaux d'inversion fixes et d'un niveau d'inversion supplémentaire correspondant à la pression de surface du pixel de IASI.

3.5. TN₂OR v1.7 vs TN₂OR v2.0

TABLE 3.2 – Grilles d’inversion utilisées dans TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0.

Niveaux d’inversion	Pression des niveaux d’inversion (hPa)	
	TN ₂ OR v1.7	TN ₂ OR v2.0
1	0.0196	0.1
2	1.04086	1.0
3	10.34	10.0
4	104.369	100.0
5	228.348	200.0
6	308.96	300.0
7	357.603	400.0
8	473.437	500.0
9	541.644	600.0
10	617.614	700.0
11	702.227	800.0
12	901.083	900.0
13	1017.0	1000.0
14	P _s	P _s

Pour la version 1.7 de TN₂OR, les erreurs sur les paramètres a priori autres que le N₂O ont été estimées à partir des résultats d’évaluation des restitutions de N₂O, comparées aux mesures des profils HIPPO et NOAA (Chalinel et al., 2022) sur de très nombreuses expériences menées au cours de cette thèse. En plus de cette méthode d’estimation des erreurs appliquée avec TN₂OR v1.7, les modifications apportées sur les erreurs a priori pour TN₂OR v2.0 sont déduites des erreurs estimées sur les différentes données citées dans la littérature. L’erreur de 1% sur le profil a priori de CH₄ de MACC provient d’une incertitude typique de 20 ppbv (1-1.5%) dans la troposphère, selon Massart et al. (2014). Les erreurs fixées sur les paramètres a priori de température (0.5 K), de température de surface (1.5 K) et de vapeur d’eau (10%) sont cohérentes avec les erreurs d’inversions obtenues par EUMETSAT avec ces mêmes paramètres, avec respectivement 0.6 K, 2.0 K et 10% (Pougatchev et al., 2009). Dans le cas des études de sensibilités de IASI/Metop-A au N₂O menés dans Ricaud et al. (2021) dans les bandes B_{2N₂O} et B_{3N₂O}, ces erreurs a priori sont tirées de Kangah (2017). Les erreurs de l’ensemble des paramètres a priori sont présentées dans le tableau 3.3.

Les restitutions de N₂O de TN₂OR v1.7 et v2.0 ont été validées avec le jeu de données décrit dans la partie 3.4.2, de même que la calibration des radiances calculées par RTTOV v12.3. Ces inversions de données de N₂O ont été produites à partir du calcul des radiances

Chapitre 3. L'outil d'inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

TABLE 3.3 – Synthèse de la configuration des paramètres pour les outils d'inversion TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0 en fonction des 3 bandes spectrales du N₂O B1_{N₂O}, B2_{N₂O} et B3_{N₂O} : information et erreurs associées sur les a priori de N₂O, CH₄, H₂O, O₃, CO₂, CO, température (T), température de surface (T_s) et émissivité de surface (ε). Les cellules barrées indiquent qu'il n'y a pas eu de restitution menée à partir des calculs de radiances spectrales dans B2_{N₂O} et B3_{N₂O} pour TN₂OR v2.0.

Paramètre	Bande spectrale	A priori	Erreur sur l'a priori	
			TN ₂ OR v1.7 (RTTOV v11.2)	TN ₂ OR v2.0 (RTTOV v12.3)
N ₂ O	B1 _{N₂O} B2 _{N₂O} B3 _{N₂O}	HIPPO+LMDz (fig. 3.11-droite)	0.8%	0.8%
CH ₄	B1 _{N₂O}	MACC (≤2011) CAMS (≥2012)	2%	1%
H ₂ O	B1 _{N₂O} B2 _{N₂O} B3 _{N₂O}	IASI/EUMETSAT	20%	10%
CO ₂	B2 _{N₂O}	MIPAS	2%	
CO	B2 _{N₂O}	MACC (≤2011) CAMS (≥2012)	20%	
O ₃	B2 _{N₂O}	MIPAS	30%	
T	B1 _{N₂O} B2 _{N₂O} B3 _{N₂O}	IASI/EUMETSAT	0.5 K	0.5 K
T _s	B1 _{N₂O} B2 _{N₂O} B3 _{N₂O}	IASI/EUMETSAT	1.5 K	1.5 K
ε	B1 _{N₂O} B2 _{N₂O} B3 _{N₂O}	Atlas de RTTOV	0.15	0.15

spectrales dans la bande B1 du N₂O (1240-1350 cm⁻¹).

3.5.1 Radiances

La mise à jour de TN₂OR v1.7, devenant ainsi TN₂OR v2.0, notamment au niveau du transfert radiatif (de RTTOV v11.2 à RTTOV v12.3) et de la grille d'inversion, permet de constater en premier lieu une amélioration apportée sur les calculs des radiances spectrales par RTTOV v12.3 dans la bande spectrale B1. En effet, en observant la figure 3.15, on

3.5. TN₂OR v1.7 vs TN₂OR v2.0

constate sur un grand nombre de canaux de IASI une diminution de la valeur absolue du résidu moyen entre les radiances calculées par RTTOV et les radiances observées de IASI, en particulier dans la bande spectrale d'absorption du N₂O située entre 1250 et 1310 cm⁻¹. Dans la fenêtre spectrale 1265-1270 cm⁻¹, le résidu moyen diminue en moyenne de $\sim 0.025 \text{ mW.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{(cm}^{-1}\text{)}^{-1}$, de même que dans la fenêtre comprise entre 1285 et 1290 cm⁻¹. La diminution du résidu moyen est plus faible dans la gamme 1290-1310 cm⁻¹ ($\sim 0.01\text{-}0.02 \text{ mW.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{(cm}^{-1}\text{)}^{-1}$). Au-delà de 1310 cm⁻¹, région spectrale d'intérêt pour la restitution du CH₄ (sans interférence du signal dû à la signature spectrale du N₂O), on peut noter une légère diminution à certains canaux (autour de 1320, 1330 et 1340 cm⁻¹) quand le reste du résidu est inchangé entre les deux versions de TN₂OR. Cependant, on peut constater une dégradation du résidu moyen dans la fenêtre 1240-1255 cm⁻¹, région du spectre où la radiance est sensible à tous les paramètres inversés (fig. 3.12), avec une augmentation du résidu comprise entre 0.02 et 0.04 mW.m⁻².sr⁻¹.(cm⁻¹)⁻¹. Cette différence est toutefois relative car il faut prendre en considération que, dans cette gamme spectrale, le signal est bien plus fort qu'ailleurs dans la bande 1240-1350 cm⁻¹ (fig. 3.2), ce que montre d'ailleurs la différence des écarts relatifs entre les résidus ($\sim 0.1\%$) entre 1240 et 1255 cm⁻¹.

3.5.2 Jeu de données "HIPPO/NOAA"

Le jeu de données "HIPPO/NOAA" est décrit comme étant chaque mesure de IASI coïncidant avec les mesures des campagnes aéroportées HIPPO 1-5 entre 2009 et 2011 et NOAA datant de l'année 2011. On estime que les données IASI coïncident avec les mesures de HIPPO et NOAA lorsque celles-ci sont comprises dans un intervalle temporel de ± 12 heures et éloignées du point de mesure de 200 km maximum.

3.5.2.1 Observations IASI vs mesures aéroportées

Les corrélations entre les restitutions de N₂O de IASI et les mesures de N₂O effectuées lors des campagnes aéroportées HIPPO 1-5 et NOAA sur la période 2009-2011 ont été réalisées en utilisant la méthode appliquée dans Chalinel et al. (2022). Outre le fait d'avoir modifié les niveaux de pression, la version TN₂OR v2.0 a permis d'améliorer la corrélation entre les restitutions de N₂O de IASI et les mesures convoluées de N₂O par les fonctions de

Chapitre 3. L'outil d'inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

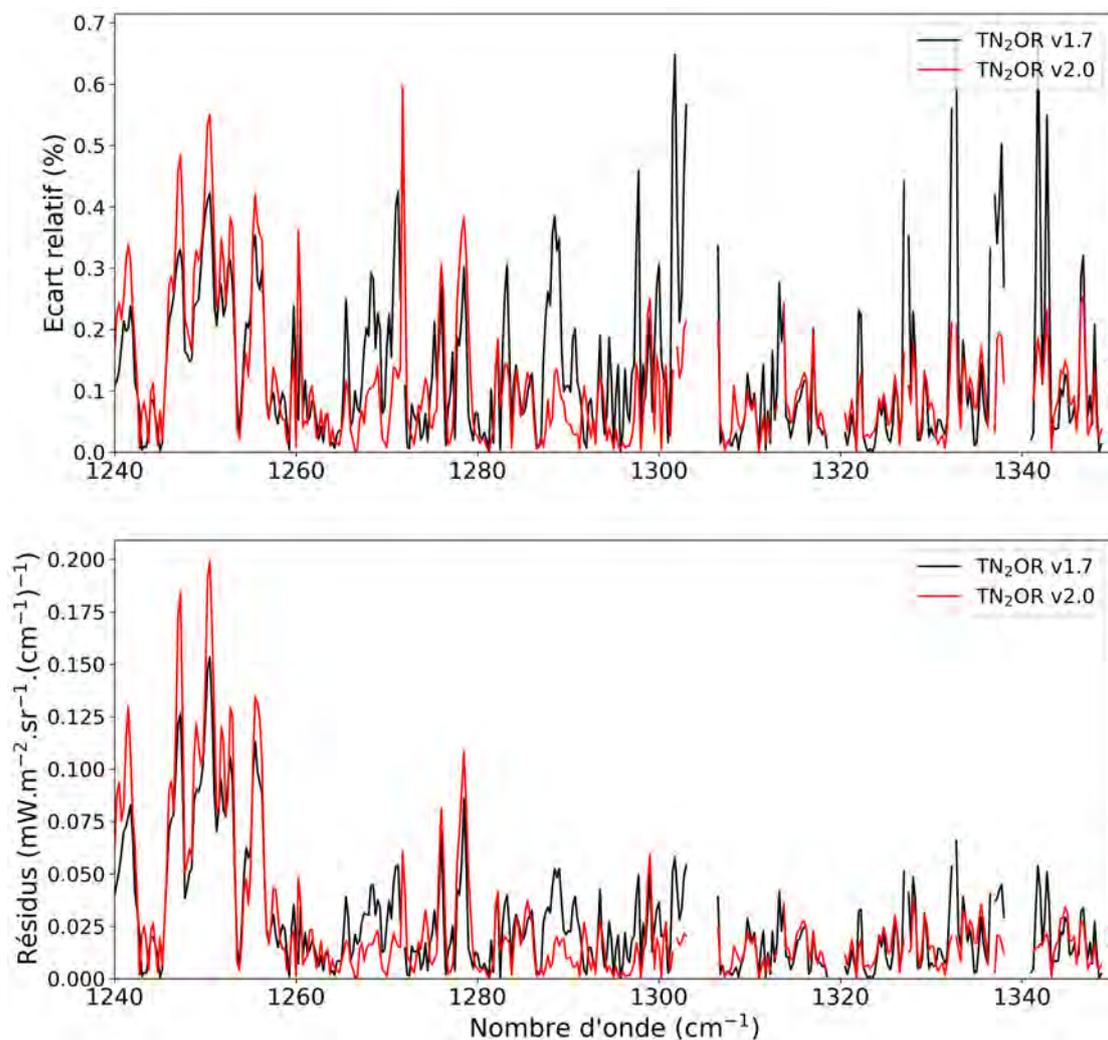


FIGURE 3.15 – (Haut) Valeur absolue de l'écart relatif entre la moyenne des radiances spectrales observées par IASI et la moyenne des radiances calculées par RTTOV v11.2 pour TN₂OR v1.7 (noir) et RTTOV v12.3 pour TN₂OR v2.0 (rouge) pour le jeu données "HIPPO/NOAA" dans la gamme spectrale 1240-1350 cm⁻¹. (Bas) Résidus entre la moyenne des radiances observées par IASI et la moyenne des mêmes radiances calculées dans la même gamme spectrale avec TN₂OR v1.7 (noir) et TN₂OR v2.0 (rouge).

balayage de N₂O de IASI de l'ensemble des données avions (fig. 3.16). En effet, au niveau le plus sensible, à 300 hPa, cette corrélation augmente de 0.12 (+18%) en passant de 0.65 à 0.77. Cet écart s'accroît lorsque la pression augmente, notamment autour de 500 hPa, où cette fois-ci, la corrélation augmente de 0.16 (+27%), passant de 0.58 à 0.74. Une autre amélioration de la version de TN₂OR est à noter. Le biais moyen de N₂O observé entre les données de IASI et celles des données des campagnes aéroportées se rapproche de 0. Il

3.5. TN₂OR v1.7 vs TN₂OR v2.0

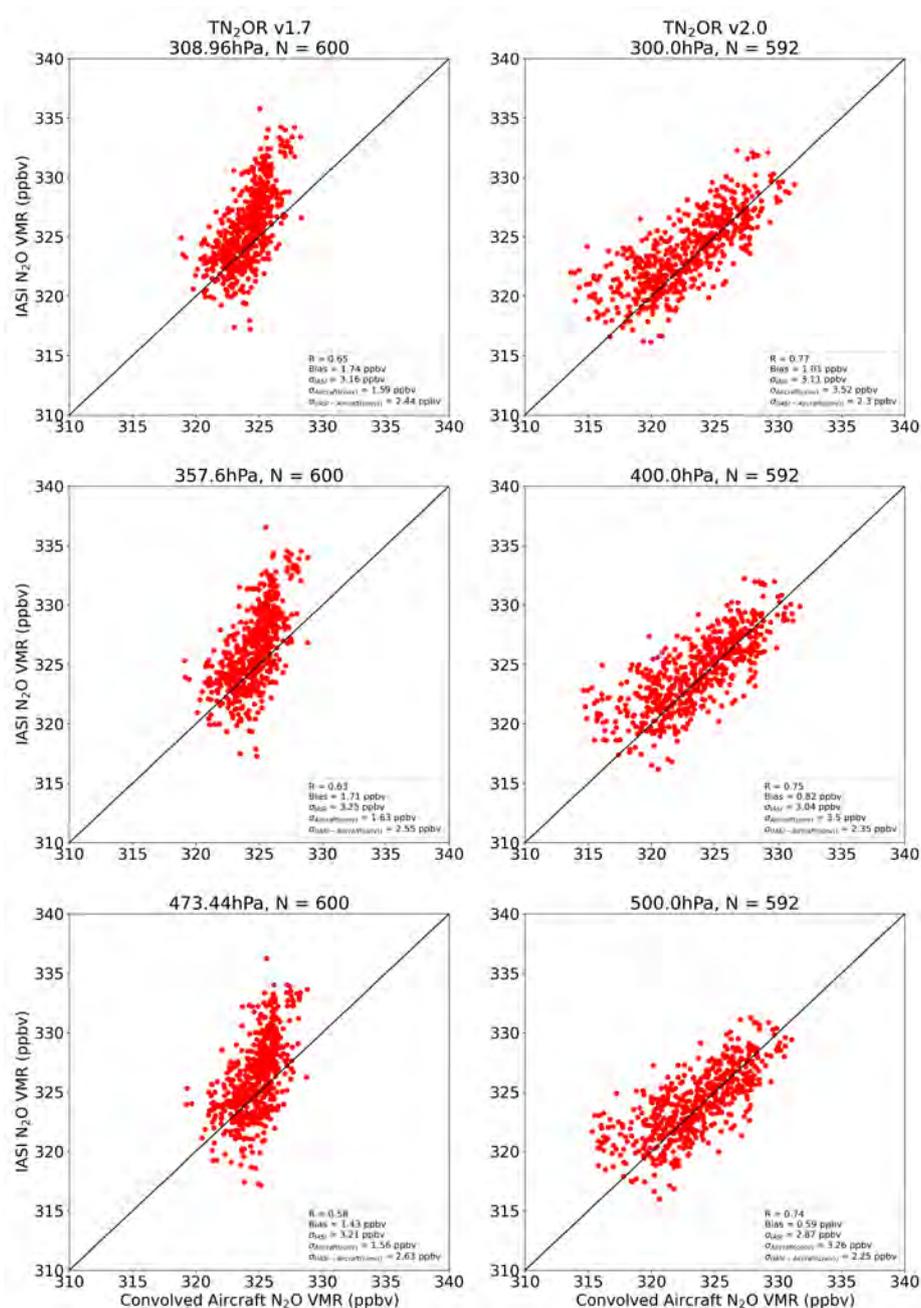


FIGURE 3.16 – Comparaison entre les restitutions des rapports de mélange de N₂O de IASI (ppbv) du jeu de données "HIPPO/NOAA" et les mesures des rapports de mélange de N₂O convoluées des campagnes HIPPO 1-5 et NOAA (ppbv) pour 3 niveaux de pressions similaires. À gauche, résultats obtenus avec TN₂OR v1.7. À droite, résultats obtenus avec TN₂OR v2.0. En haut, résultats obtenus aux niveaux de pression 308.96 hPa (TN₂OR v1.7) et 300 hPa (TN₂OR v2.0). Au milieu, résultats obtenus aux niveaux de pression 357.6 hPa (TN₂OR v1.7) et 400 hPa (TN₂OR v2.0). En bas, résultats obtenus aux niveaux de pression 473.44 hPa (TN₂OR v1.7) et 500 hPa (TN₂OR v2.0).

Chapitre 3. L'outil d'inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

diminue de 42% entre TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0 aux niveaux 300/308.96 hPa, passant de 1.74 à 1.01 ppbv. À l'instar de la corrélation, la différence des biais moyens obtenus entre les deux versions de TN₂OR s'accroît à mesure que la pression augmente. Aux niveaux 357.6/400 hPa, le biais diminue de 52%, variant de 1.71 à 0.82 ppbv. Cet écart s'accroît à nouveau aux niveaux 473.44/500 hPa, en passant de 1.43 à 0.59 ppbv, soit une diminution du biais moyen de 59%. De plus, la différence majeure à noter entre les deux versions de TN₂OR est l'écart entre les variabilités des rapports de mélange du N₂O de IASI et ceux des mesures de N₂O convoluées des campagnes aéroportées HIPPO 1-5 et NOAA. Avec TN₂OR v1.7, l'écart entre la variabilité des restitutions de N₂O de IASI et les mesures convoluées des données avions varient d'un facteur ~ 2 , quel que soit le niveau de pression. Pour TN₂OR v2.0, cet écart varie autour d'un facteur égal à ~ 0.88 , quel que soit le niveau de pression, soit un écart plus proche de 1 que l'écart obtenu pour TN₂OR v1.7. Enfin les variabilités des rapports de mélange de N₂O de IASI avec TN₂OR sont davantage proches des 0.8% déduits de la variabilité des mesures de N₂O de HIPPO autour de 300 hPa. Pour un a priori de N₂O à 300 hPa correspondant à 324 ppbv, sa variabilité de 0.8% correspond à 2.6 ppbv. L'écart reste plutôt faible aux niveaux 308.96/300 hPa par rapport à l'erreur sur l'a priori de N₂O en passant de 3.16 ppbv pour TN₂OR v1.7 à 3.11 ppbv pour TN₂OR v2.0. En revanche, cette différence augmente aux niveaux de pressions supérieures. À 357.6/400 hPa, la variabilité de N₂O de IASI diminue davantage entre les deux versions, de 3.25 ppbv pour TN₂OR v1.7 à 3.04 ppbv pour TN₂OR v2.0. Puis aux niveaux 473.44/500 hPa, celle-ci diminue de 3.21 à 2.87 ppbv respectivement pour TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0. Le tableau 3.4 permet de synthétiser les résultats obtenus sur la figure 3.16.

TABLE 3.4 – Synthèse de la comparaison entre les restitutions de N₂O de IASI et les mesures des campagnes aéroportées HIPPO 1-5 et NOAA entre 2009 et 2011 respectivement avec TN₂OR v1.7 et TN₂OR v2.0.

Pression		P=308.96 /300 hPa	P=357.6 /400 hPa	P=473.44 /500 hPa
Corrélation	v2.0 - v1.7 (ppbv)	+0.12	+0.12	+0.16
	v2.0 vs v1.7 (%)	+18	+19	+27
Biais moyen	v2.0 - v1.7 (ppbv)	-0.73	-0.89	-0.84
	v2.0 vs v1.7 (%)	-42	-52	-59

3.5. TN₂OR v1.7 vs TN₂OR v2.0

3.5.2.2 Sensibilité verticale

Avec le jeu de données "HIPPO/NOAA", la sensibilité verticale de IASI au N₂O pour la version 2.0 de TN₂OR varie très peu par rapport à celle obtenue avec TN₂OR v1.7. Sur la figure 3.17, la moyenne des matrices des fonctions de balayage du N₂O de IASI sur la zone HIPPO 1-5 et NOAA est maximale à 300 hPa pour TN₂OR v2.0 et à 357.6 hPa pour TN₂OR v1.7. À leur pic de sensibilité respectif, IASI est davantage sensible à 300 hPa avec TN₂OR v2.0 qu'à 357.6 hPa avec TN₂OR v1.7 (~ 0.20 vs ~ 0.17). On peut néanmoins observer que non seulement, en moyenne, la sensibilité verticale diminue très légèrement aux niveaux inférieurs pour TN₂OR v2.0 par rapport à TN₂OR v1.7, où à 473.4 hPa, les fonctions de balayage sont comprises entre 0.10 et 0.15 pour les niveaux compris entre 473.4 et 1017 hPa, tandis que pour les niveaux équivalents à pression équivalente, les fonctions de balayage sont comprises entre 0.07 et 0.13 avec TN₂OR v2.0. De plus, le degré de liberté (DOF) moyen diminue également légèrement, passant de 1.015 pour TN₂OR v1.7 à 0.976 pour TN₂OR v2.0 (-3.8%). On peut remarquer cependant que pour TN₂OR v2.0, IASI est plus sensible au N₂O dans la tropopause, autour de 100 hPa. Quand les fonctions de balayage n'atteignent pas 0.10 à cette pression, quel que soit le niveau de pression considéré, celles-ci sont comprises entre 0.07 et 0.13 pour TN₂OR v2.0.

On peut observer, toujours sur la figure 3.17, que la majorité des DOF des matrices des fonctions de balayage du N₂O est concentrée autour de 1.1 pour les versions 1.7 et 2.0 de TN₂OR. On note en revanche que la densité de restitutions, dont le DOF est compris autour de 1.1, est inférieure pour TN₂OR v2.0 par rapport à TN₂OR v1.7 (~ 13000 vs ~ 17000). Pour TN₂OR v2.0, les pixels restants présentent un DOF en deçà de 0.8, avec une densité comprise entre 0 et 2000. Cela signifie que, en général, IASI est légèrement plus sensible au N₂O sur le profil verticale pour TN₂OR v1.7 que pour TN₂OR v2.0.

À la vue des résultats obtenus pour les deux versions de TN₂OR et des différences constatées, le gain apporté par la mise à jour de TN₂OR est bien plus important, notamment sur l'augmentation de la corrélation (+27%) des comparaisons des concentrations de N₂O entre les restitutions de IASI et les données "HIPPO/NOAA" (fig. 3.16 et tab. 3.4), que la perte estimée de la sensibilité sur la colonne (-4% de DOF) et dans la moyenne-haute troposphère (350-500 hPa). La version 2.0 de TN₂OR est donc la version finale de thèse, bien que la version v1.7 fut utilisée au préalable dans Ricaud et al. (2021) pour l'étude du projet instrumental MIN₂OS (la version v2.0 ayant été finalisée après publication). Le

Chapitre 3. L'outil d'inversion TN₂OR : protocole expérimental et paramétrisation

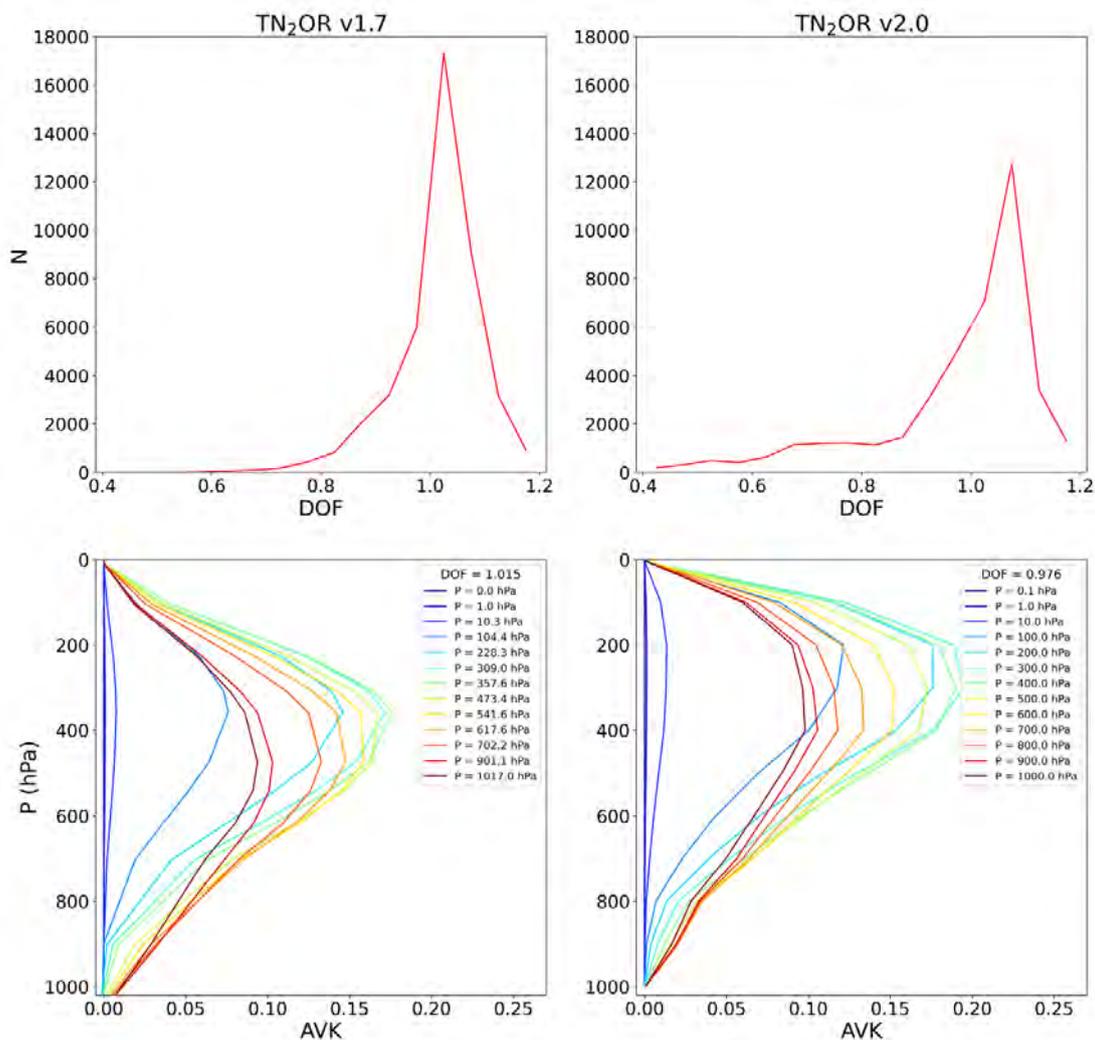


FIGURE 3.17 – (Haut) Distribution des degrés de liberté (DOF = "Degree Of Freedom") des restitutions du jeu de données décrits dans la partie 3.4.2 obtenus tous les 0.5 DOF. (Bas) Moyenne des matrices des fonctions de balayage (AVK = "Averaging Kernels") sur ce même jeu de données en fonction de la pression (hPa). À gauche, résultats obtenus avec TN₂OR v1.7. À droite, résultats obtenus avec TN₂OR v2.0.

chapitre 4 lui est d'ailleurs entièrement consacrée. Une évaluation complète de TN₂OR v2.0 fait d'ailleurs l'objet d'une soumission d'article à la revue *Remote sensing*. Cet article correspond à la première partie du chapitre 4.

Chapitre 4

Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A

Sommaire

4.1	Résumé de Chalinel et al. (2022)	103
4.2	Chalinel et al. (2022)	105
4.3	Comparaison du N ₂ O de IASI obtenu avec TN ₂ OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM	137
4.3.1	Variabilité annuelle du N ₂ O	137
4.3.2	Variabilités saisonnières du N ₂ O	141
4.3.3	Synthèse	148

4.1 Résumé de Chalinel et al. (2022)

Cette étude porte tout d'abord sur la sensibilité verticale et la caractérisation des erreurs des restitutions de N₂O issues des observations de IASI dans la bande spectrale B1 du N₂O, et produites à l'aide de l'outil d'inversion TN₂OR v2.0. Ces restitutions sont ensuite évaluées en utilisant deux jeux de données. Le premier est l'ensemble des mesures

Chapitre 4. Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A

des campagnes HIPPO1-5 et NOAA, entre 2009 et 2011 en coïncidence temporelle de moins de 12 heures et spatiale de moins de 200 km. Ces mesures sont extrapolées par le modèle LMDz-INCA v6 (Hauglustaine et al., 2004). Le second correspond aux données de N₂O de 2011 des spectromètres infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) de 9 stations du réseau NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change). Enfin, des observations de N₂O de IASI à l'échelle globale ont également été produites pour l'ensemble de l'année 2011.

Les résultats montrent, à l'instar de Kangah et al. (2017), une sensibilité verticale maximum de IASI au N₂O dans la haute troposphère (~ 300 hPa). À cette pression et avec TN₂OR v2.0, les valeurs des matrices de fonctions de balayage sont comprises entre 0.20 et 0.25, et ce pour les mesures de IASI effectuées dans des conditions favorables, c'est-à-dire en période d'été boréal (hémisphère nord) et d'été austral (hémisphère sud) durant la journée (9h30 en phase descendante de IASI). Pour certains pixels, on obtient un niveau supplémentaire de sensibilité situé dans la moyenne troposphère, en particulier autour de 500 hPa. Dans ces mêmes conditions, les degrés de liberté des profils restitués (DOF=Degree Of Freedom) sont supérieurs à 1.2. À l'échelle globale, les DOFs sont en grande partie supérieurs à 0.9 et peuvent atteindre jusqu'à 1.3. Ces valeurs maximales sont observées sur les continents et en été où les conditions de mesures sont optimales. Les erreurs aléatoires sur les mesures sont minimales entre 300 et 500 hPa ($\simeq 0.65\%$), aux endroits mêmes où la sensibilité verticale est la plus importante. À l'échelle globale et à 300 hPa, c'est dans l'hémisphère nord durant l'hiver boréal que les erreurs totales sur les restitutions sont les plus grandes, entre 0.65 et 0.7%, quand entre 40°S et 30°N de latitude, ces mêmes erreurs sont comprises entre 0.6 et 0.65%. En outre, ces erreurs sont en partie dues à la contamination des autres paramètres restitués par TN₂OR v2.0 sur le N₂O, notamment la température ($\simeq 0.55\%$ à 300 hPa) ainsi que le CH₄ et H₂O ($\simeq 0.1\%$ à 300 hPa).

Les données de N₂O de TN₂OR v2.0 issues des observations IASI sont comparées dans un premier temps avec les campagnes aéroportées HIPPO 1-5 et NOAA entre 2009 et 2011. Les mesures avion de N₂O coïncidentes avec les données IASI ont préalablement été convoluées par les fonctions de balayage du N₂O. À 300 hPa, les restitutions de N₂O possèdent une corrélation de 0.77 avec les profils N₂O de HIPPO et NOAA confondus. De plus, à ce niveau de pression, les données N₂O de IASI possèdent un biais moyen positif d'environ 1.01 ppbv avec les mesures de N₂O des campagnes aéroportées. Les restitutions

4.2. Chalinel et al. (2022)

ont une variabilité assez proche de celles des mesures avion. En effet, les rapports de variabilité entre les données IASI et les données avions sont de 0.88 (respectivement 3.11 vs 3.52 ppbv à 300 hPa). Aussi, les comparaisons des variations latitudinales de ces mêmes jeux de données montrent des tendances similaires sur la position des maxima et des minima. Les maxima sont présents dans les régions subtropicales, avec respectivement un écart inférieur à 1 ppbv entre les maxima de N₂O des données avions et ceux de IASI. Les minima sont quant à eux positionnés aux hautes latitudes avec un biais positif entre les données IASI et aéroportées compris entre 2 et 3 ppbv. Temporellement, les concentrations de N₂O de IASI et des données avions présentent un maximum d'une valeur de 327 ppbv en août. Les biais entre les deux jeux de données sont très faibles (≤ 1 ppbv). Dans un second temps, les produits de N₂O de IASI/Metop-A avec TN₂OR v2.0, sont comparés avec les données de N₂O des (FTIR) présents sur 9 stations du réseau NDACC pour l'année 2011. Les données de N₂O de IASI et celles de NDACC sont les plus cohérentes dans l'hémisphère nord. Selon les stations, la corrélation varie entre 0.50 et 0.9, le maximum étant à St-Petersbourg. Les biais obtenus entre ces deux jeux de données sont pour la plupart positifs et compris entre -1 et 7 ppbv. La cause est en partie liée au fort biais constaté entre l'a priori de N₂O de IASI et ceux du NDACC. De plus, les variabilités de N₂O mesurées par les stations NDACC sont, en grande partie, au moins 2 fois supérieures à celles mesurées par IASI. Ceci peut être justifié par la sensibilité au N₂O des FTIR, instrument à visée ascendante, par rapport à celle de IASI, instrument à visée descendante.

Enfin, les cartographies à l'échelle globale du N₂O de IASI moyennées sur les périodes juin, juillet et août (JJA) 2011 ainsi que décembre 2010, janvier et février (DJF) 2011 présentent, à 300 hPa, des maxima de N₂O supérieurs à 330 ppbv au-dessus de l'Afrique équatoriale expliqués par le mouvement convectif provoqué par les cellules de Walker (Ricaud et al., 2009), et de l'Amazonie. Ces maxima sont d'ailleurs très prononcés durant la période DJF. On retrouve également le gradient est-ouest positif dans le bassin méditerranéen observé dans Kangah et al. (2017) pendant la période JJA. La variation latitudinale observée sur les cartographies est cohérente avec les observations et comparaisons des variations latitudinales des mesures de N₂O de HIPPO et NOAA, avec des maxima tropicaux et des minima aux hautes latitudes, tout au long de l'année.

4.2 Chalinel et al. (2022)



Article

Evaluation and Global-Scale Observation of Nitrous Oxide from IASI on Metop-A

Rémi Chalinel ¹, Jean-Luc Attié ^{1,*}, Philippe Ricaud ², Jérôme Vidot ³, Yannick Kangah ⁴,
Didier Hauglustaine ⁵ and Rona Thompson ⁶

¹ LAERO-Laboratoire d'Aérodynamique, Université de Toulouse, UPS, CNRS, 14 Avenue Edouard Belin, 31400 Toulouse, France; remi.chalinel@aero.obs-mip.fr

² CNRM-Centre National de Recherches Météorologiques, Université de Toulouse, Météo-France, CNRS, 42 Avenue Gaspard Coriolis, CEDEX, 31057 Toulouse, France; philippe.ricaud@meteo.fr

³ CEMS-Centre d'Études en Météorologie Satellitaire, CNRM, Météo-France, CNRS, Avenue de Lorraine, CEDEX, 22307 Lannion, France; jerome.vidot@meteo.fr

⁴ SPASCIA-Space Science Algorithmics, Parc Technologique du Canal, 14 Avenue de l'Europe, 31520 Ramonville Saint Agne, France; yannick.kangah@spascia.fr

⁵ LSCE-Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Institut Pierre-Simon Laplace, CEA Saclay, Orme des Merisiers, 91191 Gif-sur-Yvette, France; didier.hauglustaine@lscce.ipsl.fr

⁶ NILU-Norsk Institutt for Luftforskning, Instituttveien 18, 2007 Kjeller, Norway; rlt@nilu.no

* Correspondence: jean-luc.attie@aero.obs-mip.fr

Abstract: Nitrous oxide (N₂O) is a greenhouse gas difficult to estimate by satellite because of its weak spectral signature in the infra-red band and its low variability in the troposphere. Nevertheless, this study presents the evaluation of new tropospheric N₂O observations from the Infrared Atmospheric Sounder Interferometer (IASI) on Metop-A using the Toulouse N₂O Retrieval Version 2.0 tool. This tool is based on the Radiative Transfer for Tiros Operational Vertical sounder (RTTOV) model version 12.3 coupled to the Levenberg-Marquardt optimal estimation method enabling the simultaneous retrieval of methane, water vapour, temperature profiles together with surface temperature and emissivity within the 1240–1350 cm⁻¹ window. In this study, we focused on the upper troposphere (300 hPa) where the sensitivity of IASI is significant. The IASI N₂O data has been evaluated using aircraft N₂O observations from the High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations (HIPPO) campaigns in 2009, 2010, and 2011 and from the National Oceanic and Atmospheric Administration's (NOAA) Global Greenhouse Gas Reference Network (GGGRN) in 2011. In addition, we evaluated the IASI N₂O using ground-based N₂O measurements from 9 stations belonging to the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC). We found a total random error of ~2 ppbv (0.6%) for one single retrieval at 300 hPa. Under favorable conditions, this error is also found in the vertical level pressure range 300–500 hPa. It decreases rapidly to ~0.4 ppbv (0.1%) when we average on a 1° × 1° box. In addition, independent observations allows the estimation of bias with the IASI TN₂OR v2.0 N₂O. The bias between IASI and aircraft N₂O data at 300 hPa is ~1.0 ppbv (~0.3%). We found an estimated random error of ~2.3 ppbv (~0.75%). This study also shows relatively high correlations between IASI data and aircraft in situ profiles but more varying correlations over the year 2011 depending on the location between IASI and NDACC remote sensing data. Finally, we present daily, monthly, and seasonal IASI N₂O horizontal distributions in the upper troposphere as well as cross sections for different seasons that exhibit maxima in the Tropical band especially over Africa and South America.

Keywords: nitrous oxide; space-borne observations; validation; IASI; HIPPO; NDACC; NOAA airborne observations



Citation: Chalinel, R.; Attié, J.-L.; Ricaud, P.; Vidot, J.; Kangah, Y.; Hauglustaine, D.; Thompson, R.L. Evaluation and Global-Scale Observation of Nitrous Oxide from IASI on Metop-A. *Remote Sens.* **2022**, *14*, 1403. <https://doi.org/10.3390/rs14061403>

Academic Editors: Filomena Romano and Elisabetta Ricciardelli

Received: 27 January 2022

Accepted: 4 March 2022

Published: 14 March 2022

Publisher's Note: MDPI stays neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.



Copyright: © 2022 by the authors. Licensee MDPI, Basel, Switzerland. This article is an open access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution (CC BY) license (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

1. Introduction

After water vapor (H₂O), carbon dioxide (CO₂) and methane (CH₄), nitrous oxide (N₂O), with a lifetime of 116 years [1], is the most important greenhouse gas (GHG)

contributing to global warming [2]. It has a global warming potential 296 times higher than that of CO₂ on a mass basis over a 100-year horizon. Consequently, N₂O has a radiative forcing that is equivalent to ~10% that of CO₂, although it is 1000 times less abundant. Furthermore, emissions of N₂O are currently the most important emissions with respect to stratospheric ozone depletion and are impeding the recovery of the ozone hole [3]. N₂O emissions increased by 0.25–0.30% yr⁻¹ over the past 10 years [4] and are very likely to keep increasing until 2100 [2] in the majority of socio-economic scenarios. Emissions of N₂O are largely driven by the microbial processes of nitrification and denitrification occurring in soils, the ocean and freshwater systems [5]. In addition, there is a smaller source of abiotic emission through incomplete combustion and some industrial processes. About 57% of the global total emission of N₂O (~17 TgN yr⁻¹) is naturally occurring and the remaining is anthropogenic [4]. Anthropogenic emissions are dominated by agriculture (~52%) and are due to the perturbation of the nitrogen cycle through the addition of nitrogen in synthetic fertilizers and manure, while industrial and fossil fuel combustion contributes ~27% [4]. Once emitted, N₂O remains in the atmosphere and is only lost in the stratosphere via: (1) photodissociation and (2) oxidation by the oxygen radical O(1D) which is also the main pathway of stratospheric nitrogen oxide (NO) production involved in ozone (O₃) depletion [6].

Since 2003, Thermal InfraRed (TIR) measurements from satellite instruments such as the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), Atmospheric InfraRed Sounder (AIRS), Greenhouse Gases Observing Satellite (GOSAT and GOSAT-2) are available to retrieve the N₂O total column and upper tropospheric N₂O. In the TIR domain, on average, the sensitivity profile of the N₂O retrievals, as defined by the maximum of the averaging kernels, is mainly in the upper troposphere around 300 hPa for all the current sensors, AIRS [7], GOSAT [8] or IASI [9]. Initial studies have shown that it is possible to demonstrate long-range transport via the temporal and spatial variability of N₂O total column. In the tropics, the convergences of the Walker cells from the American continent and the Indian Ocean to the African continent produced a local maximum over Africa [10] revealed by IASI N₂O total columns processed by the European Organisation for the Exploitation of Meteorological Satellites (EUMETSAT). This showed the great potential of the IASI instrument to provide meaningful N₂O information on the global scale. In the extra-tropics over the Mediterranean basin, the summertime maximum of upper tropospheric N₂O observed by GOSAT in the East compared to the West [8] has been attributed to the impact of the Asian monsoon anticyclone, which redistributes the elevated N₂O concentration in the lower troposphere of the Indian sub-continent and Eastern China by uplift to the upper troposphere where it is transported towards Northern Africa and the Mediterranean basin [11]. Several IASI N₂O products have already been analyzed. Garcia et al. [12] studied the EUMETSAT total columns calculated by using a neural network technique [13] in the spectral band around 2200 cm⁻¹. They show that IASI observations can be used successfully to describe the seasonal and inter annual trend. Then, Garcia et al. [9] evaluated a first N₂O by-product issued from the retrieval of methane using the optimal estimation in the 1190–1400 cm⁻¹ spectral domain. They found a bias between IASI and HIPPO measurements of about 2%. The comparison between IASI and NDACC FTIR data confirms that the sensitivity is mainly limited to the UTLS region. Using similar techniques, Kangah [14] evaluated a first targeted N₂O product in the 1250–1310 cm⁻¹ against aircraft observations. The bias found between the two sets of data is about -1.6 ppbv and the R² is about 17%. In the same way, Barret et al. [15] evaluated a N₂O IASI by-product only over ocean and during nighttime in the 2160–2218 cm⁻¹ spectral domain. They compare IASI monthly mean over 10 years with NDACC FTIR data over three vertical layers within the troposphere and they found bias ranging from -17 to 4 ppbv in the northern hemisphere and -7.6 to 1.3 ppbv in the southern hemisphere.

In this study, we evaluate a new N₂O target product over the globe (daily, monthly and seasonally) with an unprecedented low random error and bias using an optimal estimation method in the 1240–1350 cm⁻¹ spectral window. The focus is on upper tropo-

sphere (300 hPa). The evaluation is done for the year 2011 using (1) the High-performance Instrumented Airborne Platform for Environmental Research Pole-to-Pole Observations (HIPPO) campaigns in 2009, 2010 and 2011, and the National Oceanic and Atmospheric Administration's (NOAA) Global Greenhouse Gas Reference Network (GGGRN) Aircraft Network flights from 2011, and (2) selected NDACC ground-based N₂O stations in 2011. We set up the Toulouse N₂O Retrieval (TN₂OR) version 2.0 by combining the Radiative Transfer for Tiros Operational Vertical sounder (RTTOV, version 12.3) model with the Levenberg-Marquardt optimal estimation method to simultaneously retrieve N₂O, CH₄, H₂O and temperature profiles, surface temperature and emissivity. This allows the characterization of the random error in the retrieval. Moreover, we use the aircraft and NDACC data to estimate the bias and to qualify the N₂O profiles. The structure of the article is as follows. The data and the method are described in Section 2. The TN₂OR v2.0 scientific tool is presented and the quality of the associated N₂O retrievals are assessed in Section 3. Section 4 presents the N₂O global-scale horizontal in the upper troposphere together with the N₂O vertical distributions retrieved with TN₂OR in 2011 at a daily, monthly and seasonal time-scale. Conclusions are presented in Section 5.

2. Data and Method

2.1. The IASI Space-Borne Instrument

The IASI instrument [16] is a spaceborne TIR spectrometer on board the platforms Metop-A, -B and -C. 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 EUMETSAT. The first satellite (Metop-A) was launched in October 2006, the second (Metop-B) in September 2012 and the third (Metop-C) in November 2018. The three satellites are operational at the present time. In the present paper, we are only considering the IASI instrument aboard the Metop-A satellite. The Metop satellite has a mean altitude of ~817 km, a mean local solar time at descending node of 09:30 and a repeat cycle of 29 days. IASI is a Michelson interferometer measuring the IR spectrum in the spectral range 645–2760 cm⁻¹ (15.5 to 3.62 μm). The apodized spectral resolution is about 0.5 cm⁻¹, but IASI provides each spectrum with a 0.25 cm⁻¹ sampling providing a total number of 8461 channels. The large spectral domain of IASI contains absorption bands of several atmospheric constituents among which the major absorbers such as H₂O, O₃, CO₂, N₂O, CH₄, CO together with temperature. 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 EUMETSAT operational IASI H₂O, temperature and O₃ products are retrieved simultaneously using an optimal estimation method [17–19] whereas total columns of the other molecules, including N₂O, are retrieved using artificial neural networks [13].

2.2. The HIPPO Campaigns

Five HIPPO airborne campaigns (<https://www.eol.ucar.edu/>, accessed on 18 February 2022), located mostly over the Pacific ocean between 67°S and 80°N, were used to assess the quality of the TN₂OR v2.0 IASI N₂O retrievals (Figure 1): 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). Consistent with the method explained in Kangah et al. [8], the measurements from the Harvard/Aerodyne Quantum Cascade Laser Spectrometer (QCLS), one of the airborne instruments of HIPPO, were used [20,21]. The QCLS instrument has a 1σ precision of 0.09 ppbv and an accuracy of 0.2 ppbv. The IASI N₂O profiles were selected within a collocated temporal and spatial window of ±200 km and ±12 h, respectively. Most importantly, we extended the HIPPO profiles above the ceiling altitude and below the lowest available altitude by using the corresponding profile from the Chemical Transport Model (CTM) LMDz-INCA version 6 (see [22]). We only took HIPPO profiles containing data with a tropospheric pressure range of at least 200 hPa. [23].

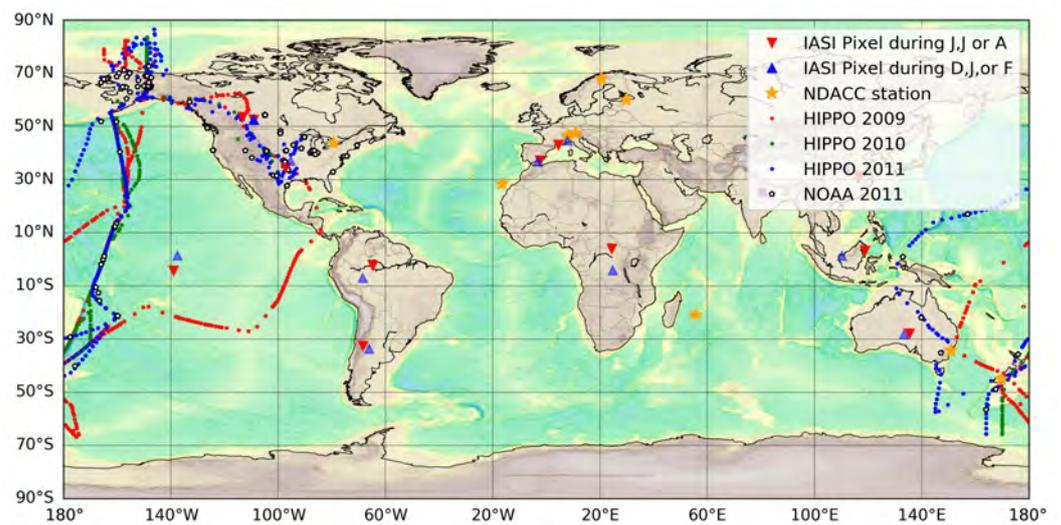


Figure 1. Locations of the observations used to assess the quality of the IASI N_2O data: NDACC ground-based stations (orange stars), HIPPO airborne measurements in 2009 (red circles), 2010 (green circles) and 2011 (blue circles), and the NOAA airborne campaigns in 2011 (black and white stars). Also shown is the location of the 24 IASI pixels (red triangles for June, July or August and blue triangles for December, January or February 2011). Dates and times of observations are listed in Table 1.

Table 1. Location, latitude, longitude, date, time, and surface pressure of the 24 IASI pixels used in our study measured in different periods. The 24 IASI pixels are also shown in Figure 1.

Pixel #	Location	Latitude	Longitude	Date /2011	Time /UT	Surface P. /hPa
1	Canada	52.55°N	109.13°W	11 June	17:04	934.7
2		53.48°N	113.35°W	24 December	04:50	936.54
3	France	46.92°N	0.41°W	4 July	10:44	998.73
4		49.51°N	1.89°E	8 February	11:04	1008.69
5	Spain	36.94°N	3.11°W	25 August	09:30	979.8
6		37.14°N	2.41°W	23 February	09:17	939.8
7	USA	37.09°N	95.41°W	15 June	15:44	977.8
8		34.41°N	97.23°W	15 February	17:08	984.37
9	China	34.55°N	111.68°E	7 June	01:39	944.15
10		31.46°N	116.41°E	2 December	02:49	1005.02
11	India	25.45°N	80.92°E	7 June	05:04	977.2
12		24.99°N	80.37°E	26 February	04:54	977.35
13	Congo Rainforest	4.09°S	24.77°E	7 July	08:14	943.86
14		4.11°N	24.43°E	16 February	08:29	944.33
15	Indonesia	1.28°N	110.2°E	24 August	01:35	985.84
16		3.22°N	118.82°E	8 January	12:53	1007.02
17	Pacific ocean	1.45°N	137.59°W	12 June	06:00	1010.93
18		4.28°S	139.03°W	5 December	06:09	1012.0
19	Amazonia	6.96°S	68.43°W	11 August	14:36	1000.62
20		2.32°S	64.77°W	30 December	13:29	1003.5
21	Australia	28.2°S	133.35°E	31 August	00:57	990.16
22		27.9°S	135.42°E	2 December	23:24	992.41
23	Argentina	33.62°S	66.15°W	22 August	14:15	960.27
24		32.57°S	68.4°W	24 December	14:01	948.56

2.3. The NOAA Airborne Campaigns

Airborne observations of N₂O dry-air mole fractions were taken from the regular aircraft profiles made by NOAA in 2011 (Figure 1). Discrete air samples (flasks) taken in the NOAA aircraft N₂O observations were performed using Gas Chromatography with an Electron Capture Detector (GC-ECD). For N₂O, the reproducibility is about 0.4 ppbv [24]. We finally selected 346 NOAA profiles, frequently measured in 2011 (~30 profiles per month) and mainly located over the United States, including Alaska. We extended these profiles with values from LMDz-INCA simulations, using the same methodology as for the HIPPO airborne data analyses (see Section 2.2).

2.4. The NDAAC N₂O Ground-Based Observations

The NDACC is composed of more than 70 globally distributed, ground-based remote-sensing research stations with more than 160 currently active instruments with the objectives of detecting changes and trends in atmospheric composition and to understand their impacts on the mesosphere, stratosphere, and troposphere by establishing a large database (<http://ndaccdemo.org/>, accessed on 18 February 2022). In our study, we used specifically measurements of N₂O profiles provided by Fourier-Transform IR (FTIR) spectrometers in 2011 at 9 stations. (see Figure 1). These instruments record mid-infrared solar transmission spectra at high spectral resolution. The spectra contain the spectral signatures of vibrational-rotational transitions of numerous trace gases in the terrestrial atmosphere as they absorb solar radiation. The spectra are analyzed to measure the concentration of these trace gases in the atmosphere using the method of optimal estimation. The precision of the FTIR is about 1% for N₂O and the bias about 2% [9,25]. Consequently, averaging kernels and a priori vertical profiles of N₂O are provided together with the total columns and vertical profiles.

2.5. The EUMETSAT Products

In the present work, the spectral radiances come from IASI level 1c spectra (calibrated and apodized spectra) provided by the EUMETSAT Data Centre (<https://www.eumetsat.int/iasi/>, accessed on 18 February 2022) and processed with the version 8.0 of the operational software. These files also contain information related to cloud contamination of the related pixels. We only selected cloud-free pixels to ensure the radiance is not contaminated by clouds. We also used the IASI level 2 data from the version 5 of the operational software provided by the EUMETSAT Data Centre. Water vapour profiles, temperature profiles, and surface temperature from this IASI Level 2 are used as a priori information in TN₂OR.

2.6. Methodology

To illustrate the methodology, we consider 24 representative pixels measured by IASI all over the globe but we only present 3 pixels (France, USA and Pacific Ocean) to highlight the methodology. The figures associated to the other pixels are shown in the supplementary materials. We systematically present: the brightness temperature sensitivity, the radiance residuals, the averaging kernels, the Degrees of Freedom of Signal (DOFS), the error characterizations and the contamination factor (CF) (see Section 3.4). The location of the 24 IASI pixels are shown in Figure 1 together with dates and times of observations presented in Table 1. Global-scale distributions of DOFS and total errors are shown for the austral summer (December–January–February, DJF) and the boreal summer (June–July–August, JJA) 2011. The IASI N₂O mixing ratio estimated at 300 hPa, level where IASI sensitivity is significant, is then evaluated against independent data to characterize the errors: (1) the HIPPO and NOAA aircraft N₂O observations and (2) the ground-based FTIR N₂O observations from selected NDACC stations over the year 2011. The HIPPO and NOAA airborne observations and the location of the NDACC stations used in our analyses are also shown in Figure 1. Finally, we present global-scale distributions of N₂O at daily, monthly and seasonal time scale and we discuss the results.

3. The TN₂OR v2.0 Scientific Tool

The TN₂OR v2.0 scientific tool was built to estimate the vertical profiles of N₂O from the cloud-free spectral radiances observed by IASI over sea and land during daytime and nighttime. TN₂OR uses RTTOV v12.3 radiative transfer model and the Levenberg-Marquardt optimal estimation method through several steps, described below.

3.1. The RTTOV Radiative Transfer Model

The RTTOV model [26,27] is a polychromatic fast radiative transfer model that calculates spectral radiances from the atmospheric transmittance in the visible/near-infrared, the thermal infrared and in the microwave spectral domains. We used the RTTOV version 12.3 in which a set of 83 training vertical profiles of the atmospheric trace gases, is used to calculate the coefficients of the fast atmospheric transmittance parameterization. These coefficients are provided for each possible configuration (from nadir to viewing zenith angle of 63° for polar orbiting satellites) using the line-by-line (LBL) radiative transfer model (LBLRTM) V12.2 [28]. Comparing with accurate LBL models, the biases of RTTOV simulations for IASI Brightness Temperature (BT) over sea in clear sky conditions are within ± 1 K in the spectral range 645 to 2000 cm^{-1} [29]. Among all the atmospheric compounds available in the RTTOV model are: CO₂, CH₄ and CO provided by the European Centre for Medium-range Weather Forecasts (ECMWF) in the context of Global Monitoring for Environment and Security (GMES) program, N₂O from NOAA and the Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE) for the lower troposphere and Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer (CLAES) measurement for the stratosphere [30]. The profiles of CO₂, CH₄ and N₂O of the training profile dataset were improved for RTTOV version 12 in order to consider the increase of their concentration from the 1970s up to now [31]. Moreover, H₂O, O₃ and temperature are provided by ECMWF [32] and surface emissivity from the Making Earth System data records for Use in Research Environments Combined ASTER and MODIS Emissivity for Land (MEaSURES CAMEL) atlas and the IR emissivity (IREMIS) model for sea surface [31]. Furthermore, RTTOV considers the instrumental parameters (instrumental functions, spectral resolution, etc.) together with its location, time, altitude and viewing angle. The three absorption bands of N₂O in the IASI spectral range centered at ~ 1280 cm^{-1} (7.8 μm), ~ 2220 cm^{-1} (4.5 μm) and ~ 2550 cm^{-1} (3.9 μm) are discussed in Ricaud et al. [33]. Consistently with previous studies (e.g., [9,14]), we have focused our N₂O spectral analyses on the IASI band covering the 1240–1350 cm^{-1} window. This window was selected because its Signal to Noise Ratio (SNR) is higher than the SNR of the two other bands.

As an example, Figure 2 shows, for the IASI pixel selected over France in favorable conditions (summer daytime over land), the spectral sensitivity ($|\Delta\text{BT}|$) over 1240–1350 cm^{-1} of different parameters: H₂O, temperature, CH₄, CO, CO₂, O₃ and N₂O profiles together with surface temperature and emissivity. Note that the spectral sensitivity associated with the other 23 pixels is similar to the one calculated over France (not shown). $|\Delta\text{BT}|$ has been calculated as the absolute value of the variation of the forward model to the variation in the associated parameter, set up to be 1% in H₂O, CH₄ and N₂O profiles and surface emissivity, and 1 K in the temperature profile and surface temperature. Over the 1240–1350 cm^{-1} window, the spectral sensitivity is mainly governed by: the temperature and H₂O profiles impacting over the whole sub-band, the surface temperature and emissivity in the 1240–1260 cm^{-1} band, the CH₄ profiles in 2 sub-bands, between 1280 and 1300 cm^{-1} and between 1320 and 1350 cm^{-1} and the N₂O profiles in the center of the sub-band 1270–1300 cm^{-1} . Note that surface parameters (temperature and emissivity) have very similar spectral sensitivities. The N₂O spectral band contains the signatures of these variables. Therefore, we need to accurately take into account all these variables to retrieve N₂O.

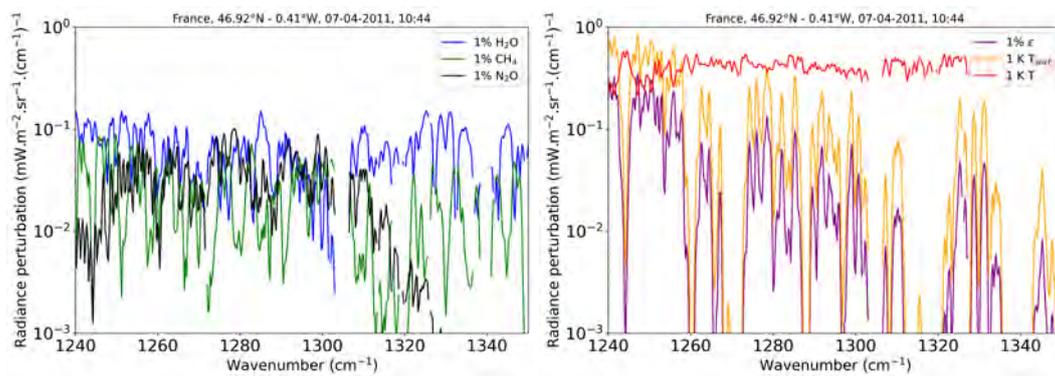


Figure 2. Brightness temperature sensitivity defined as the absolute change in brightness temperature ($|\Delta BT|$) for 1% change (**left panel**): H_2O (dark blue), CH_4 (green), and N_2O (black) and (**right panel**): surface emissivity (purple) and for 1 K change in: temperature profile (red), surface temperature (orange) for one pixel selected over France in summer daytime. No data represent channels not selected. Note that the y axis is in logarithmic scale.

3.2. The Levenberg-Marquardt Optimal Estimation Method

The Levenberg-Marquardt method [34,35] is a non-linear inversion algorithm based on the optimal estimation method [18]. The principle consists in first calculating a spectral radiance taking into account instrumental functions, vertical profiles of atmospheric variables taken from models or measurements (a priori), to retrieve the required parameters. Second, the retrieval is performed using the Levenberg-Marquardt iterative strategy by minimizing the cost function χ^2 :

$$\chi_i^2 = \left[(x_i - x_a)^T S_a^{-1} (x_i - x_a) \right] + \left[(y - F(x_i))^T S_y^{-1} (y - F(x_i)) \right] \quad (1)$$

where x_a represents the a priori state of the system; x_i is the state of the system at iteration i ; $F(x_i)$ is the spectral radiance with respect to the state x_i calculated by the radiative transfer model; S_y is the error covariance matrix of the observed spectral radiance; S_a is the covariance matrix of the a priori state; y is the observed spectral radiance. Equation (2) details the state x_{i+1} at the iteration $i + 1$ as a function of different parameters from the iteration i :

$$x_{i+1} = x_a + \left[(1 + \gamma) S_a^{-1} + K^T S_y^{-1} K \right] \left[K^T S_y^{-1} (y - F(x_i)) - S_a^{-1} (x_i - x_a) \right] \quad (2)$$

where K is the Jacobian matrix calculated in our tool by RTTOV and γ is the Levenberg-Marquardt parameter [18]. Once the convergence criterion is reached (representing the final iteration), the set of profiles and/or surface parameters obtained is then considered as the retrieved information and the optimal solution can be written as:

$$\hat{x} = Ax + (I - A)x_a \quad (3)$$

where A is the averaging kernel matrix, and I is the identity matrix. The matrix A is the mathematical representation of the sensitivity of the retrieved state with respect to the true state. The Degree Of Freedom of Signal (DOFS) corresponds to the trace of A and helps to characterize the vertical information contained in the retrieval. The higher the DOFS, the more independent pieces of information.

3.3. Specifics of TN₂OR v2.0

The list of variables simultaneously retrieved in TN₂OR are presented in Table 2 together with the sources to build up the a priori information and its associated error. For the N_2O a priori, we have constructed one single vertical profile based on an average of N ($N = 854$) HIPPO profiles (Figure 3) that have not been used in the evaluation of

the IASI N₂O profiles (see Section 4). Above the ceiling altitude and down to the first altitude of HIPPO, the profile has been extrapolated with a daily N₂O mean profile from LMDz-INCA model in the range 1050–0.1 hPa. Then, whatever the location and the time in 2011, one single N₂O a priori profile is used in TN₂OR. The N₂O a priori error (ΔN_2O) used to build up the a priori covariance matrix S_a has been set up to 0.8% corresponding to the variability of HIPPO airborne data (see Figure 3). The a priori vertical profiles of CH₄ were taken from the Monitoring Atmospheric Composition and Climate (MACC) database (<https://apps.ecmwf.int/>, accessed on 31 August 2021) at the closest location and time of the IASI observation. According to Massart et al. [36], a typical uncertainty of MACC-II methane reanalysis is about 20 ppbv in the troposphere which represents about 1–2%. Then, the CH₄ a priori error (ΔCH_4) was set up to 1.0%. A priori vertical profiles of temperature and H₂O together with surface temperature (T_{surf}) were provided by the official IASI level 2 products provided by EUMETSAT. The temperature and H₂O a priori error (ΔT and ΔH_2O , respectively) were fixed to be 0.5 K and 10.0%, respectively and the a priori surface temperature error (ΔT_{surf}) has been set up to 1.5 K. Water vapor, temperature and surface temperature a priori errors are consistent with EUMETSAT L2 errors, which are 10%, ~0.6 K and ~2 K, respectively [17]. Finally, the a priori surface emissivity over land comes from the MEaSURES CAMEL atlas, monthly averaged on a spatial resolution of 5 km [31]. Its accuracy depends on the surface type and on the spectral range. Differences between simulated Brightness Temperature using RTTOV and IASI observations have been found below 1–2 K for most of cases [37]. The a priori surface emissivity over sea was set up to 0.984 according to Konda et al. [38]. The associated a priori error ($\Delta \epsilon$) was fixed to 15%.

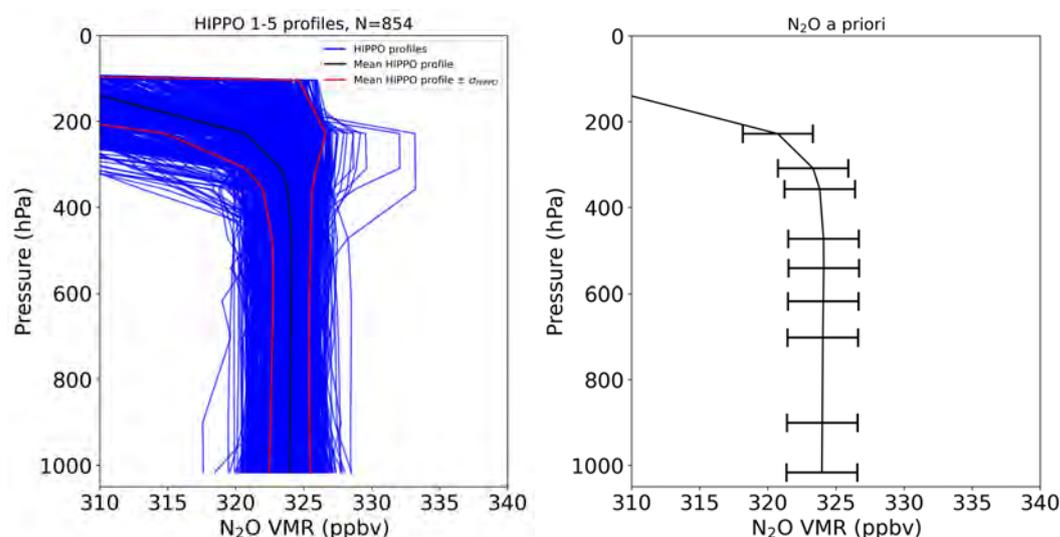


Figure 3. (Left) N (N = 854) HIPPO N₂O vertical profiles measured during the 5 campaigns (2009–2011), together with its mean (black) and standard deviation ($\pm 1\sigma$, red). (Right) A priori N₂O vertical profile used in TN₂OR v2.0 and its associated error ($\pm 0.8\%$, horizontal arrow) taken from the HIPPO mean and its associated standard deviation.

Table 2. A priori information and error for N₂O, CH₄, H₂O, and temperature (Temp) profiles, surface temperature (T_{surf}) and emissivity (ϵ). The emissivity a priori is issued from the MEaSURES CAMEL atlas for land surface [31] and from Konda et al. [38] for sea surface.

Parameters	N ₂ O	CH ₄	H ₂ O	Temp	T_{surf}	ϵ
A priori	From HIPPO and LMDz-INCA	MACC-II	IASI	IASI	IASI	CAMEL (land) 0.984 (sea)
Δx_a	0.8%	1%	10%	0.5 K	1.5 K	15%

The error covariance matrices of the a priori S_a parameters are constructed, consistent with Rodgers [18], as:

$$S_{a_{ij}} = \sigma_i \sigma_j e^{-\ln \frac{P_i}{P_j}} \quad (4)$$

where σ_i and σ_j are the values of the standard deviations of the a priori variables at the levels i and j , respectively, and P_i and P_j are the pressures at the levels i and j , respectively. The relative standard deviations are considered to be constant along the vertical. The retrieval process used in TN₂OR is optimized to make the observed radiance as close as possible to the calculated radiance after n iterations. The maximum number of iterations is fixed to 10. The number of vertical layers in the retrieval process is fixed to 13 from the lowermost troposphere to the upper stratosphere and an extra layer corresponding to the surface pressure of the IASI observation (Surface, 1000, 900, 800, 700, 600, 500, 400, 300, 200, 100, 10, 1, 0.1 hPa). The retrieval layers have a thickness of 100 hPa in the troposphere (between 900 and 100 hPa). Below 900 hPa, it depends on the surface pressure and above 100 hPa, the thickness is the sum of half the distance around the retrieval level. We present an example of typical radiance residuals obtained for 3 pixels (Figure 4): (1) the a priori radiance residuals $y - F(x_a)$ defined as the difference between the observed radiances y and the radiances calculated from the a priori $F(x_a)$ and (2) the retrieved radiance residuals $y - F(\hat{x})$ defined as the difference between the observed radiances and the radiances calculated from the retrieved state $F(\hat{x})$. The typical pixels were selected over France, Pacific Ocean and USA for different dates. As expected, the retrieved radiance residuals are a factor of ~ 3 less than the a priori radiance residuals and the bias has been dramatically reduced (especially over the Pacific Ocean). In addition, on average, the retrieved radiance residuals are within the IASI spectral noise range. However, we cannot completely rule out the impact of aerosol contamination which is not taken into account in TN₂OR but well seen in the spectral domain between 1240 and 1250 cm^{-1} . Aerosol information from the IASI spectra are now routinely retrieved (e.g., [39,40]) relying on the spectral band 750–1250 cm^{-1} .

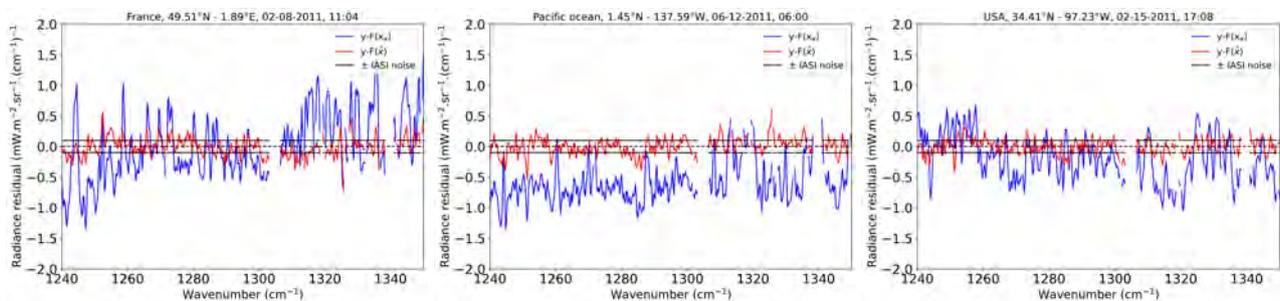


Figure 4. A priori $y - F(x_a)$ (blue) and retrieved $y - F(\hat{x})$ (red) radiance residuals for 3 pixels observed over France (8 February 2011), Pacific Ocean (12 June 2011) and over USA (15 February 2011). The IASI spectral noise is represented by the 2 solid black lines. Missing data represent channels not selected.

3.4. Sensitivity Profile and Error Characterization

The sensitivity profile is optimum when the averaging kernels reach their maxima. A DOFS less than or about 1.0 means that the information on N₂O cannot be vertically discriminated and is comprised within a total column. A DOFS greater than 1.0 means that N₂O profiles can give information better than a column. To keep sufficient information on the vertical, we discarded pixels with a DOFS less than 0.9. Figure 5 shows the DOFS associated to daytime and nighttime IASI N₂O retrievals in DJF and JJA 2011 on a $1^\circ \times 1^\circ$ grid. Consistent with the better sensitivity of TIR measurements with higher thermal contrast, the DOFS in favorable conditions (summer daytime) is within 1.0–1.3 over land whilst, in unfavorable conditions (winter nighttime) DOFS is within 0.9–1.0 over land. Over the ocean, the DOFS is within 0.9–1.1 whatever the conditions encountered. In daytime, consistently to the summer

conditions and over land, in JJA, the highest DOFS (1.1–1.3) are observed on Southern Europe, Arabic Peninsula, Middle East, Western-Central USA, Sahara Desert whereas in DJF, the highest DOFS are observed over Indian sub-continent, Mongolia, Brazil, Argentina, Equatorial and South Africa, and Australia. In the tropical band (between 30°S and 30°N), over the ocean, Northern and Southern Atlantic and Pacific Oceans present DOFS reaching 1.1, regardless of the season and of the time (day/night) considered.

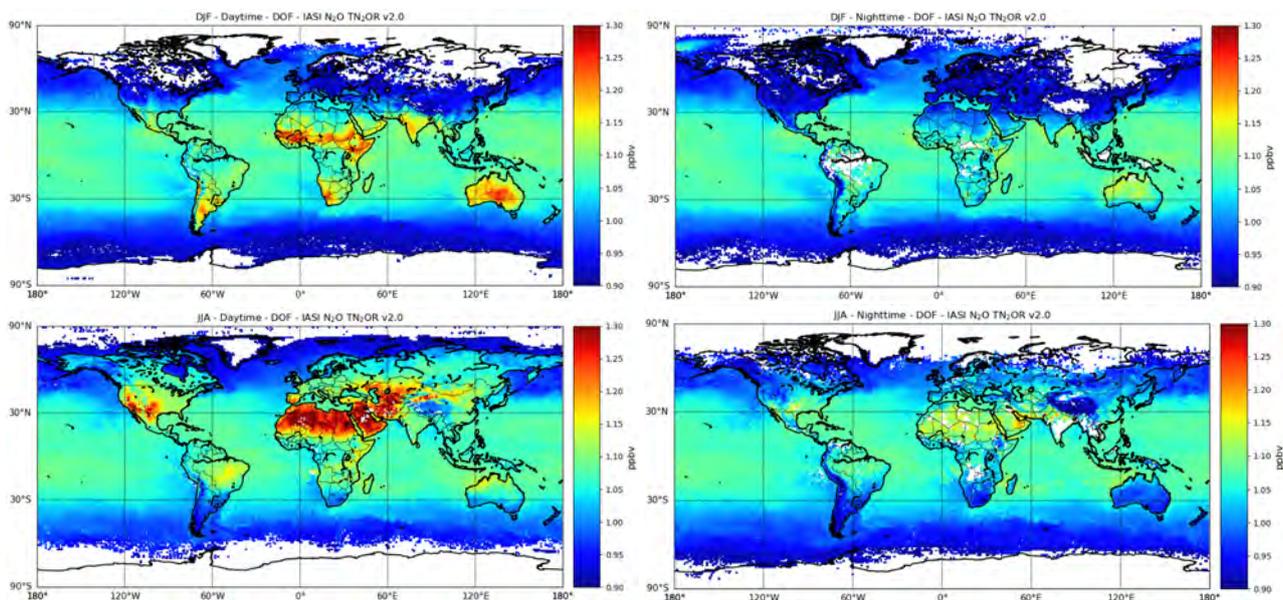


Figure 5. Horizontal distribution of the Degrees of Freedom of Signal (DOFS) on a $1^\circ \times 1^\circ$ grid obtained with TN₂OR v2.0 for: daytime and nighttime N₂O in left column and right column, respectively. DJF 2011 and (top) JJA 2011 (bottom). The pixels were selected with DOFS values greater than 0.9.

In order to study the sensitivity profile of the IASI N₂O measurements, we present an example of the vertical distribution of averaging kernels, different errors and contamination factors (see Equation (3)) over France in summer daytime (Figure 6). Note that the averaging kernels shape mainly depends on the location (land or ocean), the time (daytime or nighttime) and the season. However, whatever the conditions, most of them exhibit a maximum at about 300 hPa, namely in the upper troposphere. In Figure 6, we can distinguish much broader averaging kernels typically AKs from 400 hPa to the surface (958.8 hPa). These averaging kernels likely contain mid-troposphere N₂O information. However, these levels are not evaluated in this paper because of the difficulty to have sufficient pixels with a well defined retrieval level in this layer (as 300 hPa). Nevertheless, under favorable conditions (i.e., summer over land during daytime), N₂O information can be assessed at a retrieval level within the mid-troposphere. For example, two pieces of information (mid and upper troposphere) are well described by the averaging kernels in Figure 6-left. This example of AKs shows a DOFS value of 1.25 and considering the DOFS values shown in Figure 5, this averaging kernels shape is also well found over the area where the DOFS is on the same order.

As usually performed when using the Optimal Estimation Method [18], the total error on the N₂O vertical profiles estimated by TN₂OR can be separated into four components: the forward model error, the model parameter error, the smoothing error and the retrieval noise. We have developed a simultaneous retrieval including all the parameters impacting the radiance in the 1240–1350 cm⁻¹ window (see Table 2). Since the spectral radiance

residuals are well within the IASI spectral noise (Figure 4), we can expect that biases are negligible. The covariance matrix of the smoothing error (S_s) is defined as:

$$S_s = (A - I)S_a(A - I)^T \quad (5)$$

The covariance matrix of the retrieval noise (S_m) is defined as:

$$S_m = GS_yG^T \quad (6)$$

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

$$S_{tot} = S_s + S_m \quad (7)$$

One can represent the vertical distribution of the smoothing error, the retrieval noise and the total error by considering the diagonal elements of the associated covariance matrices. As an example, Figure 6-middle shows these elements of a typical pixel measured during summer time over France. For all considered sites, the vertical distribution of the retrieval noise shows a maximum (about 0.25%) along the vertical. In the same way, the vertical distribution of the smoothing errors displays a minimum (0.55–0.58%) where IASI observations have significant sensitivity around 300–500 hPa. Finally, the total random error exhibit a minimum of $\sim 0.60\%$ around 300–500 hPa for one retrieval. Again, this behavior is well found for most of the pixels. This random error decreases when we average the data in terms of space and time. For example, Figure 7 shows IASI N₂O and the corresponding mean random error for one day (1 august 2011) averaged in a $1^\circ \times 1^\circ$ grid. This random error is the average of the total error divided by the square root of the number of pixels inside each box of $1^\circ \times 1^\circ$ and some areas shows smaller values of error of 0.4 ppbv (0.1%). To better characterize the retrievals, we calculate the contamination factor on the N₂O estimation induced by the co-retrieved parameters. It can be calculated as follow [41]:

$$CF(i) = \sum_j |A_{xc_{ij}}| \frac{\Delta c_j}{x_i} \times 100 \quad (8)$$

where $A_{xc_{ij}} = \frac{\partial \hat{x}_i}{\partial c_j}$ is the sub-matrix of A corresponding to the interference between the co-retrieved parameter c and the target retrieved species x ; Δc_j is the uncertainty on the parameter c at the level j and $CF(i)$ is the contamination factor of the parameter c on the retrieved N₂O \hat{x}_i at the level i . We fixed Δc_j to the a priori error σ for each parameter. CF indicates the influence of the uncertainties in the knowledge of the co-retrieved parameters on the variability of the target species N₂O retrievals, namely how critical is the characterization of each co-retrieved parameter for the quality of the N₂O retrievals. Figure 6-right shows the contamination factors associated with one IASI pixel measured over France in summer daytime. Note that the contamination factors associated with the other pixels are similar to this one (not shown). From the middle to the upper troposphere, the contamination factor of temperature profile on the N₂O retrievals is the highest: 0.5–0.6%. The CH₄ and H₂O CFs reach 0.1% while surface emissivity and surface temperature CFs are negligible (0.05%).

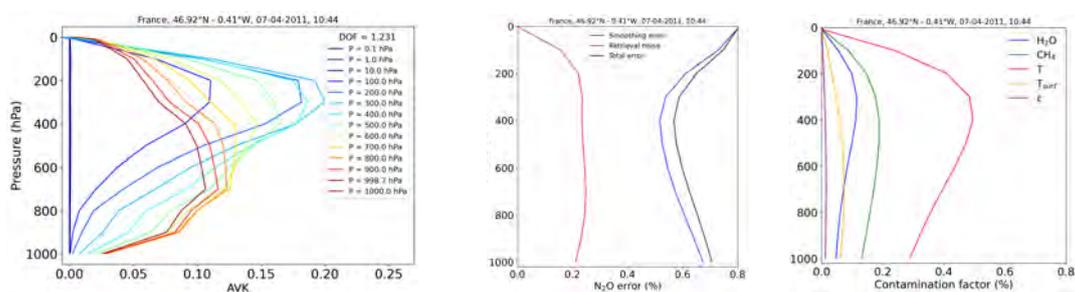


Figure 6. Example of N_2O averaging kernels (**left**), errors in % (**middle**) and contamination factors in % (**right**) calculated with TN_2OR v2.0 on 13 retrieval levels over France during summer daytime (27 August 2011). The levels of the averaging kernels are defined by the different colors presented within the left panel. The retrieval noise (%), red and smoothing errors (%), blue are presented on the middle figure as well as the total random error (%), black on one single retrieval. The contamination factors (%) affecting the N_2O retrievals induced by: H_2O (dark blue), CH_4 (green), temperature (red), surface temperature (orange) and emissivity (purple) are shown.

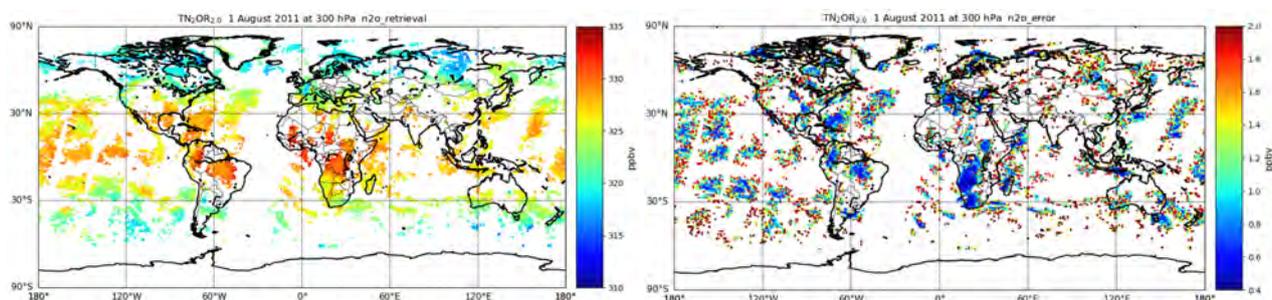


Figure 7. IASI N_2O distribution (**left**) and IASI N_2O total error (**right**) in ppbv at 300 hPa for 1 August 2011 within a box of $1^\circ \times 1^\circ$.

4. Results

4.1. Evaluation of IASI TN_2OR v2.0 N_2O Retrievals

4.1.1. Comparison with Aircraft Observations

The comparisons are performed using the HIPPO and NOAA aircraft observations. First, note that the HIPPO data used to establish the N_2O a priori profile for TN_2OR were not selected in the evaluation process. Second, TN_2OR has been applied to the IASI pixels in time (± 12 h) and space coincidence (± 200 km) with the location and time observation of the aircraft profiles. For this evaluation, we used 592 aircraft profiles measured throughout the years 2009, 2010 and 2011. Third, all the aircraft profiles were convolved with the appropriate IASI averaging kernels following Equation (3) in which x is the N_2O aircraft profile and is considered as the truth. Fourth, above the ceiling altitude and below the lowest altitude of the aircraft profile, the profile has been extrapolated with a daily mean LMDz-INCA profile up to the upper stratosphere and down to the surface in order to apply the averaging kernel.

Figure 8-left shows the scatter plot between IASI N_2O and the convolved aircraft N_2O at 300 hPa from which the Pearson linear correlation coefficient (R), the bias and the standard deviation of IASI (σ_{IASI}) and aircraft ($\sigma_{aircraft}$) have been calculated. We have also evaluated the standard deviation of the difference between IASI and convolved aircraft data ($\sigma_{IASI-aircraft}$). If we suppose that the error associated with the aircraft observations is much lower than the error associated with the IASI data set, then $\sigma_{IASI-aircraft}$ represents an empirical evaluation of the IASI total error and we should obtain: $\sigma_{IASI-aircraft} \geq \sigma_{IASI}$. At 300 hPa, the correlation coefficient between IASI and aircraft data sets is 0.77, and the standard deviation of the IASI N_2O (3.11 ppbv) is similar to the standard deviation of the aircraft N_2O (3.52 ppbv). The IASI N_2O data set appears to be high biased by ~ 1.0 ppbv ($\sim 0.3\%$) compared to the aircraft N_2O data. The IASI empirical total error of 2.3 ppbv

($\sim 0.75\%$) is greater than the IASI total error ~ 2.0 ppbv ($\sim 0.60\%$, see Figure 6). The latitudinal variability of the IASI and the aircraft data sets have been investigated considering all the IASI observations with aircraft measurements (Figure 8-right) at 300 hPa. A sinusoidal fit was applied to show the zonal variation of the aircraft and IASI data. Both data sets show a maximum in the tropics peaking around the Equator and a minimum at high latitudes with IASI systematically greater than aircraft by ~ 2.0 ppbv ($\sim 0.6\%$) and IASI data slightly smaller than aircraft data in the tropics by 0.5 ppbv ($< 0.15\%$). Note that a large majority of the aircraft data are located above northern America within the 40°N – 60°N latitude band and above land (see Figure 1), with very few observations at tropical latitudes.

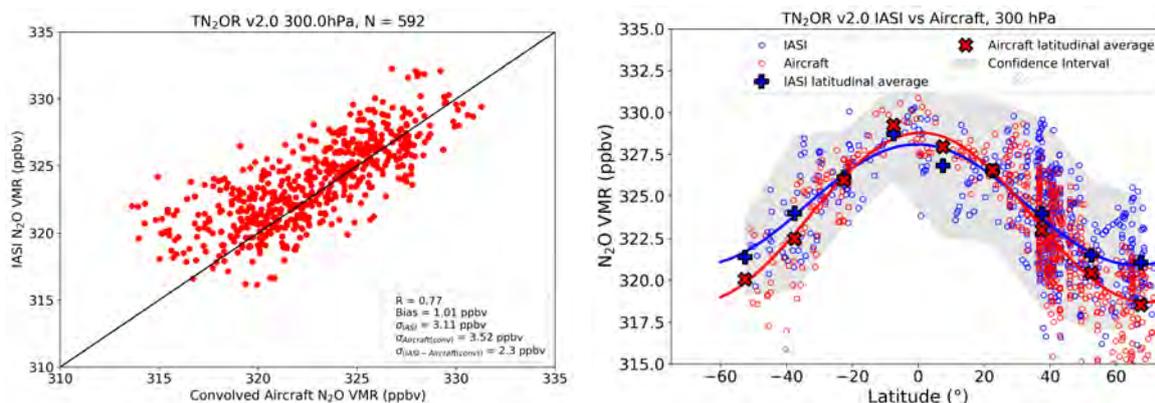


Figure 8. (Left): Scatter plot between aircraft N₂O observations from HIPPO and NOAA campaigns convolved with the appropriate averaging kernels vs IASI N₂O retrievals at 300 hPa covering the period from 2009 to 2011. The red and blue circles stands for the aircraft and IASI data, respectively. The correlation R , bias and standard deviations of IASI σ_{IASI} and aircraft $\sigma_{aircraft}$ observations are presented together with the standard deviation of the difference between IASI and aircraft $\sigma_{IASI-aircraft}$ for collocated profiles. (Right): Comparison between aircraft and IASI N₂O along the latitude for 300 hPa. The red \times sign stands for the aircraft data and the blue $+$ sign stands for IASI data averages over 30° latitudes. The red and blue curves represent a sinusoidal fit applied to aircraft and IASI data, respectively. The grey areas represent 95% C.I.

Consistent with Figure 8-right, Table 3 presents the same metrics between IASI and the convolved aircraft N₂O data sets but separated into 5 latitudinal bands: 60°N – 90°N , 30°N – 60°N , 0° – 30°N , 30°S – 0° and 60°S – 30°S for 300 hPa. The Pearson linear correlation coefficient (R) is ranging from 0.56 to 0.76 considering all the bands and altitudes except for the high northern latitudes where $R = 0.13$. The standard deviation, representing the variability of the IASI N₂O (ranging from 1.82 to 2.91 ppbv) is quite similar to the variability of aircraft N₂O (ranging from 1.92 to 2.69 ppbv) considering all the bands. However, for 0 – 30°N , σ_{IASI} is slightly higher (2.13 ppbv) than $\sigma_{aircraft}$ (1.42 ppbv). The bias, defined as IASI N₂O minus the aircraft N₂O, is relatively small (0.97 ppbv) in the band 30°N – 60°N . It is slightly higher between 60°S – 30°S and 60°N – 90°N with 1.48 and 2.56 ppbv, respectively. To recap, the correlation between IASI and aircraft N₂O measurements varies good to poor depending on the latitude (See Table 3). The bias has been identified with a relatively small value (~ 1 ppbv). Considering the bias along the latitudes, we obtain at 300 hPa, a bias a little larger over the high northern latitudes and values smaller in the tropics.

Table 3. Standard deviation of N₂O (σ) in IASI and aircraft data sets, correlation R and bias (ppbv) between the IASI and aircraft data sets at 300 hPa as a function of latitude bands, together with the number of profiles (N) used in the statistics. Note that aircraft data have been convolved with the appropriate IASI averaging kernels.

Latitudes	N	σ_{IASI} (ppbv)	$\sigma_{aircraft}$ (ppbv)	R	Bias (ppbv)
60°S–30°S	45	2.36	2.69	0.76	1.48
30°S–0°	60	1.82	1.92	0.61	−0.03
0°–30°N	64	2.13	1.42	0.56	−0.39
30°N–60°N	328	2.91	2.63	0.71	0.97
60°N–90°N	95	1.93	2.19	0.13	2.56

In addition, we compare, at 300 hPa, the temporal evolution of IASI and aircraft N₂O data by monthly averaging the different observations (Figure 9). The behavior of the temporal evolution is similar with a well marked maximum during August likely corresponding to the warmest season in the Northern hemisphere.

There is a slight overestimation of IASI (1–2 ppbv) from November to March mainly corresponding to the cold season (most of the aircraft data are in the Northern hemisphere) and a much smaller difference from April to October with a bias of ~ 0.5 ppbv. This result clearly shows the good consistency of the time evolution between IASI and the aircraft data throughout 2011 especially during the warmest season where we can expect to have a better sensitivity because of the better thermal contrast.

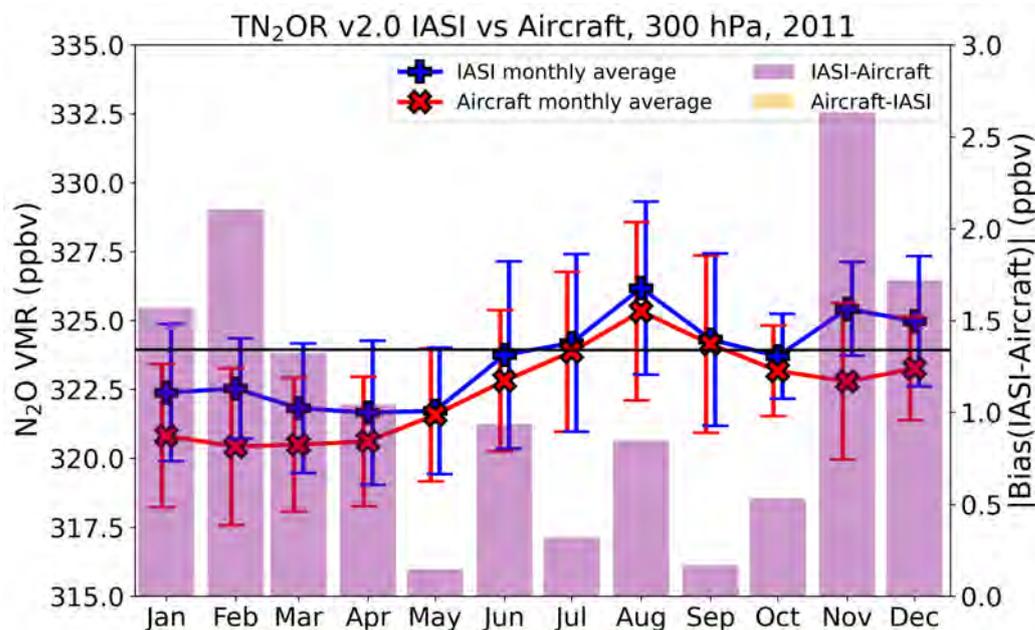


Figure 9. Monthly N₂O evolution of IASI and aircraft data in ppbv for 2011 at 300 hPa. The red × sign stands for the aircraft data and the blue + sign stands for IASI data. The vertical bars represent the standard deviation for each monthly N₂O average. The purple bins represent the positive monthly bias and the golden bins represent the negative monthly bias. Note that the right axis shows the absolute value of the bias. The thin black line represents the value of the IASI N₂O fixed a priori.

4.1.2. NDAAC Ground-Based Observations

We have selected 9 NDACC stations where FTIR observations of N₂O were available in 2011 with a number of months greater than 6 and we discarded stations located too far north because there are no relevant IASI data at high latitudes. They are located (see the coordinates in Table 4 and Figure 1: (1) in the high latitudes of the Northern

Hemisphere (Kiruna, Sweden; and St Petersburg, Russia), (2) in the middle latitudes of the Northern Hemisphere (Zugspitze, Germany; Jungfraujoch, Switzerland; Toronto, Canada and Tenerife, Spain) and (3) in the tropical to middle latitudes of the Southern Hemisphere (Saint Denis, Reunion Island, France; Wollongong, Australia and Lauder, New Zealand). Note that the elevation of the stations ranges from the near surface (less than 100 m amsl for St Petersburg, Saint Denis and Wollongong) to high altitudes (greater than 2000 m amsl for Zugspitze, Jungfraujoch and Tenerife). The NDACC stations have the advantage to provide the profiles of N₂O that could be compared to IASI profiles and we focus on 300 hPa where the IASI N₂O sensitivity is significant. The sensitivity profile of NDACC FTIR is much higher than the sensitivity profile of IASI for N₂O. Figure 10 presents an example of averaging kernels of NDACC stations (St. Petersburg, Russia and Wollongong, Australia) and the corresponding IASI ones. First, the DOFS for NDACC is greater than the DOFS of IASI and it is well seen that the number of pieces of vertical information, as shown by the different maxima of the AK, in the vertical profile of NDACC is much greater. It is clear that the two instruments are not sensitive to the same layers in the troposphere and the stratosphere. The FTIR N₂O is sensitive from the lowermost troposphere to the middle stratosphere whereas the IASI N₂O profiles show sensitivity in the mid-to-upper troposphere (300–500 hPa). As a consequence, the DOFS estimated from NDACC averaging kernels (ranging from 2.0 to 4.0) are on average 2 to 3 times greater than the DOFS calculated from IASI averaging kernels (maximum of 1.4 for one single retrieval). Moreover, the NDACC N₂O a priori, different in all cases has values lower than the fixed IASI a priori. To compare the two different remote sensing instruments, we use the following formula from Rodgers and Connor [41]:

$$x_{adj} = x_a + A(x_2 - x_a) \quad (9)$$

where x_{adj} is the adjusted profile of NDACC which will be compared to the corresponding IASI profile, x_a is the a priori profile of IASI N₂O, A is the averaging kernels matrix of IASI and x_2 is the N₂O retrievals of NDACC. This adjustment is then performed on the following comparison. In Figure 11, we present the comparison between N₂O from IASI and NDACC at 300 hPa. Table 4 shows the principal metrics for the comparisons (standard deviation, correlation coefficient R and bias). The IASI N₂O retrievals have been selected within a circle of 50 km radius centered at the NDACC station and averaged over the month.

One can see the difficulty to separate the two levels in terms of monthly evolution which is something we also found in the aircraft data. This is likely due to the N₂O vertical homogeneity in the troposphere and the impact of the broad IASI averaging kernels. For the Northern hemisphere stations, the behavior of the monthly evolution is quite similar for the different stations with a small positive slope well seen by IASI and NDACC. For example, we can see an amplitude of 5–8 ppbv above Jungfraujoch and Zugspitze, and a much smaller one over Tenerife with an amplitude of 1–2 ppbv. Conversely, over Kiruna and St Petersburg, the NDACC N₂O amplitude is twice the one of IASI, likely because of the cold surface during the winter months inducing a weak sensitivity of IASI. In general, IASI N₂O is high biased compared to NDACC N₂O (see Table 4) except for St Petersburg where the bias is negative but relatively weak (−0.78 ppbv). For the far north Kiruna station, the bias is higher (~4 ppbv) still likely due to the cold surface during January, February, March and April. In the same way, a negative bias is observed over St Petersburg but in September, October, November. For the rest of the year, the agreement is quite good especially during summer. Concerning Toronto, this is difficult to conclude because of the very high variability of NDACC data which is not found in IASI data. The NDACC observations at Toronto can be considered as outliers with a negative slope and an unrealistic maximum–minimum amplitude of ~18 ppbv to be compared with a maximum–minimum amplitude of ~3 ppbv in the IASI observations. Except this station, the correlation coefficient ranges from 0.56 to 0.85. The Southern Hemisphere stations (Wollongong, Australia and Lauder, New Zealand) show a very weak seasonal variation with a very small slope and a constant bias of ~5 ppbv over the year. For

Saint Denis, Reunion Island, the amplitude of NDACC data (~ 10 ppbv) is much greater than the amplitude of IASI data (~ 3 ppbv) and the bias is relatively large (~ 7 ppbv). Moreover, for all data from these Southern Hemisphere stations, the variability of IASI ($\sigma = 0.94$ – 1.2 ppbv) is smaller than the variability of NDACC data ($\sigma = 0.61$ – 2.45 ppbv).

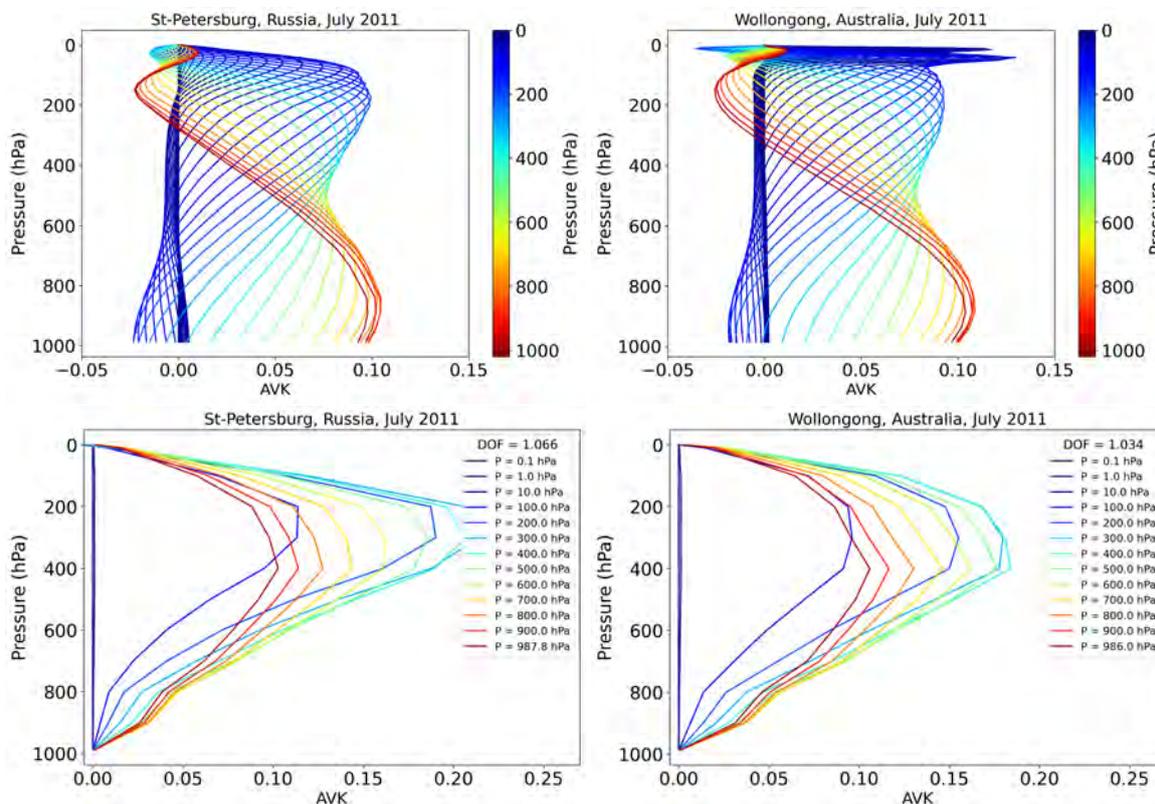


Figure 10. (Top): Monthly-averaged N_2O averaging kernels in July 2011 above St Petersburg, Russia and Wollongong, Australia stations from the NDACC FTIR instruments. (Bottom): Same as top panels but for the corresponding IASI data.

Table 4. Location of the NDACC stations used to evaluate the quality of the IASI N_2O retrievals. Correlation coefficient R, bias (IASI N_2O -NDACC N_2O) between IASI and NDACC and their corresponding standard deviation σ for 300 hPa.

Station	Lat	Lon	H_0 (m amsl)	R	Bias (ppbv)	σ (ppbv)	
						IASI	NDACC
Kiruna	67.84°N	20.41°E	419	0.56	4.0	1.8	3.48
St Petersburg	59.9°N	29.8°E	20	0.85	-0.78	1.17	3.25
Zugspitze	47.42°N	10.98°E	2964	0.69	3.01	2.45	2.19
Jungfraujoch	46.55°N	7.98°E	3580	0.7	1.56	2.16	2.16
Toronto	43.66°N	79.40°W	174	-0.28	7.18	1.51	4.93
Tenerife	28.30°N	16.48°W	2367	0.56	0.7	1.32	0.68
St-Denis	20.9°S	55.5°E	85	-0.16	7.51	0.94	2.45
Wollongong	34.41°S	150.88°E	30	0.38	4.33	1.2	0.61
Lauder	45.04°S	169.68°E	370	0.1	4.76	1.09	1.92

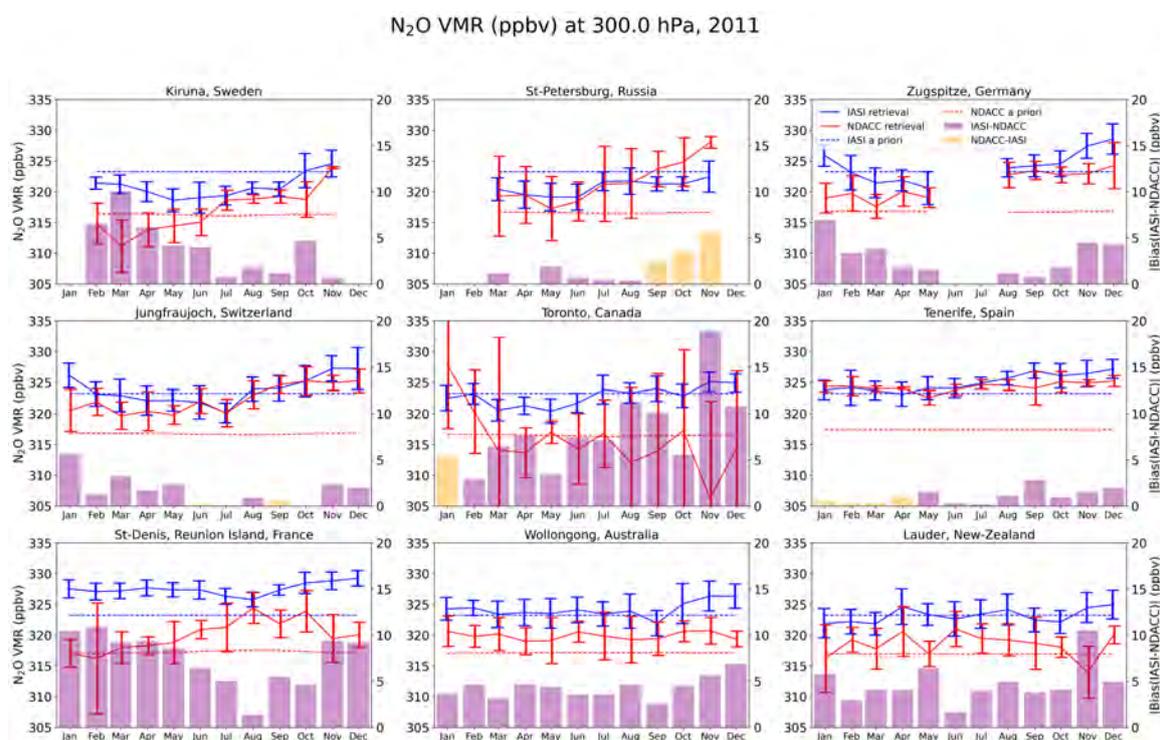


Figure 11. Monthly evolution of N₂O above the selected NDACC FTIR stations over January–December 2011 at 300 hPa. Note that Equation (9) has been applied to NDACC N₂O data. The a priori used in the NDACC (dotted red) and IASI (dotted blue) retrievals are also shown. Vertical thick lines represent standard deviation on the monthly mean. The purple bins represent the positive monthly bias and the golden bins represent the negative monthly bias. Note that the right axis shows the absolute value of the bias which is between 0 to 20 ppbv.

4.2. Global-Scale Distribution of IASI N₂O

In this section, we present the horizontal distribution at 300 hPa at daily, monthly and seasonal scale. We also show the vertical distribution of N₂O from the lowest possible levels up to the stratosphere. The horizontal distribution of IASI N₂O on 1 August 2011 at 0.2° × 0.2° horizontal resolution (close to IASI pixel size 12 km × 12 km at nadir) is shown in Figure 12. In only 24 h of observing time, despite the presence of clouds covering the large portion of the Earth, the global-scale large features in the N₂O field are tropical maxima (>330 ppbv) over South America and Africa, and high latitude minima (<320 ppbv).

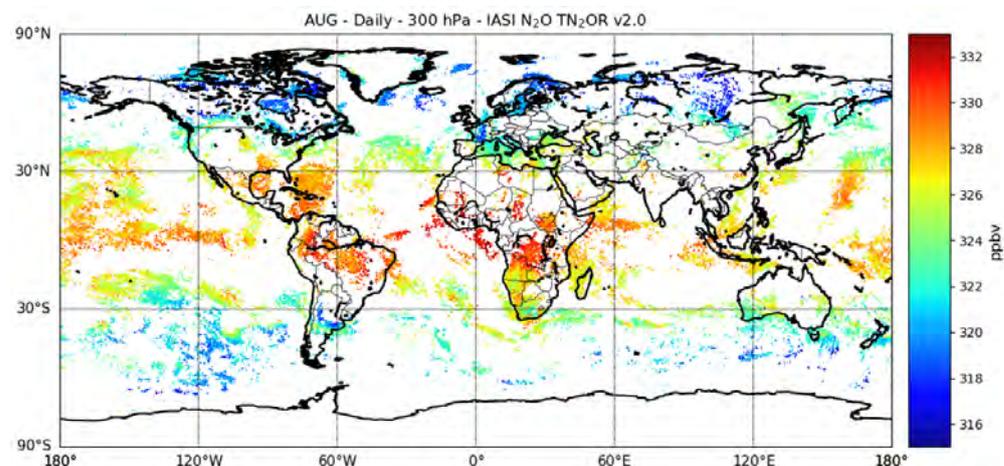


Figure 12. Horizontal distribution of daily-averaged N₂O at 300 hPa from IASI on 1 August 2011 within 0.2° × 0.2° pixels.

Moreover, in Figure 13 we present the horizontal distribution of monthly-averaged IASI N₂O estimated at 300 hPa in January and July 2011 at 1° × 1° horizontal resolution. Whatever the season considered (austral or boreal summer), Central Africa is the area where the N₂O field has a maximum (>330 ppbv) and in some extent, there is also a relative maximum over India. An equatorial band of enriched-N₂O airmass is systematically measured between South America and Africa in January and July 2011 and as expected, minima of N₂O (<320 ppbv) are observed at high latitudes.

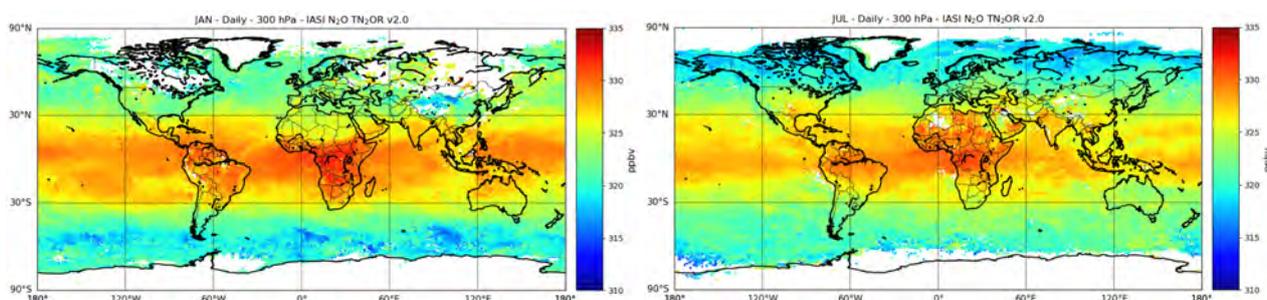


Figure 13. Horizontal distribution of monthly-averaged N₂O (both daytime and nighttime) at 300 hPa from IASI in January 2011 (left) and in July 2011 (right) within a 1° × 1° box.

Differences between austral and boreal summers can be highlighted: (1) maxima of N₂O over South-Eastern USA in July 2011, and (2) maxima of N₂O over Australia in January 2011. The horizontal distributions of seasonally-averaged IASI N₂O estimated at 300 hPa in DJF and JJA 2011 at 1° × 1° horizontal resolution and the corresponding zonal cross sections are shown in Figure 14. We only consider these two seasons (winter and summer) to highlight the well marked differences in the N₂O distribution. Again, the general distribution of N₂O in the two seasons exhibits maxima in the tropics (around 330 ppbv) and minima in the high latitudes (315–318 ppbv). The maxima over equatorial Africa are systematically observed and then could be confirmed knowing that the tropical IASI N₂O is weakly low biased by (<−0.39 ppbv i.e., ~0.1%) compared to aircraft observations (see Section 3). The African maximum was already studied in Ricaud et al. [10] and was attributed to the convergence of the Walker cells towards central Africa and to the strong upward transport associated with the deep convection bringing high surface N₂O emissions to the upper troposphere. Ricaud et al. [42] studied the distribution (July 2014) of chemical tracers such as carbon monoxide and aerosols between Africa and Southern America due to horizontal transport. Over the equatorial Atlantic Ocean in JJA, we show a tongue of N₂O maximum which can be likely explained by this horizontal transport. Local maxima of N₂O are also present over the Indian subcontinent and is slightly more intense in JJA when the Indian monsoon system pushes elevated amounts of N₂O from the surface to the upper troposphere to be trapped within the Asian Monsoon Anticyclone (see e.g., [8]). Over the tropics, we can note that there is systematically a minimum of N₂O over the Maritime Continent, the region encompassing Indonesia. Since this region represents one of the most efficient areas for transporting air masses from the surface to the upper troposphere (see e.g., [43,44]), the local minima observed at 300 hPa could be an imprint of N₂O-poor air masses in the lowermost troposphere over this area. In the middle latitudes, some local maxima over Mexico and the South East of the United States are depicted in JJA and, to a lesser extent, in SON (not shown). This is attributed to the presence of an anticyclone that traps N₂O-enriched air masses issued from the tropics (not shown). Finally the cross sections of zonal mean in Figure 14 clearly show the maximum of N₂O located more in the southern hemisphere in DJF and conversely more in the northern hemisphere in JJA following the location of the Intertropical Convergence Zone (ITCZ). Note also that the tropopause height is well marked with a maximum over the tropics and a minimum over high latitudes even if the IASI N₂O a priori is fixed with a tropopause height at 300 hPa

(see Figure 3). This shows the impact of IASI measurements at this level. Conversely, there is a lack of sensitivity of IASI in the lowermost troposphere.

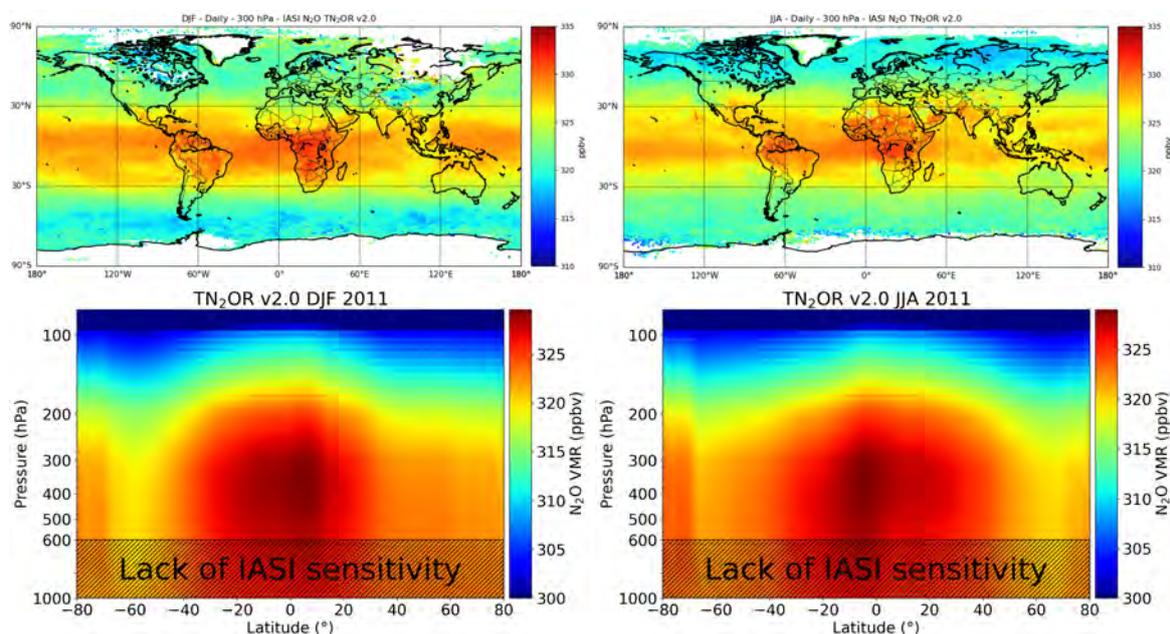


Figure 14. Horizontal distribution of IASI N₂O from TN₂OR v2.0 at 300 hPa within 1° × 1° box and zonal mean vertical cross-section of N₂O for DJF (**top left** and **bottom left**) and JJA (**top right** and **bottom right**). The hatched area is an indication where the sensitivity profile of IASI is weak.

5. Conclusions

The Toulouse N₂O Retrieval Version 2.0 (TN₂OR v2.0) has been developed to especially retrieve N₂O profiles from the IASI spectral radiances. It is based on the RTTOV v12.3 model coupled to the Levenberg-Marquardt optimal estimation method. This enables also the simultaneous retrieval of CH₄, H₂O, temperature profiles together with surface temperature and emissivity within the 1240–1350 cm⁻¹ spectral window. The N₂O a priori vertical profile has been fixed over the time and location for the year 2011. This has the main advantage to state that any variation in the estimated IASI retrieval cannot be influenced by the impact of the a priori profile variation. The N₂O a priori profile is an average of several HIPPO profiles extrapolated by using LMDz-INCA model output. The N₂O a priori error was estimated at 0.8% from HIPPO aircraft data. The a priori vertical profiles of CH₄ were taken from the MACC-II database at the closest location and time of the IASI observation. Our evaluation is focused on the upper-troposphere in which the retrieval level of 300 hPa has the most significant sensitivity. For one single retrieval, the total random error of IASI N₂O at 300 hPa has been found around 0.60% and also for 300–500 hPa in favorable conditions. The error decreases dramatically by averaging the data reaching 0.4 ppbv or 0.1% for a 1° × 1° box. The IASI N₂O data set has been evaluated against the aircraft N₂O observations from the HIPPO campaigns in 2009, 2010 and 2011 and the NOAA aircraft campaigns held in 2011, and also against the ground-based N₂O measurements from nine stations belonging to the NDACC network. We found values of global correlation coefficients of ~0.77 between IASI and aircraft data. The bias between IASI and aircraft N₂O data is relatively small with ~1.0 ppbv. We also found a similar bias at northern mid-latitudes of 0.97 ppbv and slightly higher at southern middle latitudes of 1.48 ppbv. At tropical latitudes, the bias is small but negative with values ranging between -0.4 and 0 ppbv. Finally, the estimated random error found with respect to the aircraft data is ~2.3 ppbv (~0.75%) similar to the total random error.

In the same way, the correlation between IASI and Northern Hemisphere NDACC stations (Kiruna, St Petersburg, Zugspitze, Jungfraujoch and Tenerife) is greater than 0.56

and could reach 0.85. The bias between IASI and NDACC data depends on the month but is generally small during summer for the northern hemisphere stations and quite constant over the year for the southern hemisphere stations (~ 5 ppbv) except for Reunion island (~ 7 ppbv). Moreover, the IASI variability is quite similar for Zugspitze and Jungfrauoch but usually twice less than the NDACC variability.

Finally, the distributions of IASI N_2O shown at 300 hPa at daily ($0.2^\circ \times 0.2^\circ$ horizontal resolution close to the IASI pixel size), monthly and seasonal time scale ($1^\circ \times 1^\circ$ horizontal resolution) exhibit maxima (>330 ppbv) over the tropics with hot spots over Central Africa and South America and minima (<318 ppbv) at high latitudes whatever the season and the time (day/night). A tongue of high N_2O over the equatorial Atlantic Ocean in JJA 2011 is likely attributed to horizontal transport between Africa and South America. Over the tropics, a minimum of N_2O is systematically observed over the Maritime Continent, the region encompassing Indonesia. In the middle latitudes, some local maxima over Mexico and the South East of the United States are depicted in JJA 2011 likely attributed to the presence of an anticyclone that traps N_2O -enriched air masses issued from the tropics. Differences between austral and boreal summers can also be highlighted by: (1) maxima of N_2O over South-Eastern USA in July 2011, and (2) maxima of N_2O over Australia in January 2011. In addition, the vertical structure of IASI N_2O shows a clear delimitation between the troposphere and the stratosphere despite a fixed a priori profile. Considering the rather weak random and systematic errors evaluated over the different continents, this new set of IASI N_2O data, with its realistic distribution, could be used for future on going research to retrieve the emission sources by model inversion.

Supplementary Materials: The following supporting information can be downloaded at <https://www.mdpi.com/article/10.3390/rs14061403/s1>. Figure S1: A priori ($y - F(x_a)$) (blue) and retrieved ($y - F(\hat{x})$) (red) radiance residuals for the 24 pixels observed in and presented in Table 1 and Figure 1. Figure S2: N_2O averaging kernels calculated with TN₂OR v2.0 over the 13-level retrieval grid selected for the 24 pixels measured and presented in Table 1 and Figure 1. Figure S3: Radiance perturbed by 1% of N_2O , CH_4 , H_2O profiles and surface emissivity, and 1 K of temperature profile and surface temperature variation, parameters retrieved with TN₂OR v2.0, for the 24 pixels measured and presented in Table 1 and Figure 1. Figure S4: Vertical distribution of the measurement error (%), smoothing error (%), and total error (%) of the N_2O retrieved with TN₂OR v2.0 for the 24 pixels selected and presented in Table 1 and Figure 1. Figure S5: Vertical distribution of the contamination factors induced of the parameters, other than N_2O , retrieved with TN₂OR v2.0 and affecting the N_2O retrieval for the 24 pixels selected and presented in Table 1 and Figure 1: Temperature (red), H_2O (blue), CH_4 (green), surface temperature (orange) and surface emissivity (purple). Figure S6: Representative N_2O IASI (blue) and NDACC (red) a priori vertical profiles concerning the 9 NDACC stations presented in Table 4 and Figure 1 for specific months for each NDACC stations. Figure S7: Representative monthly-averaged N_2O averaging kernels of IASI computed with TN₂OR v2.0 (above) and NDACC FTIR instruments (below) above the 9 selected NDACC stations presented in Table 4 and Figure 1 for specific months for each NDACC stations.

Author Contributions: Conceptualization, R.C., J.-L.A. and P.R.; data curation, R.C.; formal analysis, R.C.; funding acquisition, J.-L.A. and P.R.; investigation, R.C.; methodology, R.C.; project administration, J.-L.A. and P.R.; resources, J.V. and D.H.; software, R.C., J.V. and Y.K.; supervision, J.-L.A. and P.R.; validation, R.C., J.-L.A. and P.R.; visualization, R.T.; writing—original draft, R.C., J.-L.A. and P.R.; writing—review and editing, R.C., J.-L.A., P.R., Y.K. and J.V. All authors have read and agreed to the published version of the manuscript.

Funding: The TN₂OR project is funded by the Région Occitanie, the University of Toulouse, the Institut National des Sciences de l'Univers (INSU)/Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS), Météo-France, the Centre National d'Etudes Spatiales (CNES), Airbus Defense and Space, and Sciences et technologies pour l'Aéronautique et l'Espace (STAE) foundation. RC's PhD has been funded by Région Occitanie, Airbus Defense and Space, and STAE.

Data Availability Statement: The TN₂OR IASI N_2O data are available on request to J.-L. Attié and P. Ricaud.

Acknowledgments: We would like to thank C. Sweeney (National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA), Global Monitoring Laboratory, Earth System Research Laboratories; Boulder, CO 80305, USA) for providing us with NOAA Global Greenhouse Gas Reference Network (GGGRN) Aircraft data in 2011 as well as his valuable comments on the paper, the National Center for Atmospheric Research (NCAR) for the HIPPO data as open source (<https://www.eol.ucar.edu/>, accessed on 18 February 2022), EUMETSAT for the IASI level 1C and level 2 data as open source (<https://www.eumetsat.int/iasi/>, accessed on 18 February 2022), ECMWF for the CH₄ MACC data as open source (<https://apps.ecmwf.int/>, accessed on 31 August 2021) and the NDACC for the N₂O FTIR data as open source (<http://ndaccdemo.org/>, accessed on 18 February 2022). We also thank the three anonymous reviewers for their encouraging and valuable comments that contribute to improve the paper.

Conflicts of Interest: The authors declare no conflict of interest.

References

1. Prather, M.J.; Hsu, J.; DeLuca, N.M.; Jackman, C.H.; Oman, L.D.; Douglass, A.R.; Fleming, E.L.; Strahan, S.E.; Steenrod, S.D.; Søvdde, O.A.; et al. Measuring and modeling the lifetime of nitrous oxide including its variability. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2015**, *120*, 5693–5705. [[CrossRef](#)] [[PubMed](#)]
2. Stocker, T. *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: Cambridge, UK, 2014.
3. Ravishankara, A.; Daniel, J.S.; Portmann, R.W. Nitrous oxide (N₂O): The dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century. *Science* **2009**, *326*, 123–125. [[CrossRef](#)] [[PubMed](#)]
4. Tian, H.; Xu, R.; Canadell, J.G.; Thompson, R.L.; Winiwarter, W.; Suntharalingam, P.; Davidson, E.A.; Ciais, P.; Jackson, R.B.; Janssens-Maenhout, G.; et al. A comprehensive quantification of global nitrous oxide sources and sinks. *Nature* **2020**, *586*, 248–256. [[CrossRef](#)] [[PubMed](#)]
5. Bakker, D.C.; Bange, H.W.; Gruber, N.; Johannessen, T.; Upstill-Goddard, R.C.; Borges, A.V.; Delille, B.; Löscher, C.R.; Naqvi, S.; Omar, A.M.; et al. Air-sea interactions of natural long-lived greenhouse gases (CO₂, N₂O, CH₄) in a changing climate. In *Ocean-Atmosphere Interactions of Gases and Particles*; Springer: Berlin/Heidelberg, Germany, 2014.
6. Minschwaner, K.; Salawitch, R.; McElroy, M. Absorption of solar radiation by O₂: Implications for O₃ and lifetimes of N₂O, CFCl₃, and CF₂Cl₂. *J. Geophys. Res. Atmos.* **1993**, *98*, 10543–10561. [[CrossRef](#)]
7. Xiong, X.; Maddy, E.S.; Barnett, C.; Gambacorta, A.; Patra, P.K.; Sun, F.; Goldberg, M. Retrieval of nitrous oxide from Atmospheric Infrared Sounder: Characterization and validation. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2014**, *119*, 9107–9122. [[CrossRef](#)]
8. Kangah, Y.; Ricaud, P.; Attié, J.L.; Saitoh, N.; Hauglustaine, D.A.; Wang, R.; El Amraoui, L.; Zbinden, R.; Delon, C. Summertime upper tropospheric nitrous oxide over the Mediterranean as a footprint of Asian emissions. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2017**, *122*, 4746–4759. [[CrossRef](#)]
9. García, O.E.; Schneider, M.; Ertl, B.; Sepúlveda, E.; Borger, C.; Diekmann, C.; Wiegele, A.; Hase, F.; Barthlott, S.; Blumenstock, T.; et al. The MUSICA IASI CH₄ and N₂O products and their comparison to HIPPO, GAW and NDACC FTIR references. *Atmos. Meas. Tech.* **2018**, *11*, 4171–4215. [[CrossRef](#)]
10. Ricaud, P.; Attié, J.L.; Teyssède, H.; Amraoui, L.E.; Peuch, V.H.; Matricardi, M.; Schuessel, P. Equatorial total column of nitrous oxide as measured by IASI on MetOp-A: Implications for transport processes. *Atmos. Chem. Phys.* **2009**, *9*, 3947–3956. [[CrossRef](#)]
11. Ricaud, P.; Sič, B.; El Amraoui, L.; Attié, J.L.; Zbinden, R.; Huszar, P.; Szopa, S.; Parmentier, J.; Jaidan, N.; Michou, M.; et al. Impact of the Asian monsoon anticyclone on the variability of mid-to-upper tropospheric methane above the Mediterranean Basin. *Atmos. Chem. Phys.* **2014**, *14*, 11427–11446. [[CrossRef](#)]
12. García, O.E.; Sepúlveda, E.; Schneider, M.; Hase, F.; August, T.; Blumenstock, T.; Kühl, S.; Munro, R.; Gómez-Peláez, Á.J.; Hultberg, T.; et al. Consistency and quality assessment of the Metop-A/IASI and Metop-B/IASI operational trace gas products (O₃, CO, N₂O, CH₄, and CO₂) in the subtropical North Atlantic. *Atmos. Meas. Tech.* **2016**, *9*, 2315–2333. [[CrossRef](#)]
13. Turquety, S.; Hadji-Lazarou, J.; Clerbaux, C.; Hauglustaine, D.; Clough, S.; Cassé, V.; Schlüssel, P.; Mégie, G. Operational trace gas retrieval algorithm for the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2004**, *109*. [[CrossRef](#)]
14. Kangah, K.G.Y. *Mesure du Protoxyde D’azote (N₂O) Depuis l’espace*. Ph.D. Thesis, Université Paul Sabatier-Toulouse III, Toulouse, France, 2017.
15. Barret, B.; Gouzenes, Y.; Le Flochmoen, E.; Ferrant, S. Retrieval of Metop-A/IASI N₂O profiles and validation with NDACC FTIR data. *Atmosphere* **2021**, *12*, 219. [[CrossRef](#)]
16. Hilton, F.; Armante, R.; August, T.; Barnett, 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. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* **2012**, *93*, 347–370. [[CrossRef](#)]
17. Pougatchev, N.; August, T.; Calbet, X.; Hultberg, T.; Oduleye, O.; Schlüssel, P.; Stiller, B.; Germain, K.S.; Bingham, G. IASI temperature and water vapor retrievals—Error assessment and validation. *Atmos. Chem. Phys.* **2009**, *9*, 6453–6458. [[CrossRef](#)]
18. Rodgers, C.D. *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*; World Scientific: Singapore, 2000; Volume 2.

19. Dufour, G.; Eremenko, M.; Griesfeller, A.; Barret, B.; LeFlochmoën, E.; Clerbaux, C.; Hadji-Lazaro, J.; Coheur, P.F.; Hurtmans, D. Validation of three different scientific ozone products retrieved from IASI spectra using ozonesondes. *Atmos. Meas. Tech.* **2012**, *5*, 611–630. [[CrossRef](#)]
20. Wofsy, S.C. HIAPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO): Fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols. *Philos. Trans. R. Soc. A* **2011**, *369*, 2073–2086. [[CrossRef](#)]
21. Wofsy, S.C.; Daube, B.C.; Jimenez, R.; Kort, E.; Pittman, J.V.; Park, S.; Commane, R.; Xiang, B.; Santoni, G.; Jacob, D.; et al. HIPPO Merged 10-Second Meteorology and Atmospheric Chemistry and Aerosol Data (R_20121129). *Philos. Trans. R. Soc. A* **2012**. [[CrossRef](#)]
22. Hauglustaine, D.; Hourdin, F.; Jourdain, L.; Filiberti, M.A.; Walters, S.; Lamarque, J.F.; Holland, E. Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model: Description and background tropospheric chemistry evaluation. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2004**, *109*. [[CrossRef](#)]
23. Kort, E.; Patra, P.; Ishijima, K.; Daube, B.; Jimenez, R.; Elkins, J.; Hurst, D.; Moore, F.; Sweeney, C.; Wofsy, S. Tropospheric distribution and variability of N₂O: Evidence for strong tropical emissions. *Geophys. Res. Lett.* **2011**, *38*. [[CrossRef](#)]
24. Sweeney, C.; Karion, A.; Wolter, S.; Newberger, T.; Guenther, D.; Higgs, J.A.; Andrews, A.E.; Lang, P.M.; Neff, D.; Dlugokencky, E.; et al. Seasonal climatology of CO₂ across North America from aircraft measurements in the NOAA/ESRL Global Greenhouse Gas Reference Network. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2015**, *120*, 5155–5190. [[CrossRef](#)]
25. Sepúlveda, E.; Schneider, M.; Hase, F.; Barthlott, S.; Dubravica, D.; García, O.E.; Gomez-Pelaez, A.; González, Y.; Guerra, J.C.; Gisi, M.; et al. Tropospheric CH₄ signals as observed by NDACC FTIR at globally distributed sites and comparison to GAW surface in situ measurements. *Atmos. Meas. Tech.* **2014**, *7*, 2337–2360. [[CrossRef](#)]
26. Saunders, R.; Matricardi, M.; Brunel, P. An improved fast radiative transfer model for assimilation of satellite radiance observations. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* **1999**, *125*, 1407–1425. [[CrossRef](#)]
27. Saunders, R.; Hocking, J.; Turner, E.; Rayer, P.; Rundle, D.; Brunel, P.; Vidot, J.; Roquet, P.; Matricardi, M.; Geer, A.; et al. An update on the RTTOV fast radiative transfer model (currently at version 12). *Geosci. Model Dev.* **2018**, *11*, 2717–2737. [[CrossRef](#)]
28. Hocking, J.; Rayer, P.; Rundle, D.; Saunders, R.; Matricardi, M.; Geer, A.; Brunel, P.; Vidot, J. *RTTOV v11 Users Guide*; Met-Office, ECMWF, Météo-France: Paris, France, 2015.
29. Matricardi, M. An assessment of the accuracy of the RTTOV fast radiative transfer model using IASI data. *Atmos. Chem. Phys.* **2009**, *9*, 6899–6913. [[CrossRef](#)]
30. Matricardi, M. *The Generation of RTTOV Regression Coefficients for IASI and AIRS Using a New Profile Training Set and a New Line-by-Line Database*; ECMWF Reading: Reading, UK, 2008.
31. Saunders, R.; Hocking, J.; Rundle, D.; Rayer, P.; Havemann, S.; Matricardi, M.; Geer, A.; Lupu, C.; Brunel, P.; Vidot, J. *RTTOV-12: Science and Validation Report*; Met-Office, ECMWF, Météo-France: Paris, France, 2017.
32. Chevallier, F.; Di Michele, S.; McNally, A.P. *Diverse Profile Datasets from the ECMWF 91-Level Short-Range Forecasts*; European Centre for Medium-Range Weather Forecasts: Reading, UK, 2006.
33. Ricaud, P.; Attié, J.L.; Chalinel, R.; Pasternak, F.; Léonard, J.; Pison, I.; Pattey, E.; Thompson, R.L.; Zelinger, Z.; Lelieveld, J.; et al. The Monitoring Nitrous Oxide Sources (MIN₂OS) satellite project. *Remote Sens. Environ.* **2021**, *266*, 112688. [[CrossRef](#)]
34. Levenberg, K. A method for the solution of certain non-linear problems in least squares. *Q. Appl. Math.* **1944**, *2*, 164–168. [[CrossRef](#)]
35. Marquardt, D.W. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *J. Soc. Ind. Appl. Math.* **1963**, *11*, 431–441. [[CrossRef](#)]
36. Massart, S.; Agusti-Panareda, A.; Aben, I.; Butz, A.; Chevallier, F.; Crevoisier, C.; Engelen, R.; Frankenberg, C.; Hasekamp, O. Assimilation of atmospheric methane products into the MACC-II system: from SCIAMACHY to TANSO and IASI. *Atmos. Chem. Phys.* **2014**, *14*, 6139–6158. [[CrossRef](#)]
37. Loveless, M.; Borbas, E.E.; Knuteson, R.; Cawse-Nicholson, K.; Hulley, G.; Hook, S. Climatology of the Combined ASTER MODIS Emissivity over Land (CAMEL) Version 2. *Remote Sens.* **2021**, *13*, 111. [[CrossRef](#)]
38. Konda, M.; Imasato, N.; Nishi, K.; Toda, T. Measurement of the sea surface emissivity. *J. Oceanogr.* **1994**, *50*, 17–30. [[CrossRef](#)]
39. Clarisse, L.; Coheur, P.F.; Prata, F.; Hadji-Lazaro, J.; Hurtmans, D.; Clerbaux, C. A unified approach to infrared aerosol remote sensing and type specification. *Atmos. Chem. Phys.* **2013**, *13*, 2195–2221. [[CrossRef](#)]
40. Cuesta, J.; Eremenko, M.; Flamant, C.; Dufour, G.; Laurent, B.; Bergametti, G.; Höpfner, M.; Orphal, J.; Zhou, D. Three-dimensional distribution of a major desert dust outbreak over East Asia in March 2008 derived from IASI satellite observations. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2015**, *120*, 7099–7127. [[CrossRef](#)]
41. Rodgers, C.D.; Connor, B.J. Intercomparison of remote sounding instruments. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2003**, *108*. [[CrossRef](#)]
42. Ricaud, P.; Zbinden, R.; Catoire, V.; Brocchi, V.; Dulac, F.; Hamonou, E.; Canonici, J.C.; El Amraoui, L.; Massart, S.; Pignatelli, B.; et al. The GLAM Airborne Campaign across the Mediterranean Basin. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* **2018**, *99*, 361–380. [[CrossRef](#)]
43. Liu, C.; Zipser, E.J. Global distribution of convection penetrating the tropical tropopause. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2005**, *110*. [[CrossRef](#)]
44. Dion, I.A.; Ricaud, P.; Haynes, P.; Carminati, F.; Dauhut, T. Ice injected into the tropopause by deep convection—Part 1: In the austral convective tropics. *Atmos. Chem. Phys.* **2019**, *19*, 6459–6479. [[CrossRef](#)]

Supplementary Materials: Evaluation and Global-Scale Observation of Nitrous Oxide from IASI on Metop-A

Rémi Chânel¹, Jean-Luc Attié^{1,*}, Philippe Ricaud^{2,*}, Jérôme Vidot³, Yannick Kangah⁴, Didier Hauglustaine⁵ and Rona Thompson⁶

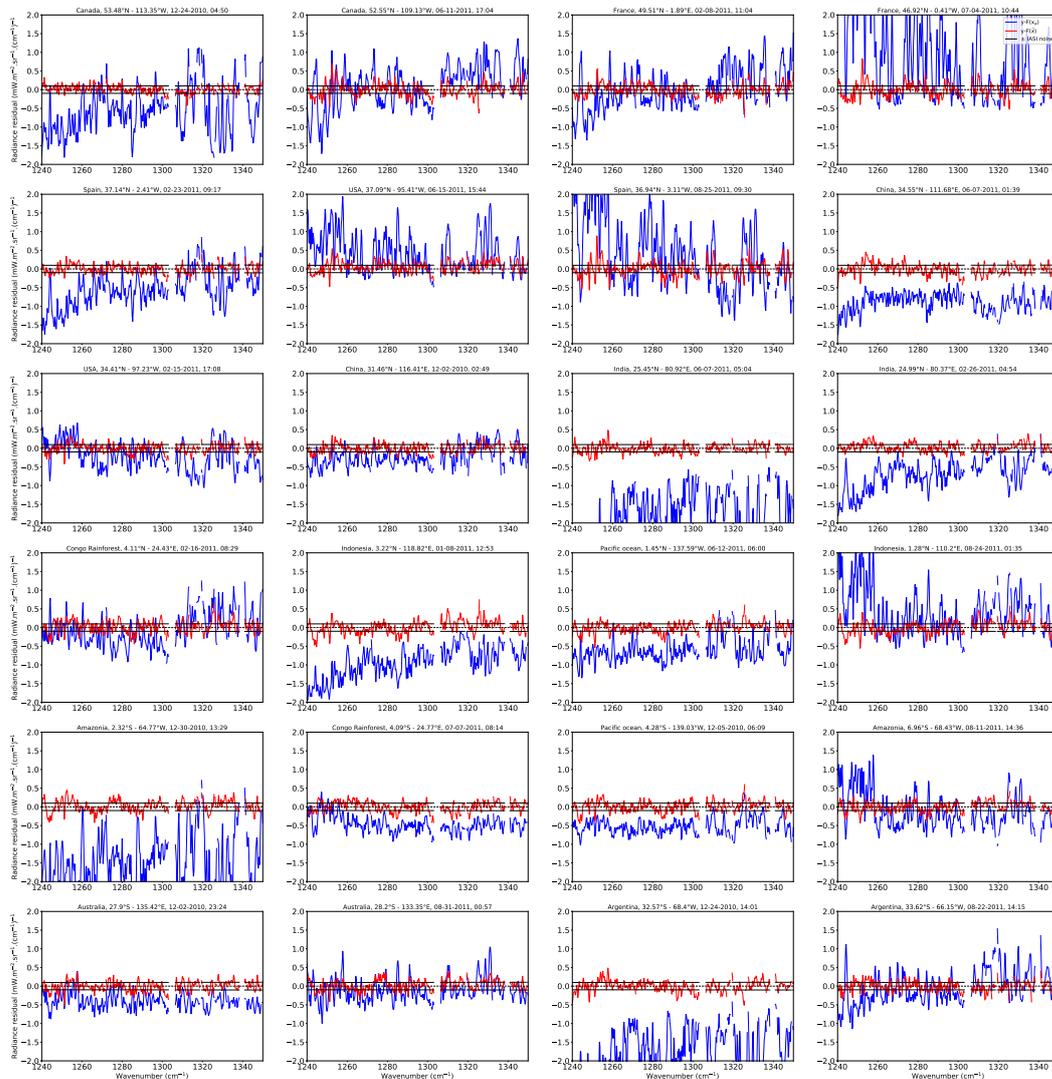


Figure S1. A priori ($y - F(x_a)$) (blue) and retrieved ($y - F(\hat{x})$) (red) radiance residuals for the 24 pixels observed in and presented in table 1 and figure 1.

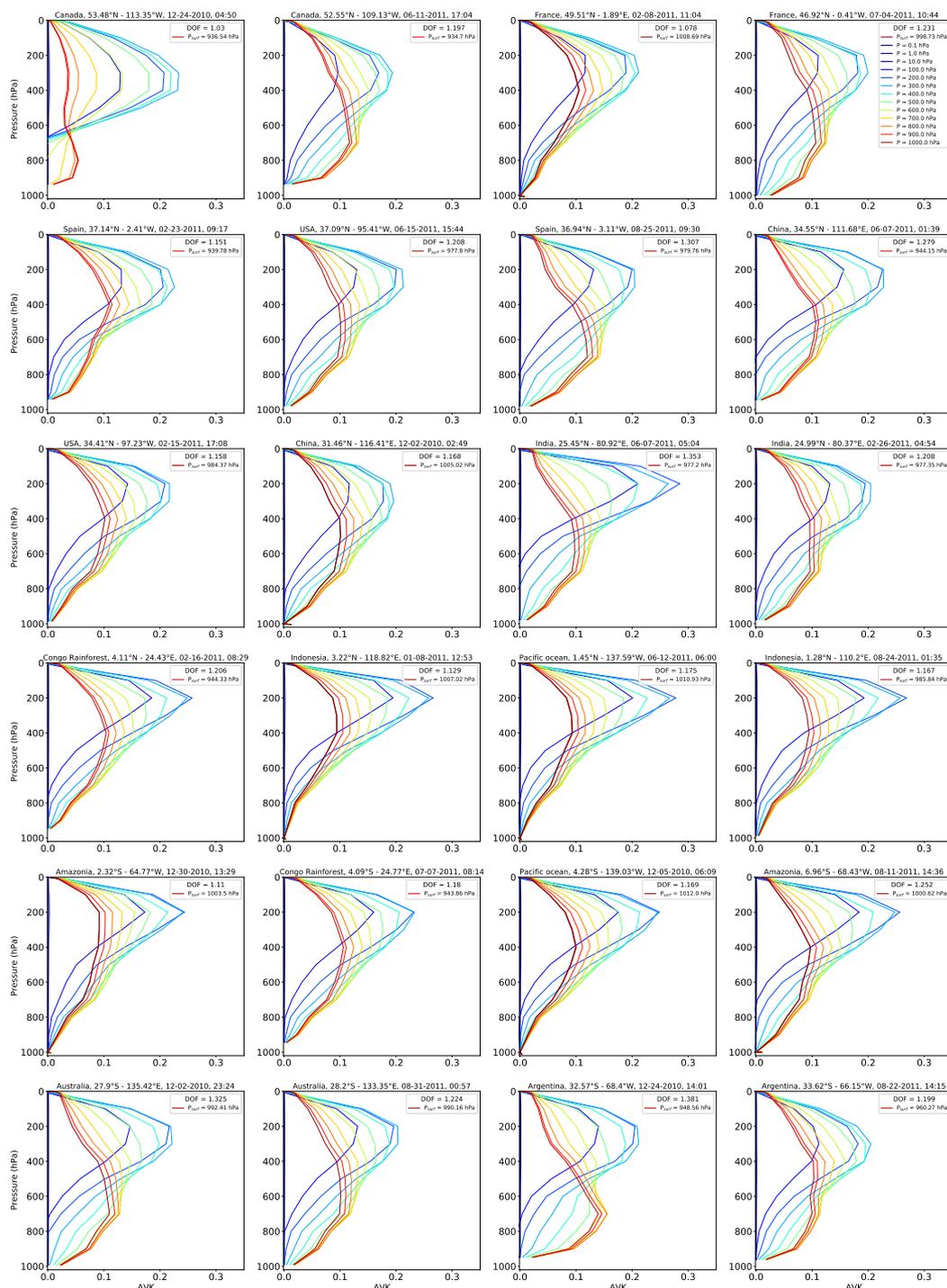
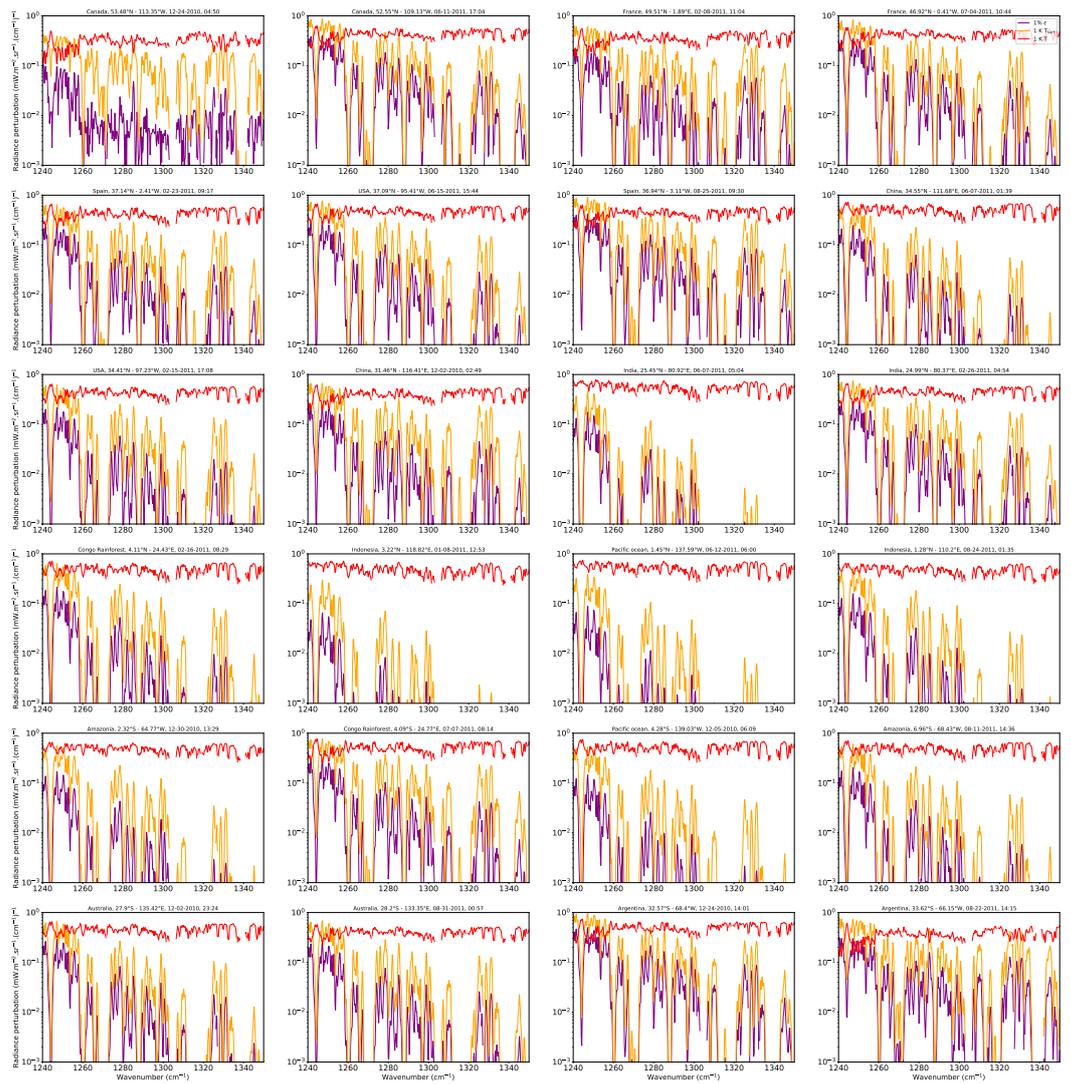


Figure S2. N₂O averaging kernels calculated with TN₂OR v2.0 over the 13-level retrieval grid selected for the 24 pixels measured and presented in table 1 and figure 1.



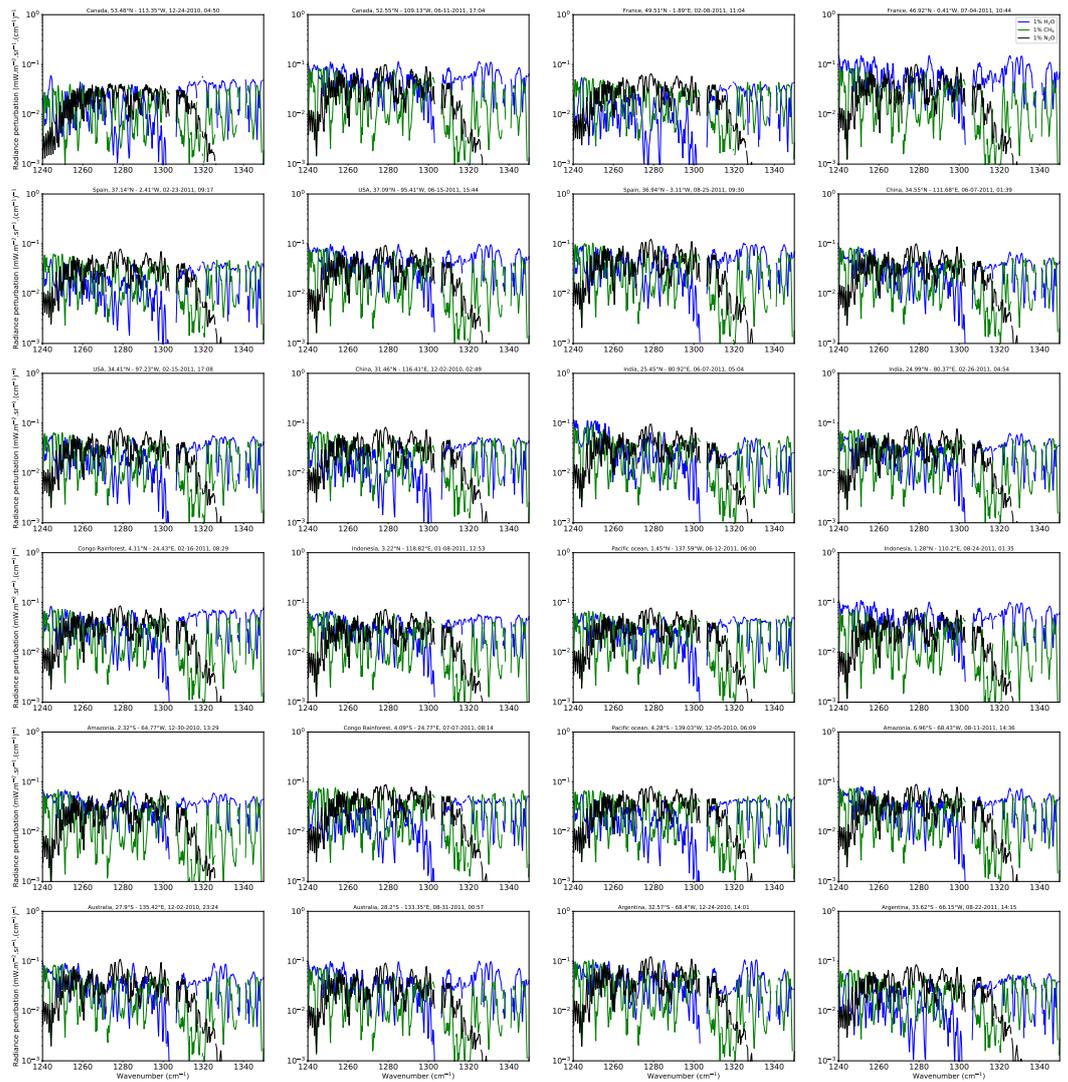


Figure S3. Radiance perturbed by 1% of N_2O , CH_4 , H_2O profiles and surface emissivity, and 1 K of temperature profile and surface temperature variation, parameters retrieved with TN₂OR v2.0, for the 24 pixels measured and presented in table 1 and figure 1.

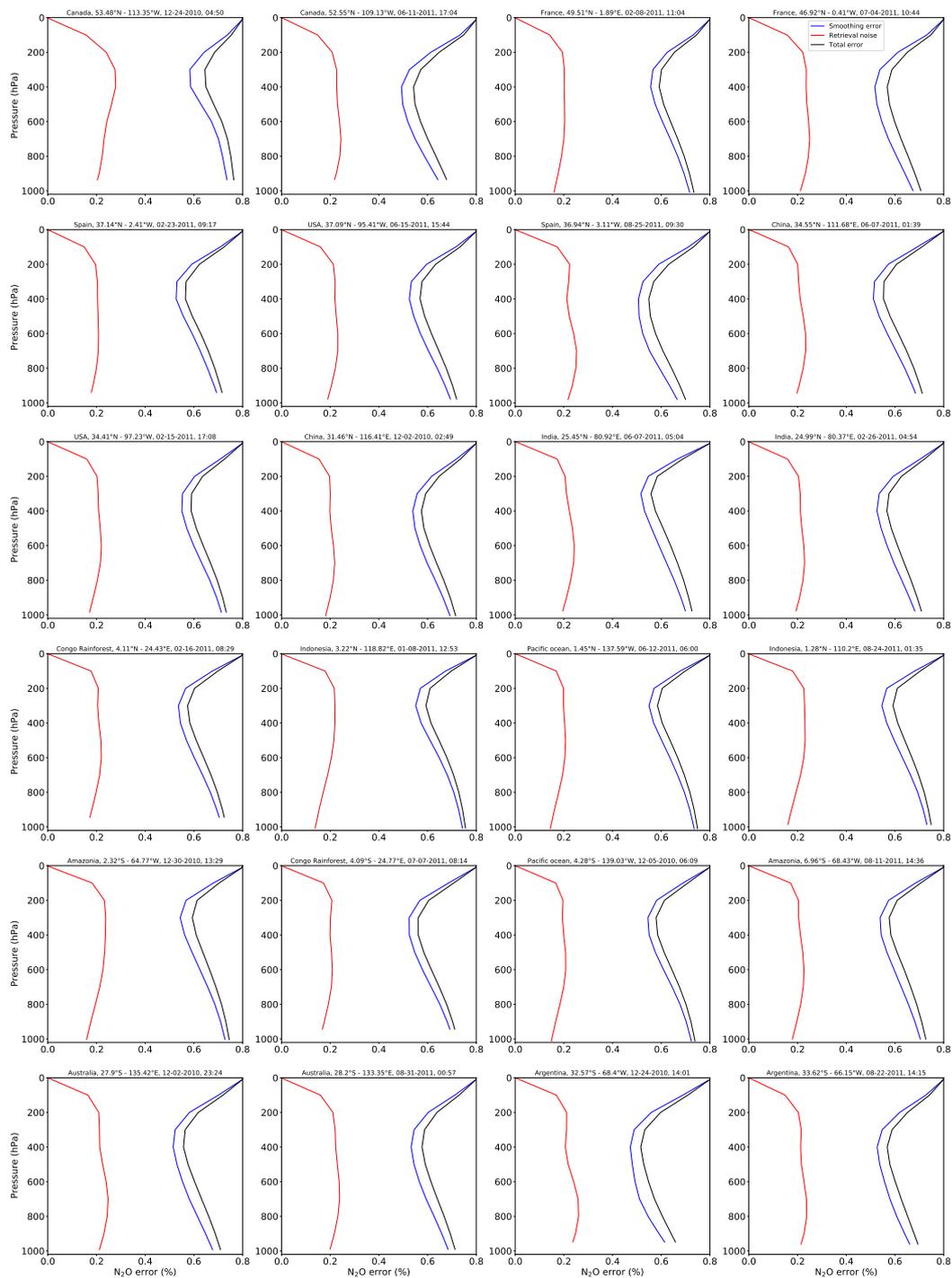


Figure S4. Vertical distribution of the measurement error (%), smoothing error (%), and total error (%) of the N₂O retrieved with TN₂OR v2.0 for the 24 pixels selected and presented in table 1 and figure 1.

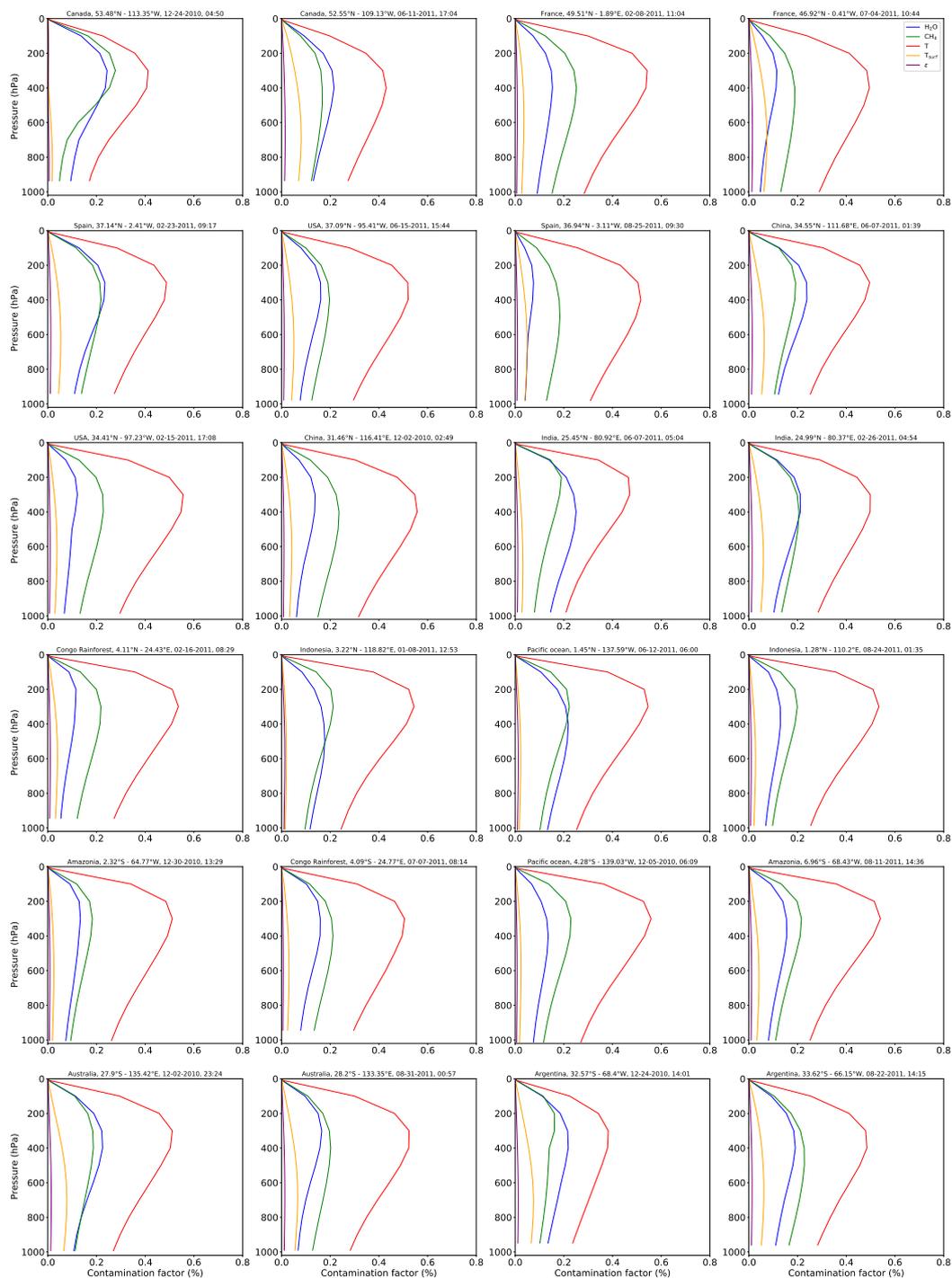


Figure S5. Vertical distribution of the contamination factors induced of the parameters, other than N₂O, retrieved with TN₂OR v2.0 and affecting the N₂O retrieval for the 24 pixels selected and presented in table 1 and figure 1: Temperature (red), H₂O (blue), CH₄ (green), surface temperature (orange) and surface emissivity (purple)

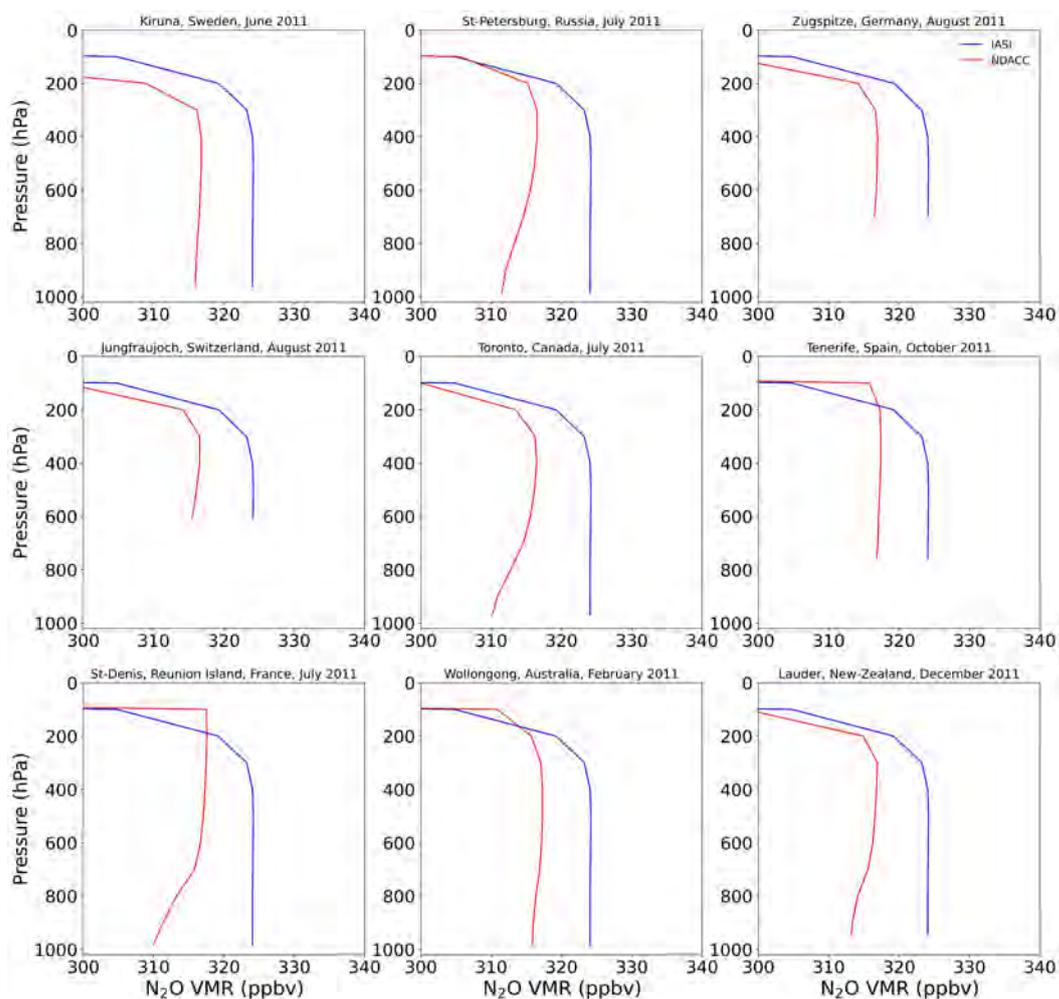
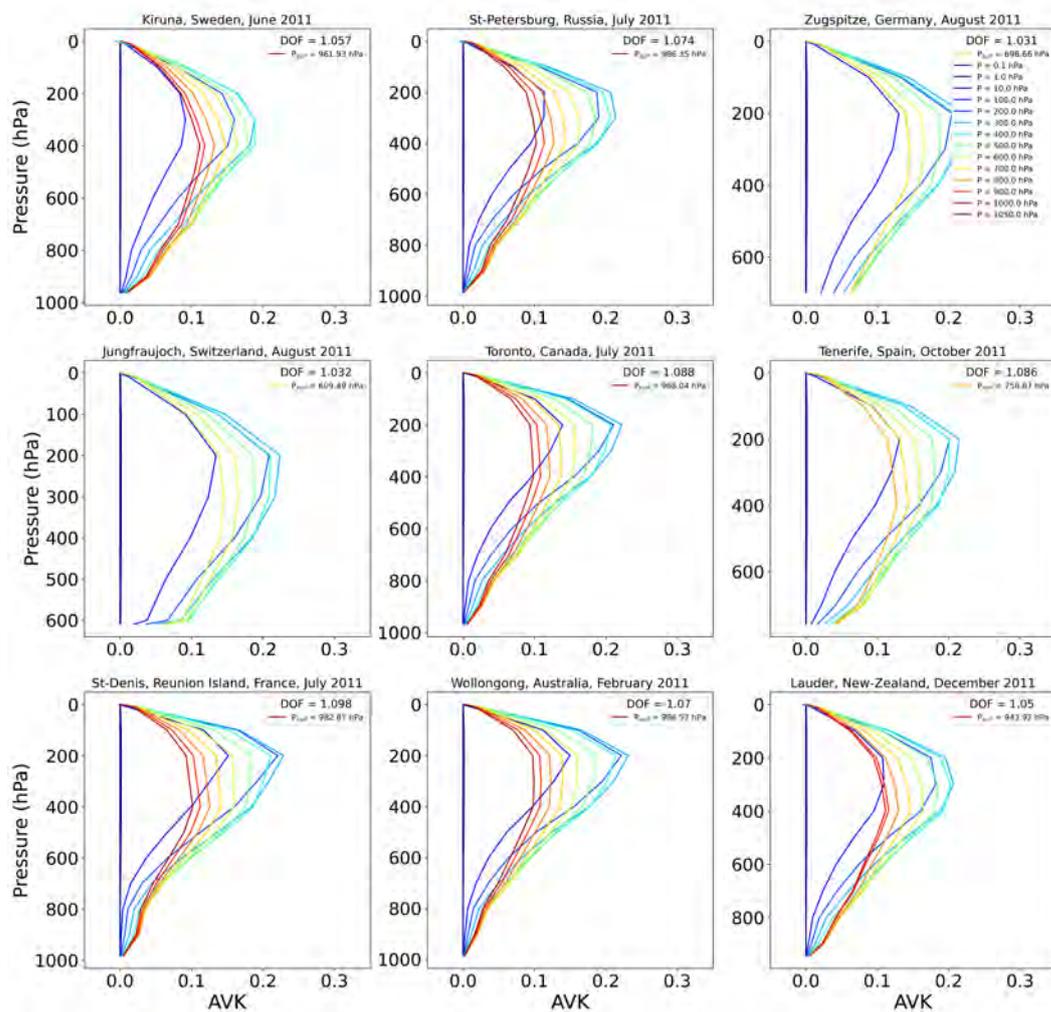


Figure S6. Representative N₂O IASI (blue) and NDACC (red) a priori vertical profiles concerning the 9 NDACC stations presented in table 4 and figure 1 for specific months for each NDACC stations.

N₂O IASI AVK for the 9 stations, 2011



N₂O NDACC AVK for the 9 stations, 2011

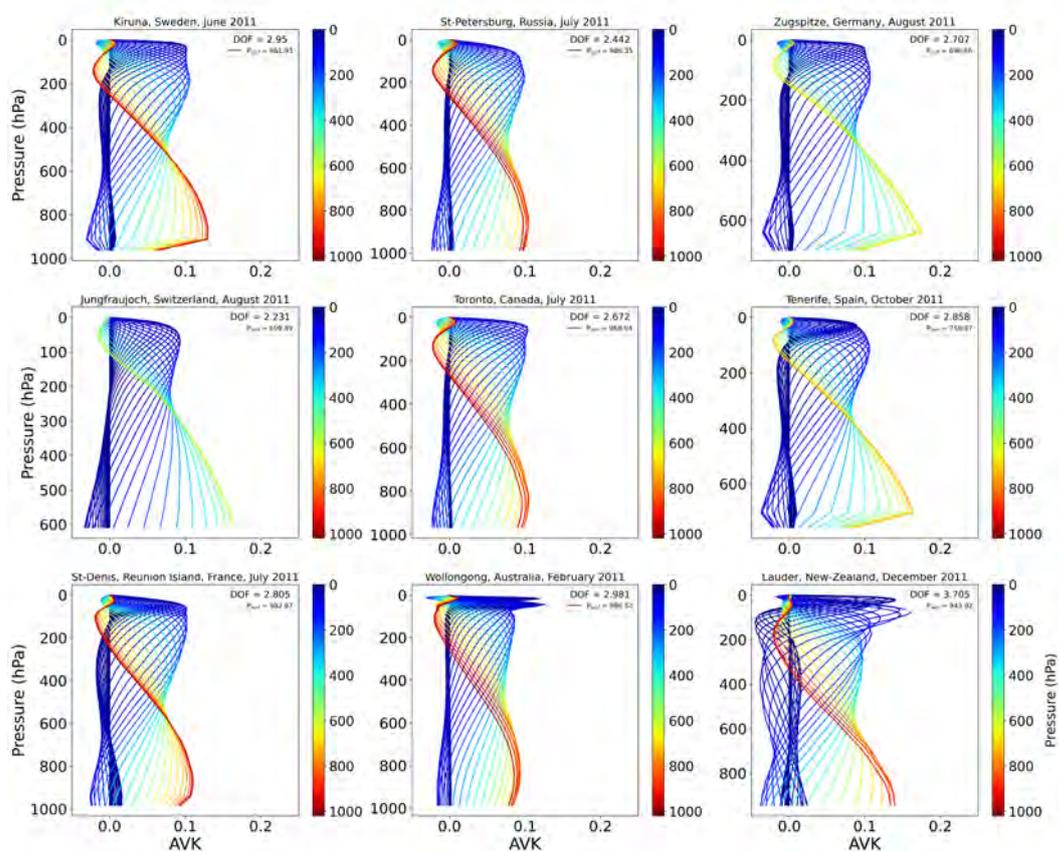


Figure S7. Representative monthly-averaged N₂O averaging kernels of IASI computed with TN₂OR v2.0 (above) and NDACC FTIR instruments (below) above the 9 selected NDACC stations presented in table 4 and figure 1 for specific months for each NDACC stations.

4.3. Comparaison du N₂O de IASI obtenu avec TN₂OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM

4.3 Comparaison du N₂O de IASI obtenu avec TN₂OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM

Une étude sur la variabilité intra-annuelle des concentrations de N₂O obtenues avec TN₂OR v2.0 pour IASI a été menée sur l'ensemble de l'année 2011, à laquelle on rajoute le mois de décembre 2010 (section 4.3.2). Celles-ci ont été comparées, sur la même période aux modèles LMDz-INCA (Hauglustaine et al., 2004) et MIROC4-ACTM (Patra et al., 2018). À l'échelle globale, la grille horizontale de MIROC4-ACTM ($2.8125^\circ \times 1.40625^\circ$) est choisie pour l'étude de comparaison, car celle-ci possède une résolution spatiale plus faible que les grilles de IASI et de LMDz. En effet, la grille horizontale de IASI possède une résolution de $1^\circ \times 1^\circ$. La grille horizontale de LMDz possède quant à elle une résolution de $2.5^\circ \times 1.285^\circ$. Ces dernières ont donc été rééchantillonnées sur la grille de MIROC4-ACTM. Ensuite, les deux modèles utilisés ont été interpolés verticalement sur les niveaux d'inversion de IASI de TN₂OR v2.0 (tab. 3.2). De plus, pour un mois donné et pour chaque profil de IASI contenu dans une maille de la grille de MIROC4-ACTM, on convolue le profil moyen mensuel de N₂O du modèle brut (LMDz ou MIROC4-ACTM) par la matrice des fonctions de balayage du profil IASI correspondant, en utilisant l'équation 3.16. Puis on moyenne chacun des profils convolués calculés précédemment. On obtient ainsi un profil mensuel moyen pour chaque maille de la grille. Pour la suite, on désignera les modèles convolués simplement par leur nom.

4.3.1 Variabilité annuelle du N₂O

Les concentrations globales de N₂O de IASI, ainsi que celles des modèles LMDz et MIROC4-ACTM montrent tout d'abord, à 300 et 500 hPa, un biais négatif moyen d'environ -3 ppbv entre les restitutions de N₂O de IASI et les données N₂O de MIROC4-ACTM (~ 325 vs ~ 328 ppbv), ainsi qu'un biais proche de 0 ppbv entre ces mêmes restitutions et les données LMDz (fig. 4.1-haut). De plus entre 300 et 500 hPa, on constate une augmentation moyenne de N₂O de ~ 1 ppbv du modèle LMDz, et de ~ 2 ppbv du modèle MIROC4. Pour les observations de N₂O de IASI, les concentrations, à 300 et 500 hPa, sont similaires. De plus, on observe que ces dernières sont maximum en hiver boréal (~ 325.5 ppbv en février et ~ 327 ppbv en décembre 2011 à 300 et 500 hPa) et minimum en été boréal (~ 324 ppbv en juin 2011 à 300 et 500 hPa). Les modèles montrent eux, une légère augmentation

Chapitre 4. Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A

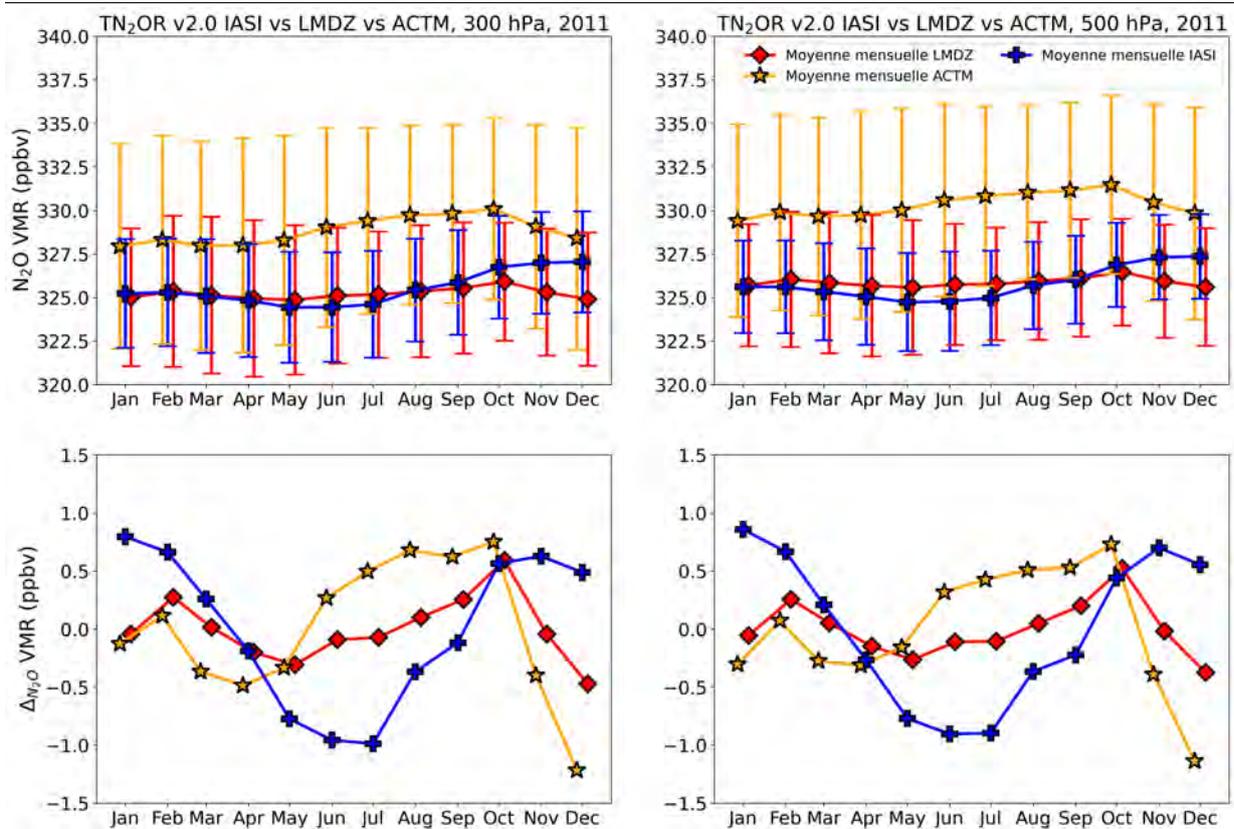


FIGURE 4.1 – Haut : Évolution temporelle, sur l'année 2011, des moyennes globales de N₂O pour IASI (bleu), LMDz (rouge) et MIROC4-ACTM (orange) à 300 hPa (gauche) et 500 hPa (droite). Bas : Variabilité intra-annuelle du N₂O sur l'année 2011 de IASI, LMDz et MIROC4-ACTM, à laquelle on retire la pente ainsi que la moyenne de N₂O pour chacun des jeux de données.

de la concentration, plus significative avec MIROC4, entre avril et mai (selon le modèle) jusqu'à octobre 2011, où un maximum de concentration est atteint, avec LMDz et MIROC4 respectivement de 325.5 et 330 ppbv à 300 hPa, puis de 326 et 332 ppbv à 500 hPa. Ces dernières décroissent linéairement entre octobre et décembre 2011 pour retrouver une valeur proche de celle obtenue en janvier 2011, c'est-à-dire 324 et 328 ppbv à 300 hPa, puis 325 et 330 ppbv à 500 hPa, respectivement avec LMDz et MIROC4. Globalement, l'évolution temporelle de N₂O des observations IASI montre un cycle saisonnier de 2011 de faible amplitude, d'environ ± 1 ppbv (fig. 4.1-bas). Ce cycle saisonnier est d'ailleurs cohérent avec celui obtenu par les données mensuelles des mesures effectuées en surface maritime par la NOAA (Dlugokencky, 2022). En revanche, les données N₂O des modèles ont, à 300 et 500 hPa, une variabilité intra-annuelle relativement proche entre elles, mais une différence significative du cycle saisonnier obtenu par les restitutions de N₂O de IASI (fig. 4.1-bas).

4.3. Comparaison du N₂O de IASI obtenu avec TN₂OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM

L'amplitude des valeurs de N₂O de LMDz est de ~ 0.5 ppbv avec un maximum en octobre et un minimum en décembre. Le constat est identique avec MIROC4-ACTM, avec néanmoins une amplitude légèrement plus élevée (~ 1 ppbv). Étant donnée la grande similarité des données à 300 et 500 hPa, nous nous intéresserons pour la suite uniquement aux données à 300 hPa.

La figure 4.2 montre la distribution horizontale des corrélations des variations intra-annuelles de N₂O sur 2011 entre IASI et les modèles. Elle permet de déterminer si les restitutions de N₂O de IASI avec TN₂OR v2.0 suivent les évolutions temporelles du N₂O calculées par les modèles LMDz et MIROC4-ACTM durant le cours de l'année 2011. Tout d'abord, on s'intéresse uniquement aux mailles de la grille MIROC4-ACTM possédant une donnée mensuelle de N₂O à 300 hPa pour chaque mois de l'année 2011. Cela représente la quasi totalité du globe. Les hautes latitudes nord ($\geq 75^\circ\text{N}$) et sud ($\geq 75^\circ\text{S}$), dont une partie de l'océan Austral ainsi que l'Antarctique, sont des régions exclues de ce cas d'étude. Les résultats montrent, à 300 hPa autour de 30°N , que les restitutions de N₂O de IASI et les sorties des modèles une corrélation supérieure à 0.7. Ces résultats sont localisés sur une étendue latitudinale supérieure avec LMDz ($0^\circ - 50^\circ\text{N}$) qu'avec MIROC4-ACTM ($15^\circ\text{N} - 45^\circ\text{N}$). Certaines régions, à ces latitudes, notamment le sud de la Chine ou l'Afrique de l'ouest, montrent des corrélations peu similaires les données de IASI et ceux de MIROC4-ACTM ($0 \leq R \leq 0.3$). À 30°S , les corrélations entre les concentrations de N₂O à 300 hPa de IASI et MIROC4-ACTM sont supérieures à 0.5, dans la zone longitudinale comprise entre 0 et 120°O . Ailleurs, à l'exception de l'Australie, où la corrélation est négative (≤ -0.5), celle-ci est comprise entre 0.3 et 0.5. Avec LMDz, et à cette bande de latitude, les valeurs de N₂O comparées aux restitutions de IASI sont moins cohérentes ($0 \leq R \leq 0.3$).

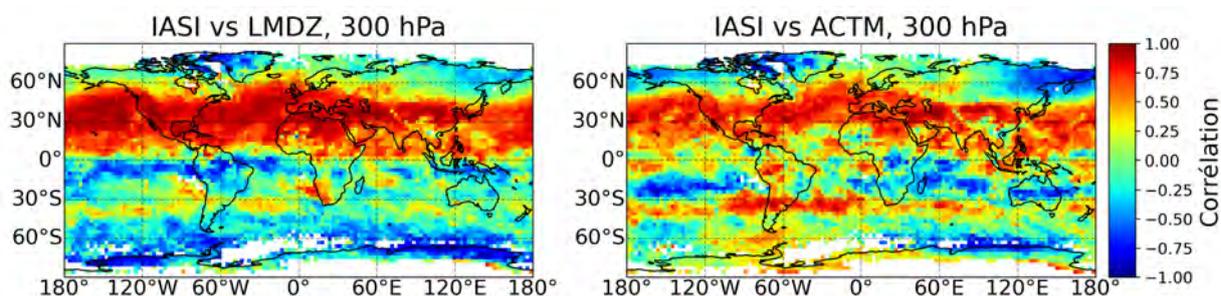


FIGURE 4.2 – Distribution horizontales des corrélations des variations intra-annuelles de l'année 2011 des rapports de mélange du N₂O à 300 hPa sur la grille MIROC4-ACTM ($2.8125^\circ \times 1.40625^\circ$) entre IASI et LMDz (gauche) et entre IASI et MIROC4-ACTM (droite).

Chapitre 4. Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A

En revanche, dans les bandes latitudinales restantes, les corrélations entre les données de N_2O de IASI et celles des modèles sont négatives. C'est le cas dans la zone intertropicale comprise entre $25^\circ S$ et $25^\circ N$, en particulier dans l'Océan Pacifique ($R \leq -0.7$), en Afrique équatoriale (≤ -0.5 avec LMDz et ≤ -0.3 avec MIROC4-ACTM), dans l'Océan Indien (~ -0.6) et au centre de l'Australie (~ -0.6) avec MIROC4-ACTM, et en Amazonie avec LMDz (~ -0.7). Les corrélations sont également négatives à $60^\circ N$ avec MIROC4-ACTM, à l'est de la Russie et en Alaska (≤ -0.5). Enfin avec LMDz, on observe des corrélations comprises entre -0.2 et 0 dans les zones citées précédemment.

Les résultats obtenus sur la figure 4.2, entre les observations IASI et les modèles convolués peuvent être expliquées d'une part par l'unicité du profil a priori de N_2O utilisé pour les restitutions de IASI (fig. 3.11) Implicitement, une seule hauteur de tropopause est définie et la concentration de N_2O est globalement homogène sur la verticale dans la troposphère, même si les restitutions de N_2O de IASI semblent avoir une certaine sensibilité au niveau de la tropopause (voir section 4.3.2). Le profil a priori de N_2O décroît de 300 hPa jusqu'à 0.1 hPa. Cette pression correspond à une hauteur fixe de tropopause située dans l'hémisphère nord à environ $30^\circ N$ et dans l'hémisphère sud autour de $40^\circ S$ (Holton, 2015). Les latitudes en question correspondent à celles où les corrélations de N_2O à 300 hPa entre les restitutions de IASI avec TN₂OR v2.0 et les modèles sont les plus élevées (≥ 0.7), surtout pour MIROC4-ACTM dans l'hémisphère sud. D'autre part, les corrélations négatives constatées dans l'hémisphère nord sur les terres peuvent être interprétées comme une mauvaise convergence des restitutions du N_2O , dues notamment à une difficulté à restituer l'émissivité de surface dans ces zones froides où la surface est neigeuse ou gelée, ou encore à un faible signal radiatif causé par une température très faible. De plus, les résultats obtenus, notamment dans les zones où les corrélations sont négatives, peuvent être justifiés par des difficultés rencontrés par les modèles. Ce dernier point sera discuté plus en détail dans la section 4.3.2.

Il est possible de déterminer à l'aide de la figure 4.3, à 300 hPa et en 2011, les données mensuelles contribuant aux corrélations faibles ou négatives calculées entre les observations IASI et les modèles observées sur la figure 4.2, notamment à l'équateur. À ces latitudes, en particulier entre 0 et $10^\circ S$, l'évolution temporelle de N_2O de IASI est cohérente avec celle observée globalement (fig. 4.1), avec des maxima en hiver boréal et un minima en juin-juillet. Avec LMDz, on note des maxima de N_2O constants entre janvier et juin 2011 (~ 329 ppbv), puis une légère diminution, dont la valeur demeure constante jusqu'à octobre (~ 328

4.3. Comparaison du N₂O de IASI obtenu avec TN₂OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM

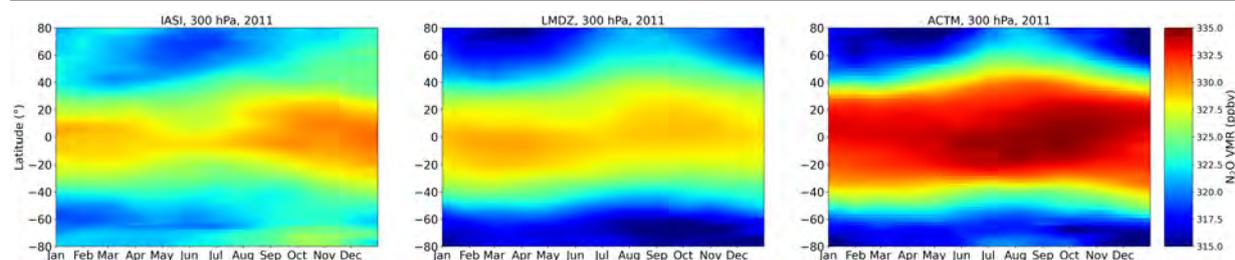


FIGURE 4.3 – Évolution temporelle des concentrations moyennes latitudinales de N₂O, à 300 hPa, en fonction de la latitude sur l'ensemble de l'année 2011 pour IASI (gauche), LMDz (milieu) et MIROC4-ACTM (droite).

ppbv). On constate enfin une diminution en octobre jusqu'à la fin de l'année (~ 327 ppbv). Avec MIROC4-ACTM, un phénomène inverse à celui observé avec LMDz se produit. Ce phénomène est, à l'instar des observations de N₂O de IASI, cohérent avec ce qui est obtenu globalement pour MIROC4-ACTM. On observe des concentrations constantes entre janvier et mai (~ 332 ppbv), puis celles-ci augmentent pour atteindre entre juin et novembre une valeur supérieure à 335 ppbv. Finalement, les valeurs de N₂O de IASI et LMDz sont non-corrélées entre janvier et juin 2011 puis anti-corrélées entre juillet et décembre 2011. Les concentrations de N₂O de IASI et MIROC4-ACTM sont non-corrélées entre janvier et mai 2011 puis corrélées entre juillet et octobre et enfin anti-corrélées entre octobre et décembre.

4.3.2 Variabilités saisonnières du N₂O

Sur la période décembre 2010 jusqu'à novembre 2011, des moyennes saisonnières de concentrations de N₂O ont été effectuées (pour décembre-janvier-février noté DJF, mars-avril-mai noté MAM, juin-juillet-août noté JJA et septembre-octobre-novembre noté SON) pour les modèles et pour les observations de IASI. Celles-ci sont obtenues à partir de chaque profil mensuel moyen de la grille de MIROC4-ACTM, en moyennant ceux-ci maille par maille et en prenant en compte le nombre de profils contenus dans chaque maille pour chaque mois.

L'ensemble des données de N₂O possède généralement des valeurs maximales au niveau de l'équateur, en particulier en Afrique centrale, et ce pour toutes les saisons (fig. 4.4). En revanche, ces maxima varient en fonction du jeu de données. Pour IASI, les maxima saisonniers sont situés autour de 332 ppbv. Pour LMDz ils sont compris autour de 329 ppbv et pour MIROC4-ACTM, ceux-ci atteignent les 335 ppbv. Sur l'année 2011, on observe, à

Chapitre 4. Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A

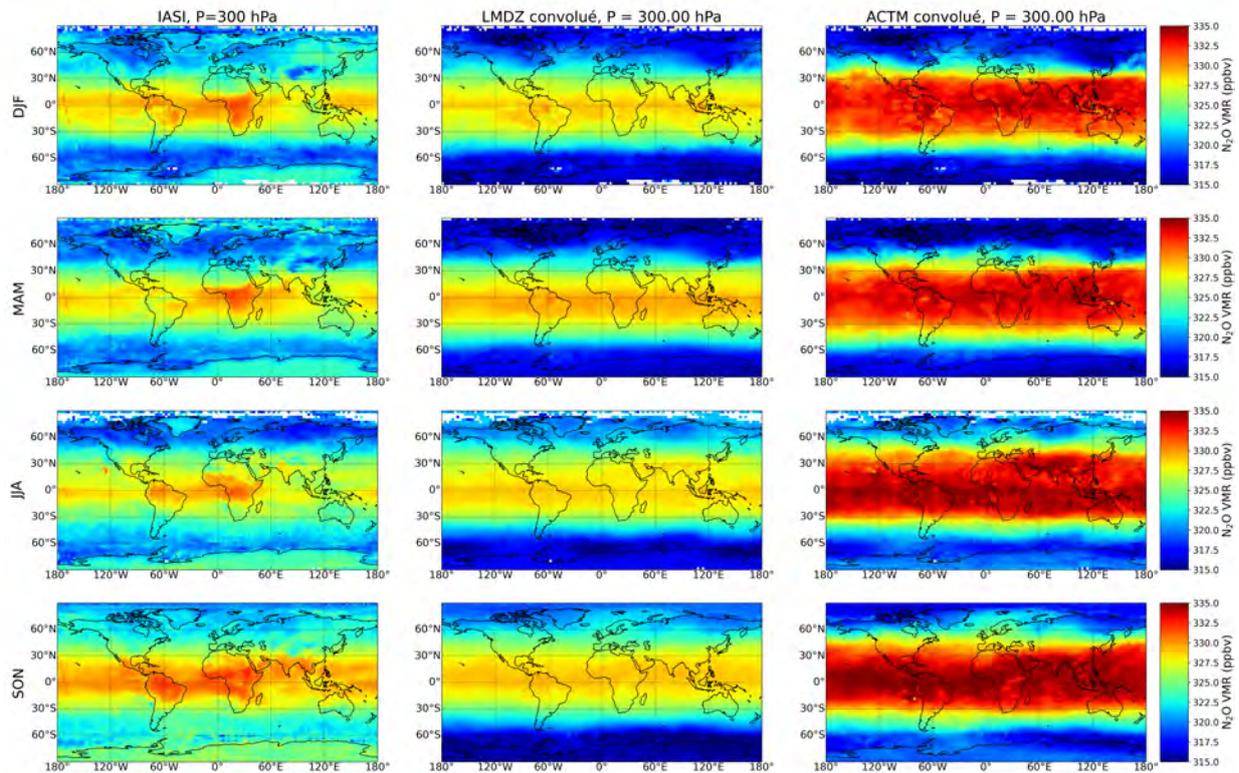


FIGURE 4.4 – Cartographies à l'échelle globale sur la grille de MIROC4-ACTM ($2.8125^{\circ} \times 1.40625^{\circ}$) entre décembre 2010 et novembre 2011 des moyennes saisonnières des rapports de mélange du N₂O (ppbv) à 300 hPa pour les restitutions de IASI (à gauche), de LMDz (au milieu) et de MIROC4-ACTM (à droite). De haut en bas, résultats obtenus respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON.

échelle globale, une augmentation générale de la concentration de N₂O avec IASI, particulièrement visible au-dessus des maxima locaux (Afrique et Amérique du sud). Celles-ci varient néanmoins au cours de l'année. Les valeurs de N₂O de IASI diminuent entre les période DJF et JJA de manière générale et plus spécifiquement en Afrique centrale, au-dessus des Océans Atlantique et Pacifique, puis au niveau du continent maritime (partie insulaire localisée au nord de l'Australie), passant en moyenne de 328 à 326 ppbv. Localement en Amazonie, la diminution est progressive sur une période plus courte, entre les périodes DJF et MAM (de 329 à 326 ppbv) puis réaugmente en JJA de 3 ppbv, retrouvant son niveau de la période DJF. Elles augmentent enfin de manière générale sur l'ensemble du globe, avec des valeurs maximales de N₂O proches de 332 ppbv en Afrique équatoriale et en Amazonie, où sont d'ailleurs présentes les plus grandes forêts équatoriales, connues pour être de fortes sources de N₂O. Selon la période de l'année, les minima de N₂O de IASI à 300 hPa, d'une valeur proche de 320 ppbv, sont soit situés aux hautes latitudes

4.3. Comparaison du N₂O de IASI obtenu avec TN₂OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM

dans l'hémisphère nord au-delà de 50°N, pendant le printemps, l'été et l'automne boréal (MAM, JJA et SON), soit aux hautes latitudes dans l'hémisphère sud, au-delà de 50°S et ne comprenant pas l'Antarctique (en raison de la très faible sensibilité au N₂O de IASI dans cette région) le reste de l'année, pendant l'hiver boréal (DJF). Le minimum de N₂O observé au-delà de 45° de latitude nord et sud, pendant la période SON est légèrement plus élevé (~321 ppbv). De plus, on constate, sur la figure 4.5 représentant les distributions des anomalies saisonnières de chaque jeu de données, que les valeurs de N₂O de IASI oscillent entre -2 et +2 % (±6 ppbv).

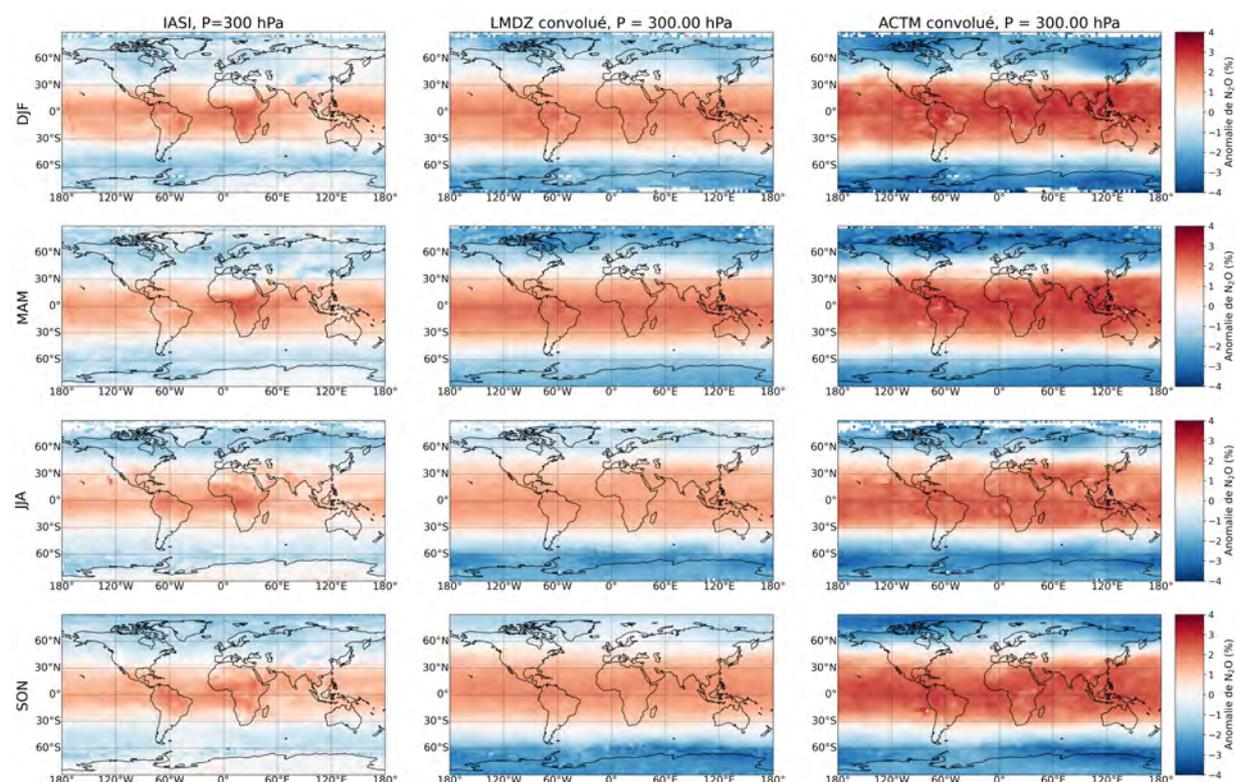


FIGURE 4.5 – Cartographies à l'échelle globale sur la grille de MIROC4-ACTM ($2.8125^\circ \times 1.40625^\circ$) entre décembre 2010 et novembre 2011 des anomalies saisonnières des rapports de mélange du N₂O (ppbv) à 300 hPa pour les restitutions de IASI (à gauche), de LMDz (au milieu) et de MIROC4-ACTM (à droite). De haut en bas, résultats obtenus pour respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON.

En comparaison avec IASI, le modèle LMDz varie globalement plus faiblement. Sur l'ensemble de l'année et à l'échelle globale, l'amplitude des données de N₂O du modèle convolué est d'environ 1 ppbv. On observe d'ailleurs des maxima durant les périodes DJF et JJA à 329 ppbv et des maxima en MAM et SON autour des tropiques, notamment au niveau de l'équateur, plus faibles et de 328 ppbv. Dans l'ensemble et pour chaque saison

Chapitre 4. Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A

avec LMDz, les rapports de mélange de N_2O ont plutôt tendance à évoluer uniquement de manière latitudinale excepté pendant la période DJF. En effet, des valeurs plus faibles, estimées à 326 ppbv sont localisées en Australie quand ailleurs, aux mêmes latitudes ($15^\circ S$ - $40^\circ S$), ces valeurs oscillent entre 327 et 328 ppbv. Cette faible variabilité longitudinale des rapports de mélange de N_2O des modèles n'est pas visible sur les cartographies de N_2O de IASI. Avec LMDz, les minima sont situés pour l'ensemble des saisons en Antarctique et dans l'océan Austral, au-delà de $50^\circ S$. Parfois, ces minima sont partagés entre les hautes latitudes de l'hémisphère nord et sud, notamment durant les deux premières saisons de l'année 2011. Ils possèdent une valeur proche de 316 ppbv. L'amplitude des variabilités du N_2O avec LMDz est légèrement plus élevée que celle obtenue avec IASI. En effet celle-ci, due en partie aux très faibles valeurs de N_2O observées aux hautes latitudes, varie entre -2.5 et 2.5 ppbv ($\pm 0.77\%$ par rapport à la moyenne).

Enfin, les cartographies à 300 hPa du modèle MIROC4-ACTM montrent au cours de l'année une augmentation progressive des maxima situés au niveau de l'équateur. Les différences ainsi que les variabilités entre les périodes DJF et MAM sont très faibles (fig. 4.5). Ils possèdent les mêmes maxima, présents entre $30^\circ S$ et $30^\circ N$ d'une valeur de 332 ppbv. Tout comme LMDz, MIROC4-ACTM affiche une faible variabilité longitudinale des concentrations de N_2O , à la différence de IASI. Durant ces périodes, les minima sont, tout comme LMDz et IASI, localisés au niveau des pôles, au-delà de 60° de latitude, mais davantage similaires à ceux de LMDz qu'à ceux de IASI (~ 316 ppbv). L'augmentation générale des concentrations de N_2O débute au cours du printemps et se poursuit en JJA, ainsi qu'en automne, (MAM, JJA et SON). Tout d'abord, les maxima, initialement autour de 332 ppbv, atteignent 335 ppbv en été et sont présents surtout dans les océans équatoriaux mais aussi au-dessus de l'Inde. Ils augmentent plus faiblement sur les continents (~ 333 -334 ppbv). Les minima situés aux hautes latitudes augmentent également en passant de 316 à 320 ppbv dans l'hémisphère nord ($+1.2\%$) et de 316 à 318 ppbv ($+0.6\%$) dans l'hémisphère sud. De manière générale, il s'agit d'un phénomène contraire à celui observé par IASI durant cette période de l'année. Ensuite, durant la période SON, ce phénomène s'étend latitudinalement. En effet, les maxima sont plutôt situés entre $15^\circ S$ et $15^\circ N$, alors que ceux-ci étaient davantage localisés autour de l'équateur en JJA. Ce phénomène global d'augmentation de N_2O à 300 hPa est, à l'instar de IASI et LMDz, observable avec MIROC4-ACTM.

Globalement à 300 hPa, les modèles ont probablement des difficultés à distinguer les mouvements dynamiques de N_2O situés au-dessus des sources potentielles, contrairement à

4.3. Comparaison du N₂O de IASI obtenu avec TN₂OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM

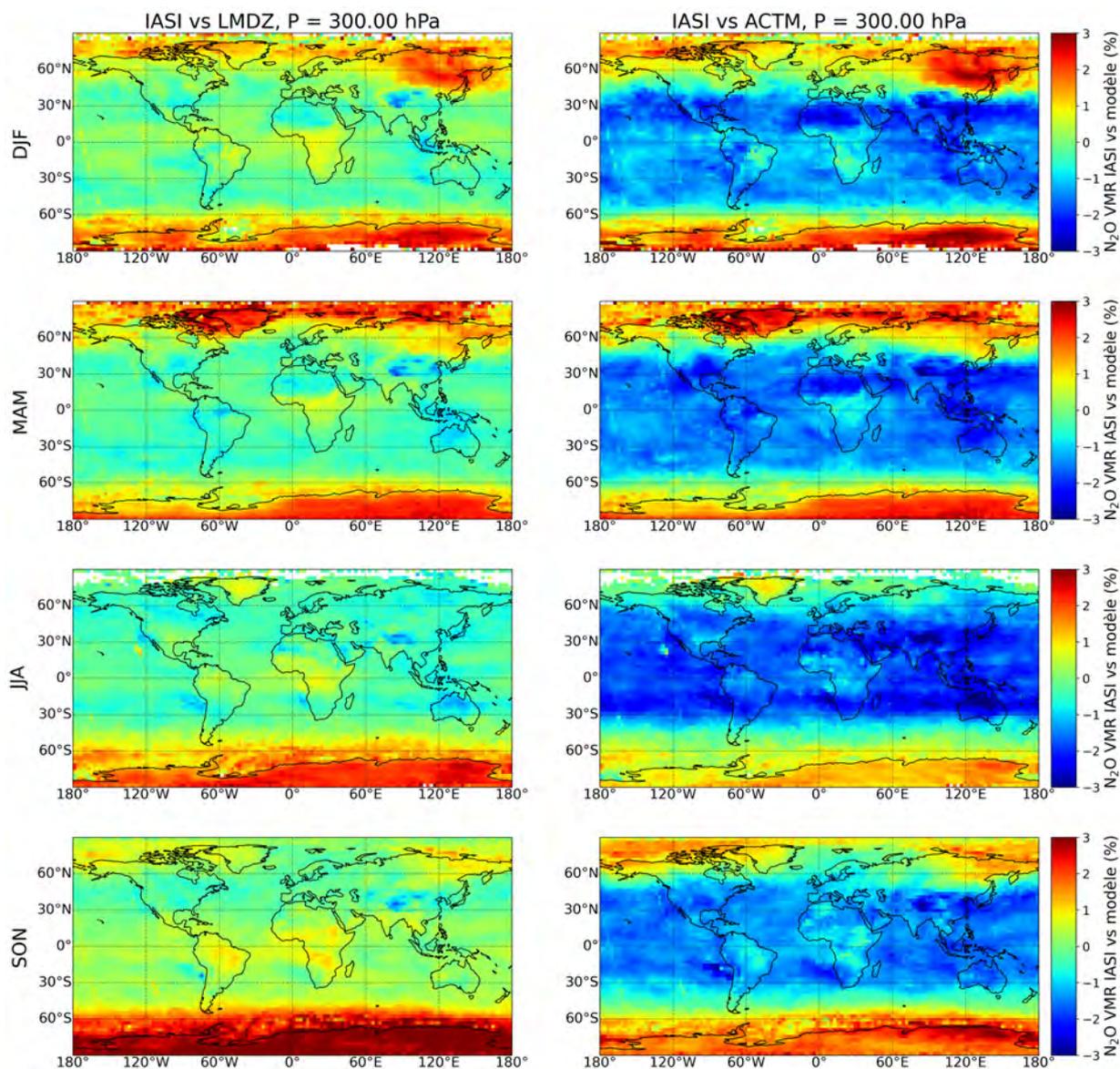


FIGURE 4.6 – Distribution à l'échelle globale des différences saisonnières de N₂O entre IASI et LMDz (gauche), et entre IASI et MIROC4-ACTM (droite). De haut en bas, résultats obtenus respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON, de décembre 2010 et novembre 2011.

IASI. En effet, des maxima locaux de N₂O restitués à partir de IASI sont localisés au-dessus des forêts tropicales, quelle que soit la saison (fig. 4.6). Ainsi, on calcule, des biais positifs de concentrations de N₂O entre IASI et les modèles, d'une valeur de $\sim 1\%$ (3.2 ppbv) entre les régions sources de N₂O (Afrique équatoriale et Amazonie principalement) et celles qui ne le sont pas. Ces zones sont pour la plupart marquées par un biais de 1% (fig. 4.6). Ces différences importantes observées entre les données de N₂O de IASI et celles des modèles

Chapitre 4. Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A

pourraient provenir de difficultés à modéliser les mouvements ascendants d'air provoqués par les systèmes convectifs intenses et par les cellules atmosphériques, notamment les cellules intertropicales de Hadley et les cellules tropicales de Walker, transportant ainsi le N_2O de surface émis par les sources jusqu'à 300 hPa, pouvant expliquer les corrélations très faibles calculées à l'équateur (fig. 4.2).

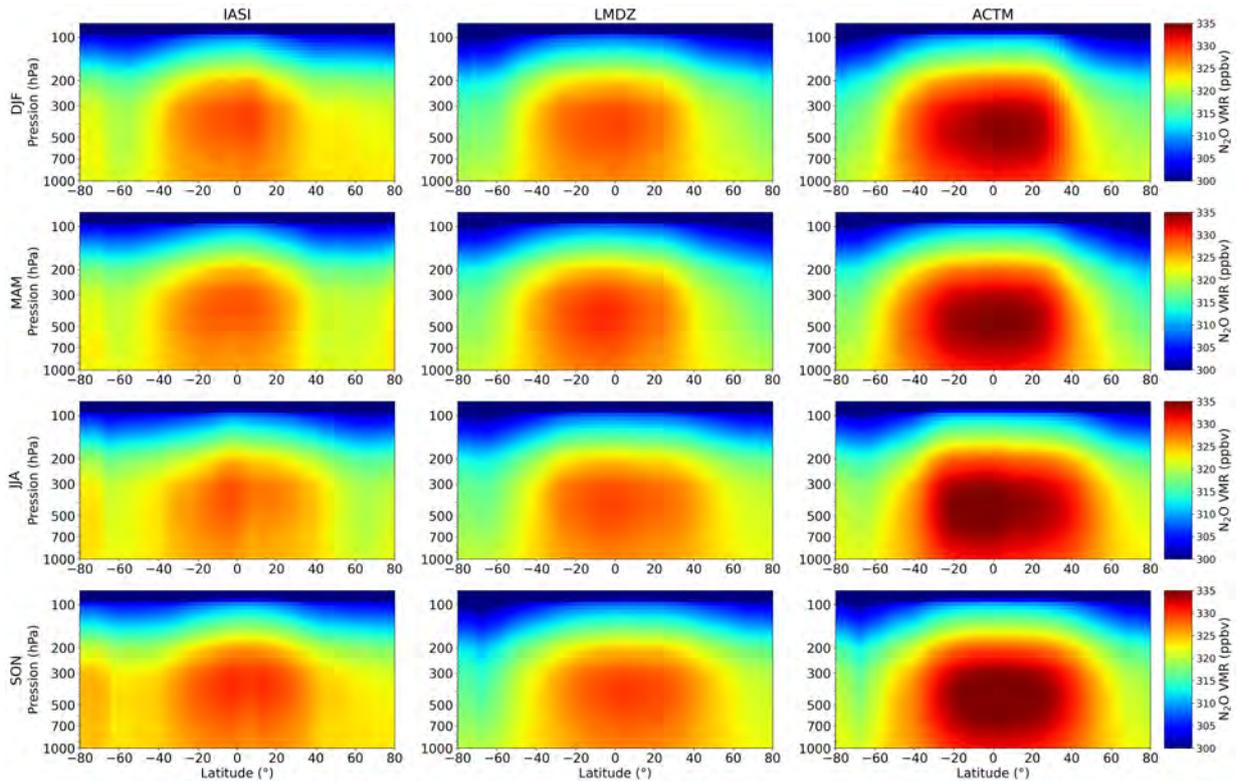


FIGURE 4.7 – Moyennes zonales latitudinales saisonnières de N_2O pour IASI (gauche), LMDZ (milieu) et MIROC4-ACTM (droite). De haut en bas, résultats obtenus respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON, de décembre 2010 et novembre 2011.

On observe sur la figure 4.7 que latitudinalement, la dynamique saisonnière des profils atmosphériques de N_2O restitués par IASI est cohérente avec celle des profils de N_2O modélisés par LMDz et MIROC4-ACTM. Ce mouvement est lié au déplacement latitudinal temporel de la zone de convergence inter-tropicale (ZCIT) induit par les cellules de Hadley. Au cours de l'année, la ZCIT suit une trajectoire latitudinale sinusoïdale similaire à celle des forts gradients de concentration de N_2O observés sur la figure 4.3, situés en moyenne autour des tropiques. Pour toutes les saisons, les fortes concentrations de N_2O (≥ 327 ppbv) des modèles, recouvrent, surtout avec MIROC4-ACTM, une zone plus étendue que celles de IASI (fig. 4.5 et 4.7). Il est davantage accentué durant les saisons JJA et SON, en

4.3. Comparaison du N₂O de IASI obtenu avec TN₂OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM

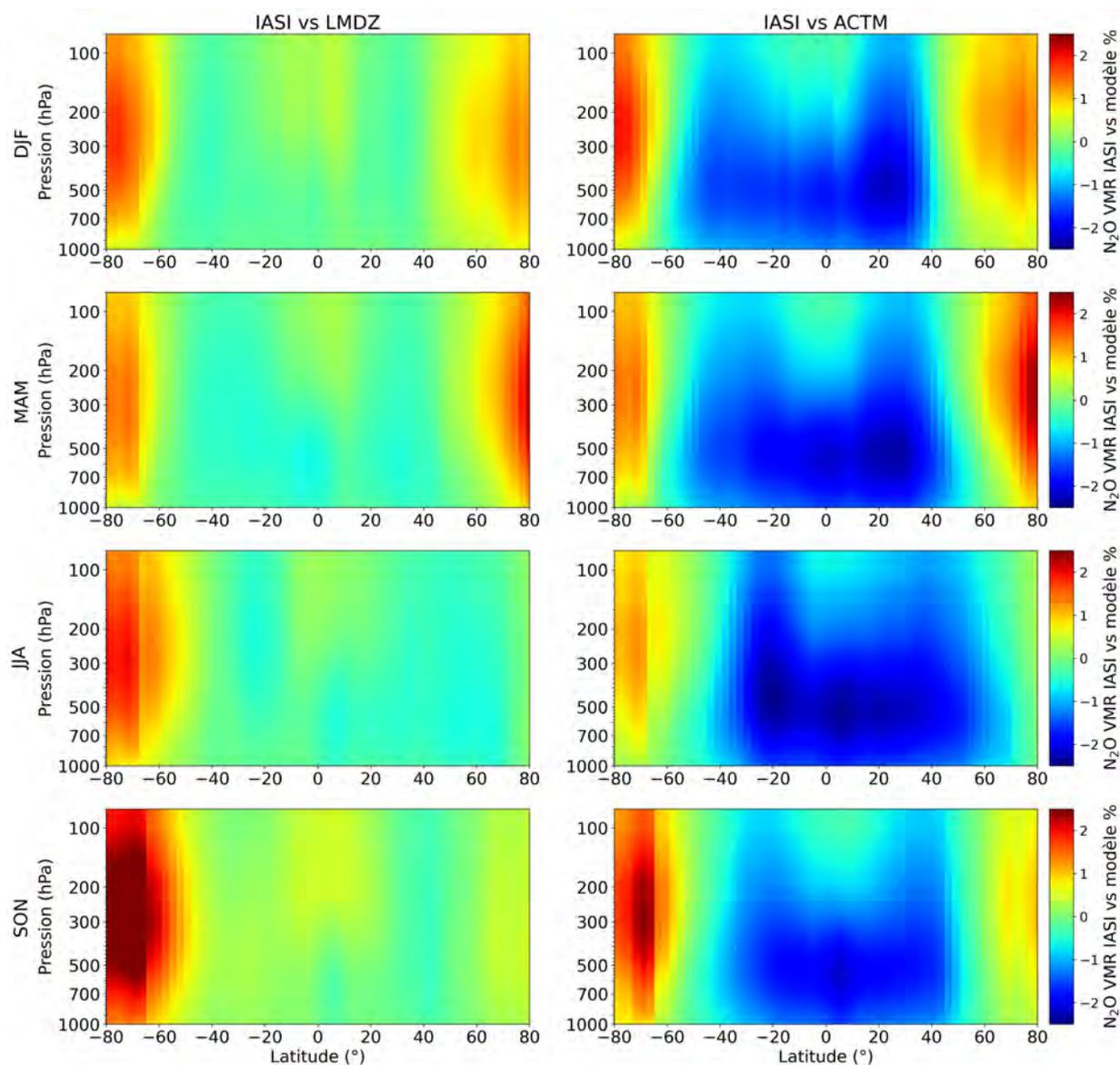


FIGURE 4.8 – Différences zonales latitudinales saisonnières de N₂O entre IASI et LMDz (gauche), et entre IASI et MIROC4-ACTM (droite). De haut en bas, résultats obtenus respectivement pour les saisons DJF, MAM, JJA et SON, de décembre 2010 et novembre 2011.

particulier dans l'hémisphère nord, où la zone s'étend sur $\sim 20^\circ$ de plus.

Verticalement, on constate sur la figure 4.7 que, bien que le profil a priori de N₂O choisi soit fixe, c'est-à-dire ayant une hauteur de tropopause fixé à 300 hPa, les observations de N₂O de IASI possèdent, une certaine sensibilité à la hauteur de la tropopause. En effet, pour IASI, LMDz et MIROC4-ACTM, les pressions auxquelles les forts gradients négatifs

Chapitre 4. Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A

de concentration de N_2O , de la troposphère vers la stratosphère sont présents, varient en fonction de la latitude, entre 100 et 170 hPa pour IASI, et entre 100 et 200 hPa pour les modèles, de l'équateur jusqu'aux latitudes extrêmes. Dans la zone intertropicale, les profils commencent à décroître entre 200 et 300 hPa. Dans la troposphère et à ces latitudes, les concentrations de N_2O sont davantage homogènes avec IASI et LMDz qu'avec MIROC4-ACTM. L'amplitude de leurs valeurs est comprise, selon la saison, entre 1 et 2 ppbv, avec des minima de 326 ppbv et des maxima à 328 ppbv situés entre 300 et 500 hPa. Avec MIROC4-ACTM, les maxima sont également compris entre 300 et 500 hPa. Pour une amplitude de 5 ppbv, les valeurs sont comprises entre 330 et 335 ppbv.

Comme observé sur la figure 4.6 à 300 hPa, la figure 4.8 montre un écart très faible sur l'ensemble de la verticale entre les restitutions de N_2O de IASI et les profils de N_2O du modèle LMDz, à l'exception des données situées au-delà de $\pm 60^\circ$ de latitude, comme expliqué précédemment. L'écart entre les deux jeux de données est compris entre 0 et 1%. Cet écart maximum est en général localisé au-dessus de l'équateur, entre 100 et 300 hPa. Celui-ci est davantage prononcé durant la période SON. Avec MIROC4-ACTM, la valeur absolue de la différence relative calculée entre les valeurs de N_2O de ce dernier et celles de IASI est au moins 2 fois plus important qu'avec LMDz. Dans la zone intertropicale, cet écart varie entre -2 et 0%. Le minimum est situé dans l'intervalle 500-700 hPa. On constate davantage avec MIROC4-ACTM qu'avec LMDz, que les minima d'écart se déplacent latitudinalement selon la trajectoire de la ZCIT, c'est-à-dire du sud vers le nord entre les périodes DJF et JJA, puis du nord vers l'équateur durant la période SON. Enfin, la différence entre IASI et les deux modèles est maximum et proche des 2% dans les zones polaires (au-delà de $\pm 60^\circ$) durant les périodes DJF et MAM. Au cours des périodes JJA et SON, seul l'hémisphère sud est concerné par ce phénomène. Comme évoqué précédemment, cette forte différence est probablement causée par une faible sensibilité de IASI au N_2O due aux très faibles températures mesurés à la surface, provoquant ainsi une faible émission de rayonnement dans le TIR malgré le contrast thermique très élevé.

4.3.3 Synthèse

Les résultats obtenus avec TN₂OR v2.0 montrent qu'en moyenne, les données N_2O du modèle convolué MIROC4-ACTM sont supérieures d'environ 3 ppbv des restitutions de N_2O de IASI à 300 et 500 hPa sur l'ensemble de l'année 2011. En revanche, à ces

4.3. Comparaison du N₂O de IASI obtenu avec TN₂OR v2.0 avec les modèles LMDz et MIROC4-ACTM

niveaux de pression, le biais relatif entre les données N₂O convoluées de LMDz et les observations IASI est proche de 0 ppbv. Un cycle saisonnier de concentration de N₂O d'une amplitude de 1 ppbv, lié au mouvement latitudinal de la ZCIT, est uniquement observé avec IASI. Ce cycle, cohérent avec les données de la NOAA (Dlugokencky, 2022), présente un minimum en juin 2011 (~ 324 ppbv) et des maxima durant les périodes hivernales boréales (~ 325.5 ppbv en DJF et ~ 327 ppbv en SON). À l'échelle globale à 300 hPa, on constate que les concentrations de N₂O de IASI sont corrélées avec celles des modèles autour de 30 degrés de latitude, en particulier dans l'hémisphère nord. La corrélation est de 0.7 entre 15 et 45°N pour MIROC4-ACTM et entre 0 et 50°N pour LMDz. Autour de 30°S, les corrélations sont supérieures à 0.5, notamment avec MIROC4-ACTM. Autour de l'équateur, les corrélations quasiment nulles s'expliquent par des tendances à fois similaires et contraires au cours de l'année entre les données N₂O de IASI et celles de LMDz. Avec MIROC4-ACTM, ces faibles corrélations obtenues sont, en partie, la conséquence d'une faible variabilité de N₂O modélisé durant les six premiers mois de l'année 2011 (~ 332 ppbv). Latitudinalement, les corrélations obtenues entre les données de N₂O de IASI et celles des modèles sont similaires aux résultats obtenus entre IASI et les N₂O des FTIR du réseau NDACC (Chalinel et al., 2022) : élevées dans l'hémisphère nord et faibles voire négatives dans l'hémisphère sud.

Avec IASI, les études saisonnières de N₂O à l'échelle globale montrent des maxima locaux (≥ 330 ppbv) systématiquement situés au-dessus des zones tropicales (Afrique équatoriale, Amazonie), régions sources de N₂O. En moyenne, les concentrations de N₂O sont supérieures durant la période SON avec IASI et MIROC4-ACTM. Avec les modèles, leur maxima est localisé au niveau de l'équateur (~ 328 ppbv avec LMDz et ≥ 335 ppbv avec MIROC4-ACTM). On constate cependant avec ces mêmes modèles, une très faible variabilité longitudinale des valeurs de N₂O sur quelque soit les latitudes considérées, probablement causée par une difficulté des modèles à simuler les courants ascendants tels que la convection profonde, propageant le N₂O issu des sources en direction de la moyenne et haute troposphère. De plus, on constate que les dynamiques saisonnières de N₂O liés aux mouvements latitudinaux des cellules de Hadley, sont cohérentes entre les restitutions de IASI et les modèles. Pour les modèles, les latitudes couvrant les données de N₂O troposphériques supérieures à 327 ppbv sont davantage étendues (+20°) que pour IASI, notamment dans l'hémisphère nord. Enfin, verticalement, l'ensemble des données de N₂O de IASI, à l'instar des modèles, est sensible à la hauteur de la tropopause qui varie en fonction de la latitude. Les écarts de N₂O entre IASI et LMDz sont inférieurs à 1 ppbv, où les maxima

Chapitre 4. Évaluations et observations à l'échelle globale du protoxyde d'azote de IASI/Metop-A

sont situés autour de la tropopause, entre 100 et 300 hPa. Avec MIROC4-ACTM, ce même écart est compris entre -2 et 0 ppbv avec des minima situés dans la moyenne troposphère, entre 500 et 700 hPa.

Chapitre 5

Le projet instrumental MIN₂OS (MonItoring Nitrous Oxide Sources)

Sommaire

5.1	L'instrument MIN ₂ OS	151
5.2	Résumé de Ricaud et al. (2021)	154
5.3	Ricaud et al. (2021)	155

5.1 L'instrument MIN₂OS

MIN₂OS est un spectromètre TIR ayant fait l'objet de propositions auprès de l'Agence spatiale européenne (ESA) dans le cadre des projets des missions spatiales d'observations de la Terre Earth Explorer 10 et 11 (EE10 et EE11). Le but de cet instrument est dans un premier temps de mesurer des spectres de radiance dans une bande d'absorption du N₂O, que l'on choisit méthodiquement entre 1250 et 1330 cm⁻¹ (8.0-7.5 μ m) à partir des résultats fournies dans Ricaud et al. (2021). Dans un second temps, on détermine, d'après les études menées dans Chalinel et al. (2022) et en utilisant la technologie employée durant cette thèse, des profils restitués de N₂O à l'échelle globale fiables avec une sensibilité verticale importante près du sol (800-900 hPa). Dans un dernier temps, on localise et quantifie avec la plus grande précision possible les sources de N₂O. Pour cela, le satellite

Chapitre 5. Le projet instrumental MIN₂OS (MonItoring Nitrous Oxide Sources)

embarquant MIN₂OS doit être en synergie avec les plateformes Metop-SG et Sentinel-2 NG qui sont susceptibles d'accueillir des instruments fournissant des données de température et de différents paramètres atmosphériques, notamment avec IASI-NG, mais aussi des données de surface et des données à l'échelle des champs agricoles. La plateforme serait donc placée, comme pour IASI, à environ 830 km d'altitude sur une orbite héliosynchrone avec une observation en noeud descendant à 9h30 heure locale et en noeud ascendant à 21h30 heure locale. La fauchée a une portée de ± 150 km, quant à la résolution spatiale de MIN₂OS, elle est fixée à 10 km \times 10 km au nadir. Sa résolution spectrale ainsi que son échantillonnage spectral sont basés sur les caractéristiques spectrales de IASI-NG, à savoir respectivement 0.25 cm⁻¹, correspondant à la largeur à mi-hauteur d'une raie et 0.125 cm⁻¹. MIN₂OS comporte ainsi sur la bande 1250-1330 cm⁻¹ 641 canaux de mesure. L'ensemble des caractéristiques instrumentales de MIN₂OS est indiqué dans le tableau 5.1.

TABLE 5.1 – Caractéristiques instrumentales de MIN₂OS (Ricaud et al., 2021)

Paramètres	Valeurs
Altitude	830 km
Taille de la fauchée	± 150 km
Résolution spatiale des capteurs au sol	10 km \times 10 km au nadir
Domaine spectral	Sensibilité verticale étudiée sur 2 bandes spectrales du N ₂ O : B1 _{N₂O} : 1250-1330 cm ⁻¹ (8.0-7.5 μ m) B2 _{N₂O} : 2150-2240 cm ⁻¹ (4.7-4.5 μ m)
Capteurs candidats	B1 _{N₂O} : TELEDYNE/GEOSNAP et LYNRED/SCORPIO B2 _{N₂O} : TELEDYNE/GEOSNAP et LYNRED/DAPHNIS
Résolution spectrale	0.25 cm ⁻¹
Échantillonnage spectral	0.125 cm ⁻¹
Nombre de canaux	Selon la bande spectrale : B1 _{N₂O} : 641 B2 _{N₂O} : 721

Enfin, on exige que le rapport signal sur bruit de MIN₂OS soit au minimum 5 fois supérieur à celui de IASI-NG, lui-même 2 fois supérieur à celui de IASI (fig. 3.4). Pour ce faire, 4 capteurs répondant à ces critères ont été sélectionnés par AIRBUS et une étude sur la sensibilité verticale de chacun de ses capteurs a été menée pour déterminer le capteur répondant au plus grand nombre d'exigences (Ricaud et al., 2021). Pour cela, 2 capteurs

5.1. L'instrument MIN₂OS

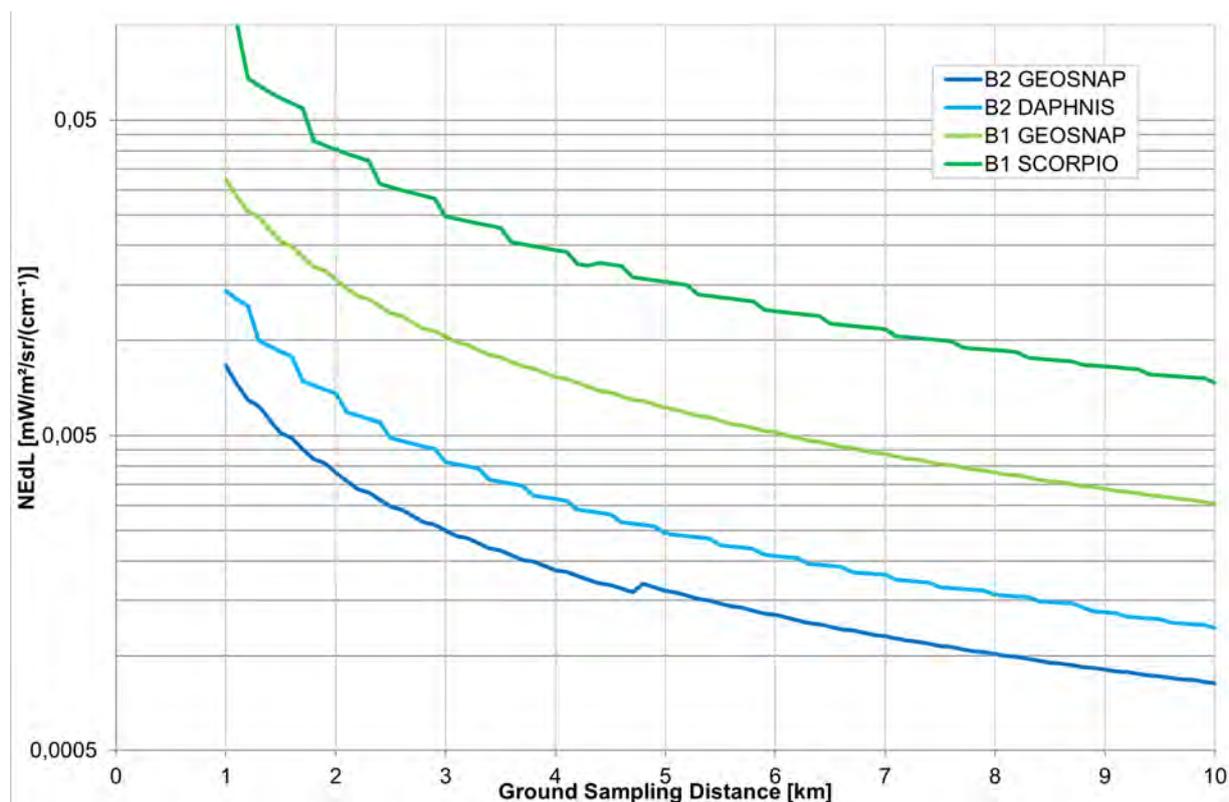


FIGURE 5.1 – Bruits des 4 capteurs candidats pour MIN₂OS fournis par AIRBUS Defence and Space et utilisés dans Ricaud et al. (2021) en Ne Δ L (Noise Equivalent Delta Radiance) ($\text{mW} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot (\text{cm}^{-1})^{-1}$) En fonction de la longueur de l'échantillon au sol (km). Les valeurs des bruits correspondent au centre des bandes spectrales B1_{N₂O} et B2_{N₂O}. Ces bandes sont centrées respectivement sur 1300 et 2200 cm^{-1} (7.7 et 4.5 μm).

sont capables de mesurer le spectre dans la bande B1_{N₂O} comprise dans la gamme spectrale de IASI, à savoir TELEDYNE/GEOSNAP, capable de mesurer jusqu'à 1024 canaux et LYNRED/SCORPIO qui permet la mesure de 640 canaux. Les 2 autres capteurs mesurent le spectre dans la bande B2_{N₂O} comprise dans la gamme spectrale de IASI, à savoir TELEDYNE/GEOSNAP, c'est-à-dire le même que pour B1_{N₂O} et LYNRED/DAPHNIS, capable d'échantillonner jusqu'à 1280 canaux. Chacun de ces détecteurs possède un bruit qui lui est propre, indiqué sur la figure 5.1. Ce bruit augmente lorsque la résolution spatiale s'affine. Pour les besoins de l'étude à l'échelle globale du N₂O, il n'est pas primordial que la résolution spatiale soit importante. En revanche, un bruit minimal est nécessaire pour obtenir un rapport signal sur bruit maximum sur le spectre de radiance. L'idéal est qu'il soit, comme énoncé précédemment, au moins 5 fois plus faible que le bruit de IASI-NG. À 1300 cm^{-1} , centre de la bande B1_{N₂O}, le bruit en Ne Δ T de IASI-NG est

Chapitre 5. Le projet instrumental MIN₂OS (MonItoring Nitrous Oxide Sources)

de 0.045 K, soit $0.035 \text{ mW.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{(cm}^{-1})^{-1}$ en Ne Δ L et à 2200 cm^{-1} , il est de 0.12 K, soit $7.6 \times 10^{-3} \text{ mW.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{(cm}^{-1})^{-1}$ en Ne Δ L. À 1300 cm^{-1} , les instruments TELEDYNE/GEOSNAP et LYNRED/SCORPIO ont un bruit en Ne Δ L d'une valeur respective de 3.0×10^{-3} et $7.3 \times 10^{-3} \text{ mW.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{(cm}^{-1})^{-1}$ soit un bruit près de 12 et 5 fois inférieurs à IASI-NG. À 2200 cm^{-1} , centre de B₂N₂O, les détecteurs TELEDYNE/GEOSNAP et LYNRED/DAPHNIS ont un bruit en Ne Δ L de 8.2×10^{-4} et $1.2 \times 10^{-3} \text{ mW.m}^{-2}.\text{sr}^{-1}.\text{(cm}^{-1})^{-1}$, équivalant donc à un bruit respectivement 9 et 6 fois meilleurs que celui de IASI-NG.

5.2 Résumé de Ricaud et al. (2021)

L'objectif du projet instrumental MIN₂OS (MonItoring Nitrous Oxide Sources) est de restituer des profils de N₂O à l'échelle globale. Cet instrument bénéficierait d'une résolution verticale et spectrale lui permettant d'obtenir de l'information au plus près du sol. Il possède une résolution spectrale équivalente à celle de IASI-NG et un bruit instrumental jusqu'à 5 fois meilleur que celui de IASI. Ces bandes spectrales de mesures sont choisies pour correspondre aux bandes spectrales d'absorption du N₂O.

Une fois les profils de N₂O restitués, plusieurs modèles d'assimilation de données satellitaires tels que PyVAR-CAMS (Thompson et al., 2019), CHIMERE (Menuet et al., 2013), LMDz, FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion model) (Pisso et al., 2019) ou encore MIROC-4 (Patra et al., 2018), seraient susceptibles d'inverser les flux de surface de N₂O, afin de remonter à ses sources. Les études de sensibilité des instruments IASI, IASI-NG, ainsi que MIN₂OS sont produites sur les pixels IASI ayant servi à l'évaluation de la sensibilité spectrale et verticale de IASI avec l'outil d'inversion TN₂OR v1.7. De plus chaque bande spectrale du N₂O présente dans IASI fut analysée. Les résultats de l'étude de sensibilité des différents instruments sur le N₂O dans la bande B₃N₂O ($2400\text{-}2500 \text{ cm}^{-1}$) montrant une sensibilité faible (1.03 pour le meilleur DOF de MIN₂OS en France en condition favorable), qui est due notamment au bruit instrumental dans cette bande spectrale, excluent B₃N₂O de la suite des études. Au premier abord, quand les conditions favorables de mesures se réunissent (été de jour et sur les terres), MIN₂OS semble posséder une meilleure sensibilité au N₂O à la surface dans la bande B₂N₂O ($2000\text{-}2200 \text{ cm}^{-1}$), avec 0.35 pour la fonction de balayage à la surface et un DOF=2.21, que dans B₁N₂O ($1240\text{-}1350 \text{ cm}^{-1}$), où la fonction de balayage à la surface est de 0.25 et où le DOF=2.21 également. Néanmoins dans les conditions défavorables (hiver de nuit) le DOF est de 1.41 dans B₁N₂O et de 1.16

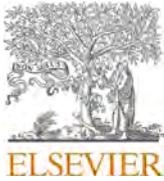
5.3. Ricaud et al. (2021)

dans B2_{N₂O}. Pour les bandes spectrales B1_{N₂O} et B2_{N₂O}, quatre détecteurs ont été choisis pour MIN₂OS. Une étude de sensibilité verticale a été effectuée pour chacun d'entre eux.

TELEDYNE/GEOSNAP B1_{N₂O} et LYNRED/SCORPIO sont les capteurs candidats dans B1_{N₂O} (1250-1330 cm⁻¹). TELEDYNE/GEOSNAP B2_{N₂O} et LYNRED/DAPHNIS sont les capteurs candidats dans B2_{N₂O} (2150-2240 cm⁻¹). Les résultats de leur sensibilité verticale respective au N₂O sur les 30 pixels IASI choisis pour l'étude montrent qu'à 300 hPa, le détecteur GEOSNAP B1_{N₂O} présente les fonctions de balayage les plus fortes ($\simeq 0.35$) ainsi que les erreurs sur les inversions les plus faibles ($\simeq 0.3\%$), conditions favorables et défavorables confondues. À 600 hPa, les deux détecteurs GEOSNAP sont les plus sensibles, notamment dans les conditions favorables ($AVK \simeq 0.35$ pour les pixels les plus sensibles), même si les mesures restent sensibles dans les conditions défavorables à cette pression ($AVK \simeq 0.30$). Leurs erreurs respectives sur les inversions sont d'environ 0.25 et 0.3%. Enfin à 900 hPa, les meilleurs résultats sont réservés aux pixels mesurés en conditions favorables (erreur associée inférieure à 0.5%), surtout pour le capteur GEOSNAP B2_{N₂O}, où leur sensibilité verticale au N₂O se situe autour de 0.55 et leur erreur associée est comprise entre 0.2 et 0.25%. Pour le détecteur GEOSNAP B1_{N₂O}, les AVK se situent entre 0.2 et 0.4 près de la surface dans les conditions favorables pour une erreur comprise entre 0.3 et 0.5%. Dans les conditions défavorables, GEOSNAP B1_{N₂O} est, en moyenne, légèrement supérieure à GEOSNAP B2_{N₂O} en terme de sensibilité verticale ($\simeq 0.25$ vs $\simeq 0.2$), mais leurs erreurs respectives restent similaires ($\geq 0.5\%$). Les conclusions des résultats des études de sensibilité verticale désignent GEOSNAP B1_{N₂O} comme détecteur utilisé pour MIN₂OS, la bande B2_{N₂O} présentant comme handicap majeur la sensibilité aux aérosols qui pourraient perturber le bon déroulement de la mesure et ainsi de la restitution de N₂O.

Dans Ricaud et al. (2021), les bandes B1_{N₂O}, B2_{N₂O} et B3_{N₂O} sont simplement désignées comme étant B1, B2 et B3.

5.3 Ricaud et al. (2021)



Contents lists available at ScienceDirect

Remote Sensing of Environment

journal homepage: www.elsevier.com/locate/rseThe Monitoring Nitrous Oxide Sources (MIN₂OS) satellite project

Philippe Ricaud^{a,*}, Jean-Luc Attié^b, Rémi Chalinel^b, Frédérick Pasternak^c, Joël Léonard^d, Isabelle Pison^e, Elizabeth Pattey^f, Rona L. Thompson^g, Zdenek Zelinger^h, Jos Lelieveldⁱ, Jean Sciare^j, Naoko Saitoh^k, Juying Warner^l, Audrey Fortems-Cheiney^e, Hélène Reynal^m, Jérôme Vidot^a, Laure Brooker^c, Laurent Berdeu^c, Olivier Saint-Pé^c, Prabir K. Patraⁿ, Michal Dostál^h, Jan Suchánek^h, Václav Nevrlý^h, Christine Groot Zwaafink^g

^a CNRM, Université de Toulouse, Météo-France, CNRS, Toulouse, France^b Laboratoire d'Aérodynamique, Université de Toulouse, CNRS, UPS, Toulouse, France^c AIRBUS Defence and Space, Toulouse, France^d INRAE, Barenton-Bugny, France^e Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE-IPSL (CEA-CNRS-UVSQ), Université Paris-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France^f AAFC, Ottawa, ON, Canada^g NILU – Norsk Institutt for Luftforskning, Kjeller, Norway^h JHIPC, Prague, Czech Republicⁱ MPIC, Mainz, Germany^j Cyprus Institute, Nicosia, Cyprus^k Chiba University, Chiba, Japan^l Maryland University, USA^m INRAE, Castanet-Tolosan, Franceⁿ Research Institute for Global Change, JAMSTEC, Yokohama, 236-0001, Japan

ARTICLE INFO

Edited by: Menghua Wang

ABSTRACT

The Monitoring Nitrous Oxide Sources (MIN₂OS) satellite project aims at monitoring global-scale nitrous oxide (N₂O) sources by retrieving N₂O surface fluxes from the inversion of space-borne N₂O measurements that are

Abbreviations: 4D-Var, 4D-variational; AGAGE, Advanced Global Atmospheric Gases Experiment; AIRS, Atmospheric InfraRed Sounder; ANR, Agence Nationale de la Recherche; AOD, Aerosol Optical Depth; ATOM, Atmospheric Tomography Mission; BT, Brightness Temperature; BU, Bottom Up; CAMS, Copernicus Atmosphere Monitoring Service; CIF, Community Inversion Framework; CTM, Chemical Transport Model; DayCent, Daily Century; DNDC, DeNitrification-DeComposition; DOF, Degree-of-Freedom; ECMWF, European Centre for Medium-Range Weather Forecasts; EDGAR, Emissions Database for Global Atmospheric Research; EE11, Earth Explorer 11; ERA5, ECMWF Reanalyses v5; ESA, European Space Agency; EUMETSAT, European Organisation for the Exploitation of Meteorological Satellites; FLEXPART, FLExible PARTicle dispersion model; FTIR, Fourier-transform infrared spectroscopy; FWHM, Full Width at Half Maximum; GAW/WMO, Global Atmosphere Watch/World Meteorological Organisation; GHG, Greenhouse gas; GOSAT, Greenhouse gases Observing SATellite; GOSAT-2, Greenhouse gases Observing SATellite-2; HIPPO, HIAPER Pole-to-Pole Observations; HRES, High RESolution; IASI, Infrared Atmospheric Sounding Interferometer; IASI-NG, Infrared Atmospheric Sounding Interferometer-New Generation; ICOS, Integrated Carbon Observation System; IPCC, Intergovernmental Panel on Climate Change; LBLRTM, Line-By-Line Radiative Transfer Model; LEO, Low Earth Orbit; LMDz, Laboratoire de Météorologie Dynamique; LT, Local Time; LWIR, LongWave InfraRed; MACSUR, Modelling European Agriculture with Climate Change for Food Security; Metop-SG, Metop-Second Generation; MIN₂OS, Monitoring Nitrous Oxide Sources; MIROC-4, Model for Interdisciplinary Research on Climate – version 4; MWIR, MidWave InfraRed; NASA, National Aeronautics and Space Administration; NDACC, Network for the Detection of Atmospheric Composition Change; NEdR, Noise Equivalent delta Radiance; NEdT, Noise Equivalent differential Temperature; NLTE, Non-Local Thermodynamic Effect; NOAA, National Oceanic and Atmospheric Administration; RTTOV, Radiative Transfer for Tiros Operational Vertical sounder; Sentinel-2 NG, Sentinel-2 New Generation; SNR, Signal-to-Noise Ratio; STICS, Simulateur multIdisciplinaire pour les Cultures Standard; TCCON, Total Carbon Column Observing Network; TD, Top Down; TIR, Thermal InfraRed; TN₂OR, Toulouse N₂O Retrieval; TRL, Technology Readiness Level; UNFCCC, United Nations Framework Convention on Climate Change; VMR, Volume Mixing Ratio.

* Corresponding author.

E-mail addresses: philippe.ricaud@meteo.fr (P. Ricaud), jean-luc.attie@aero.obs-mip.fr (J.-L. Attié), remi.chalinel@aero.obs-mip.fr (R. Chalinel), frederick.pasternak@airbus.com (F. Pasternak), joel.leonard@inra.fr (J. Léonard), isabelle.pison@lsce.ipsl.fr (I. Pison), elizabeth.pattey@agr.gc.ca (E. Pattey), rlt@nilu.no (R.L. Thompson), zdenek.zelinger@jh-inst.cas.cz (Z. Zelinger), jos.lelieveld@mpic.de (J. Lelieveld), j.sciare@cyi.ac.cy (J. Sciare), nsaitoh@faculty.chiba-u.jp (N. Saitoh), audrey.fortems@lsce.ipsl.fr (A. Fortems-Cheiney), helene.reynal@inrae.fr (H. Reynal), jerome.vidot@meteo.fr (J. Vidot), laure.brooker@airbus.com (L. Brooker), laurent.berdeu@airbus.com (L. Berdeu), olivier.saintpe@airbus.com (O. Saint-Pé), prabir@jamstec.go.jp (P.K. Patra), michal.dostal@jh-inst.cas.cz (M. Dostál), jan.suchanek@jh-inst.cas.cz (J. Suchánek), cgz@nilu.no (C.G. Zwaafink).

<https://doi.org/10.1016/j.rse.2021.112688>

Received 28 April 2021; Received in revised form 2 August 2021; Accepted 2 September 2021

Available online 16 September 2021

0034-4257/© 2021 The Authors. Published by Elsevier Inc. This is an open access article under the CC BY license (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

Keywords:

Nitrous oxide
 N₂O emissions
 Space-borne observations
 Sources
 Modelling

sensitive to the lowermost atmospheric layers under favorable conditions. MIN₂OS will provide emission estimates of N₂O at a horizontal resolution of $1^\circ \times 1^\circ$ on the global scale and $10 \times 10 \text{ km}^2$ on the regional scale on a weekly to monthly basis depending on the application (e.g., agriculture, national inventories, policy, scientific research). Our novel approach is based on the development of: 1) a space-borne instrument operating in the Thermal InfraRed domain providing, in clear sky conditions, N₂O mixing ratio in the lowermost atmosphere (900 hPa) under favorable conditions (summer daytime) over land and under favorable and unfavorable (winter nighttime) conditions over the ocean and 2) an atmospheric inversion framework to estimate N₂O surface fluxes from the atmospheric satellite observations. After studying three N₂O spectral bands (B1 at 1240–1350 cm^{-1} , B2 at 2150–2260 cm^{-1} and B3 at 2400–2600 cm^{-1}), a new TIR instrument will be developed, centered at 1250–1330 cm^{-1} , with a resolution of 0.125 cm^{-1} , a Full Width at Half Maximum of 0.25 cm^{-1} and a swath of 300 km. To optimally constrain the retrieval of N₂O vertical profiles, the instrument will be on-board a platform at ~830 km altitude in a sun-synchronous orbit crossing the Equator in descending node at 09:30 local time in synergy with two other platforms (Metop-SG and Sentinel-2 NG) expected to fly in 2031–32 aiming at detecting surface properties, agricultural information on the field scale and vertical profiles of atmospheric constituents and temperature. The lifetime of the MIN₂OS project would be 4–5 years to study the interannual variability of N₂O surface fluxes. The spectral noise can be decreased by at least a factor of 5 compared to the lowest noise accessible to date with the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer-New Generation (IASI-NG) mission. The N₂O total error is expected to be less than ~1% (~3 ppbv) along the vertical. The preliminary design of the MIN₂OS project results in a small instrument (payload of 90 kg, volume of $1200 \times 600 \times 300 \text{ mm}^3$) with, in addition to the spectrometer, a wide field and 1-km resolution imager for cloud detection. The instruments could be hosted on a small platform, the whole satellite being largely compatible with a dual launch on VEGA-C. The MIN₂OS project has been submitted to the European Space Agency Earth Explorer 11 mission ideas.

1. Introduction

Nitrous oxide (N₂O) is the third most important long-lived greenhouse gas (GHG) after carbon dioxide (CO₂) and methane (CH₄) contributing to global warming. It has a global warming potential 298 times higher than that of CO₂ on a mass basis and for a 100-year horizon (IPCC, 2007). Consequently, N₂O has a radiative forcing of climate 10% that of CO₂, although it is 1000 times less abundant over the time period from 1750 to present. Furthermore, emissions of N₂O are currently the most important emissions of any stratospheric ozone depleting substance and are impeding the recovery of the ozone hole (Ravishankara et al., 2009). N₂O emissions increased by 0.25–0.30% yr^{-1} over the past 10 years (Tian et al., 2020) and keep increasing until 2100 (IPCC, 2007) in the majority of socio-economic scenarios.

Emissions of N₂O are largely driven by the microbial processes of nitrification and denitrification occurring in soils, the ocean and freshwater systems (Bakker et al., 2014). In addition, there is a smaller source of abiotic emissions through incomplete combustion and some industrial processes (Davidson and Kanter, 2014). Of the global total emission (~17 TgN yr^{-1}), ~57% is naturally occurring and the remaining ~43% is anthropogenic (Tian et al., 2020). Anthropogenic emissions are dominated by agriculture (~52%) and are due to the perturbation of the nitrogen cycle through the addition of nitrogen from synthetic fertilizers and manure, while industrial and fossil fuel combustion contributes ~27% (Tian et al., 2020). Once emitted into the atmosphere, N₂O remains there for an average of ~116 years (Prather et al., 2015), while it is removed in the stratosphere via photodissociation and oxidation by the oxygen radical O(¹D). This is also the main pathway of stratospheric nitrogen oxide production involved in ozone (O₃) depletion (Minschwaner et al., 1993).

Since N₂O emissions (natural and anthropogenic) are predominantly driven by microbial processes, which depend strongly on the environmental conditions (soil water content, temperature, oxygen availability, etc.) and management practices, the emissions are extremely challenging to simulate and forecast. Emission inventories, as reported to the United Nations Framework Convention on Climate Change (UNFCCC), are based on the Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) Tier-1 and Tier-2 emission factor approaches (IPCC, 2007, 2019), which combine emission factors for different source sectors (e.g., direct emissions from agriculture) with activity data. However, the uncertainty in emission factors is up to 300%, representing a major uncertainty in the total GHG emissions (in CO₂ equivalents) from agriculture and waste sectors (De Klein et al., 2006). Moreover, the impact of varying

environmental conditions on the emissions is not captured in the inventories (Tian et al., 2015; Ehrhardt et al., 2017). Besides from the IPCC approach, N₂O emissions from land and ocean can be either estimated by process-based ecosystem models (a bottom-up (BU) approach) or based on changes in atmospheric N₂O mixing ratio with the help of an atmospheric chemistry-transport model (a top-down (TD) approach). Based on BU approaches (Tian et al., 2020), the overall N₂O emission estimates exhibit a large range, from 12.2 to 23.5 Tg N yr^{-1} , with natural emissions ranging from 8.0 to 12.0 Tg N yr^{-1} , including natural soils (4.9–6.5 Tg N yr^{-1}) and ocean (2.5–4.3 Tg N yr^{-1}), and anthropogenic emissions ranging from 4.2 to 11.4 Tg N yr^{-1} . A large divergence exists in the estimation of natural soil N₂O emission by inventories, empirical and process-based models, implying that our understanding of the processes and their controls remains uncertain. This also leads to considerable uncertainty in the trend in N₂O emission over the recent decades. The latest estimate of the global N₂O emission trend from 1998 to 2016 is $0.8 \pm 0.2 \text{ Tg N yr}^{-1}$ per decade using BU modelling. More generally, the uncertainties in the BU estimates arise from the difficulty of modelling the complex non-linear processes leading to N₂O production and consumption on land and in the ocean.

The N₂O surface emissions show huge temporal and spatial variabilities. The spatial variability on the global scale is estimated to be greater than a factor 10 over land (Tian et al., 2020) and greater than a factor 5 over the ocean (Nevison et al., 1995). For anthropogenic emissions, East and South Asia, Europe and North America are the most emitting regions, while for natural soil emissions, Equatorial and South Africa and South America are the most emitting regions. For the ocean, the Eastern Equatorial Pacific, South-Eastern tropical Atlantic and Eastern Indian Oceans are the main N₂O source areas. On the local/regional scale, in situ flux measurements show that the diurnal variability of the N₂O flux over a cultivated plot is $\pm 20\%$ (Alves et al., 2012; Shurpali et al., 2016). Over a region/territory in France, the spatial variability as calculated by the Simulateur multiDisciplinaire pour les Cultures Standard (STICS) model is greater than a factor 6 (Therond et al., 2017). Even in one location, N₂O emissions vary depending on the management practices and weather conditions. Emission peaks usually follow nitrogen fertilizer application (e.g., Grant and Pattey, 2003; Metivier et al., 2009) driven by rainfall or irrigation. For soil freezing regions, they follow snowmelt and soil thawing (e.g., Grant and Pattey, 1999; Pattey et al., 2007, 2008; Wagner-Riddle et al., 2017).

Given the large spatiotemporal variability in N₂O emissions, and the challenges to simulate the processes driving the emissions, it is essential to have reliable and accurate estimates also from TD approaches. Up to

now, TD estimates of N₂O emissions relied on sparse surface observations (e.g., international networks of observation sites, complemented with aircraft (e.g., Desjardins et al., 2010) and ship campaign measurements) to derive monthly sources and sinks of N₂O on the global (e.g., Thompson et al., 2014) and European scales (e.g., Bergamaschi et al., 2015). These estimates are based on the atmospheric inversion approach, which uses Bayesian statistics and atmospheric chemistry-transport models to relate the changes in atmospheric concentrations to changes in surface-atmosphere fluxes.

On the global scale, BU and TD estimates of the N₂O emission trend from 1998 to 2016 are in good agreement: 0.8 ± 0.2 Tg N yr⁻¹ per decade for BU modelling, compared to 1.1 ± 0.6 Tg N yr⁻¹ per decade using atmospheric inversions (Tian et al., 2020). Nevertheless, recent TD estimations of the emission increase since 2009 were twice as large as those predicted by the IPCC emission factor approach (Thompson et al., 2019). To understand and decrease these discrepancies, much more work on the estimation of regional N₂O emissions is needed. In particular, tropical and sub-tropical areas, in addition to being important source regions, are also domains where the largest uncertainties and discrepancies between TD and BU approaches exist. One major problem in the tropics and sub-tropics for TD approaches is the very sparse atmospheric N₂O observation network (Wells et al., 2018; Thompson et al., 2014). More observations over these regions would help resolve key questions, such as: i) the impact of climate variability on tropical rainforest emissions, e.g., the standard deviation of annual emissions has been reported to be up to 100% over a 10-year period (Werner et al., 2007) and ii) the impact of land-use changes on emissions, e.g., drainage of wetland/peatland, deforestation, and conversion of cleared land for agriculture. There are also open issues concerning N₂O emission from some emerging technologies. Ammonia (NH₃) is proposed as a viable carbon-free energy carrier for transportation and power generation (e.g., Kurata et al., 2017). Combustion of NH₃ (pure or mixed with other fuels, e.g., CH₄) could be a potentially significant source of reactive nitrogen species (NO_x = NO+NO₂ and NH₃) as well as N₂O (through incomplete combustion) in the future. However, there are too few studies examining the chemical reactions of NH₃ combustion in order to make reliable predictions of NO_x and N₂O emissions.

Satellite data are thought to be a potential source of information for TD approaches, able to complement the sparse in-situ measurements, particularly in key regions which are remote and difficult to access, such as tropical areas. Since 2008, Thermal InfraRed (TIR) measurements from satellite instruments such as the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), Atmospheric InfraRed Sounder (AIRS), and Greenhouse Gases Observing Satellite (GOSAT) have become available to observe the N₂O total column and upper tropospheric N₂O. In the TIR domain, on average, the vertical sensitivity of the N₂O retrievals, as defined by the averaging kernels, in which the maximum is mainly in the upper troposphere around 300 hPa for all the current sensors, AIRS (Xiong et al., 2014), GOSAT (Kangah et al., 2017) and IASI (Chalinel et al., 2021, paper in this special issue).

Initial studies have shown that it is possible to follow long-range transport via the temporal and spatial variability of N₂O total column. In the tropics, the convergences of the Walker cells from the American continent and the Indian Ocean to the African continent produced a local maximum over Africa in the IASI N₂O total columns officially processed by the European Organisation for the Exploitation of Meteorological Satellites (EUMETSAT; Ricaud et al., 2009). In the extra-tropics over the Mediterranean Basin, the summertime maximum of upper tropospheric N₂O observed by GOSAT in the East compared to the West (Kangah et al., 2017; Ricaud et al., 2014) has been attributed to the impact of the Asian monsoon anticyclone, which redistributes the elevated N₂O concentration in the lower troposphere of the Indian sub-continent and Eastern China by uplift to the upper troposphere where it is transported towards Northern Africa and the Mediterranean Basin (Ricaud et al., 2014).

Climatological studies (with monthly to yearly averages) similar to

those using horizontal bins of 2° × 2° with GOSAT data can now be achieved on the global scale in the upper troposphere over 1 day and at a horizontal resolution of 1° × 1° (about 100 × 100 km²) by using the measurements from IASI (Chalinel et al., 2021). Upper tropospheric N₂O from IASI is retrieved using the TN₂OR (Toulouse N₂O Retrieval) V1.7 tool combining the Radiative Transfer for Tiros Operational Vertical sounder (RTTOV) model version v11.2 (Saunders et al., 1999) and the Levenberg-Marquardt method (Levenberg, 1944; Marquardt, 1963), a non-linear inversion algorithm based on the optimal estimation method (Rodgers, 2000). Simultaneous retrievals of N₂O, CH₄, water vapor (H₂O), temperature and surface temperature and emissivity are performed considering the TIR band 1240–1350 cm⁻¹ and produce vertical profiles of N₂O with a total error better than 1%.

Until now, quantifying N₂O emissions by TD approaches relied on sparse surface observations to derive monthly sources of N₂O on the global scale. Nowadays, N₂O space-borne observations are mainly performed in the TIR domain and are mainly sensitive in the upper troposphere (around 300 hPa), which explains why they are not yet assimilated in TD approaches targeting surface fluxes. The Monitoring Nitrous Oxide Sources (MIN₂OS) satellite project, submitted to the European Space Agency (ESA) Earth Explorer 11 (EE11) mission ideas, has been set up to provide N₂O sources at high temporal and horizontal resolutions on the global scale. Our novel approach is based on the development of: 1) a space-borne instrument operating in the TIR domain inherited from a more sensitive version of the IASI and IASI-NG instruments, providing N₂O mixing ratio in the lowermost troposphere (900 hPa) under favorable conditions (summer daytime) over land and all conditions over the ocean and 2) an inversion source model to estimate, from atmospheric satellite observations, N₂O surface fluxes.

To fulfill the MIN₂OS objectives, we propose a new TIR instrument. Our objective is to describe our theoretical studies to better determine the TIR instrument specifications and its deployment on a platform to better monitor N₂O mixing ratio in the lowermost troposphere. In Section 2, we first present the MIN₂OS project. We then describe in Section 3 the MIN₂OS instrumental concept through the development of a scientific tool that will help to identify the best configuration (spectral band and resolution, retrieval parameters, vertical sensitivity, etc.) associated with the instrument specifications (spectral noise achievable, spectral resolution, etc.) and the platform (orbit altitude, swath, etc.). The MIN₂OS system solution presenting the actual devices selected for the project are explained in Section 4. Section 5 presents the MIN₂OS mission including the instrument and the platform definition. Preliminary studies on the potential impact of MIN₂OS observations on retrieving N₂O surface fluxes are presented in Section 6 on the global and regional scales before concluding in Section 7.

2. The MIN₂OS project

2.1. The concept

There are currently no satellite observations sensitive to N₂O in the lower troposphere and with sufficient precision and accuracy to be used to determine surface-atmosphere fluxes. Such measurements are more pertinent than ever to reduce uncertainties in the emissions and to monitor the evolution of this important GHG, which will very likely continue to increase in the future. The MIN₂OS project intends to:

- 1) provide satellite measurements with a high sensitivity near the surface and unprecedented precision,
- 2) develop a Bayesian flux inversion tool based on a 4D-variational (4D-Var) assimilation method using state-of-the-art atmospheric chemistry transport models (at least one regional and one global model will be used),
- 3) use process-based modelling to estimate N₂O surface fluxes on the local scale and aggregate them on the regional scale,

- 4) validate the inversion-based flux estimates against independent data (measurements and modelling),
- 5) distribute N₂O flux data to external users (scientists, policy-makers, and other stakeholders).

Because today's TIR space-borne instruments (i.e., IASI, GOSAT and AIRS) mainly provide N₂O measurements with a high sensitivity in the upper troposphere, our objective is to develop a new instrument, detailed in Section 3, that will provide three independent vertical atmospheric layers of N₂O measurements in the lowermost, in the middle and in the upper troposphere (i.e., 900, 600 and 300 hPa, respectively). The vertical sensitivity is important for the inversion of sources/sinks because the N₂O mixing ratios (total column or in the upper troposphere and stratosphere altitudes) are strongly affected by photochemical loss in the stratosphere (Saito et al., 2012). The MIN₂OS instrument, based on the heritage of IASI and IASI-NG, will have a much higher signal-to-noise ratio, (i.e., 3–5 times higher than the one of IASI-NG). It will operate in the TIR, on the N₂O absorption band in the spectral domain of 1240–1320 cm⁻¹, with a resolution of 0.125 cm⁻¹, a Full Width at Half Maximum (FWHM) of 0.25 cm⁻¹ and a swath of 300 km (±150 km). In a sun-synchronous orbit at around 830 km altitude, the platform should fly with other platforms expected to fly in 2031 (e.g., Metop-SG equipped with IASI-NG, Sentinel-2 NG) in order to have access to coincident meteorological and chemical information such as temperature, humidity, clouds, and aerosols that will be used to analyze the MIN₂OS radiances.

The main advantage of the MIN₂OS instrument is to provide N₂O information in the lowermost troposphere, namely as close as possible to the source location. A good sensitivity in a vertical layer as close as possible to the surface will help to minimize errors due to the transport of air masses from the measurement location back to the source when applying the 4D-Var assimilation system to invert the surface N₂O sources (see Section 6). However, in some circumstances (e.g., presence of clouds, deep convection), the enriched-N₂O air masses detected by the MIN₂OS instrument might be far from the source and/or in the upper troposphere as during the summertime Asian monsoon studied in Kangah et al. (2017) with GOSAT observations. In such cases, the MIN₂OS instrument will be able to track these N₂O-enriched air masses due to its sensitivity within the lowermost, middle and upper troposphere. We recall that the aim of the source inversion is not to track air masses but to retrieve information on the emissions, to which the observed concentrations are sensitive. This is why the time resolution of the optimized fluxes can be coarse in time (from a week to a month) relative to the modelling of atmospheric transport. Therefore, it is not necessary to resolve daily (or higher frequency) fluxes, which are also of less relevance for policy-makers and main stakeholders. Nevertheless, data would be available almost every day of the whole month and will help better constrain the monthly (or weekly) mean fluxes.

The aim of the MIN₂OS technical concept is to develop a TIR instrument to obtain good quality N₂O vertical profiles in the lowermost layers of the troposphere and then systematically produce profiles on the global scale at a horizontal resolution of 1° × 1° and on the regional scale at a horizontal resolution of 10 × 10 km². The temporal evolution of N₂O depends on several factors such as the timing and rates of nitrogen-based fertilizer application, meteorology (rainfall, snowmelt), soil texture, soil water saturation, and crop. A diurnal cycle in the N₂O surface flux has been observed with a maximum around 12:00–14:00 local time (LT) and a minimum around 08:00 LT (Charteris et al., 2020). As a consequence, sampling between 09:00 and 10:00 LT was recommended to capture the daily mean N₂O flux in temperate climates (Alves et al., 2012) that is consistent with the fact that MIN₂OS will fly in convoy with Metop-SG equipped with IASI-NG and Sentinel-2 NG with a time of Equator crossing to about 09:30 LT. There is also a stringent constraint to obtain N₂O measurements in the lowermost troposphere at very high horizontal resolution. Consequently, the favored approach is to take advantage of the heritage of IASI and IASI-NG to specify an

instrument with a much higher signal to noise ratio than the ones of both IASI and IASI-NG, given that the temporal sampling will be imposed by the platform flying in convoy with the MIN₂OS platform. In the two following subsections, we present the spectral and vertical sensitivities of the present-day (IASI) and the future (IASI-NG) instruments to obtain N₂O information along the vertical, together with a new instrument that has the same spectral resolution as IASI-NG but a signal-to-noise ratio increased by a factor 3 or 5 compared to IASI-NG.

2.2. Spectral sensitivity

We first need to evaluate how the N₂O retrievals obtained with IASI-NG might be affected by the two following technical improvements: spectral resolution and signal-to-noise ratio compared to the N₂O retrievals obtained with IASI (see Chalinel et al., 2021). To do so, we used the Radiative Transfer for TIROS Operational Vertical sounder (RTTOV) model (Saunders et al., 1999) coupled with the Optimal Estimation method (Rodgers, 2000) in a way consistent with the analyses presented in Chalinel et al. (2021). For our retrieval system, we used RTTOV version 12.0 together with the regression coefficients v9 based on the model LBLRTM (LBL Radiative Transfer Model) (Hocking et al., 2015). In this version, the 25 predictors depend on the trace gas profiles including H₂O, O₃, CO₂, N₂O, CH₄ and carbon monoxide (CO).

Previous studies (e.g., Clerbaux et al., 2009) have highlighted 3 absorption bands of N₂O in the IASI spectral range centered at ~1280 cm⁻¹ (7.8 μm), ~2220 cm⁻¹ (4.5 μm) and ~2550 cm⁻¹ (3.9 μm). Fig. 1 shows a N₂O weighting function matrix (Jacobian matrix) calculated in units of brightness temperature (BT) for the IASI instrument for one pixel selected over France in favorable conditions (summer daytime) and presented in Table 2 and Fig. 3. This matrix represents the sensitivity of the calculated BT to a unit change in the N₂O volume mixing ratio (vmr). Note that the N₂O Jacobian matrices associated to the 2 × 15 pixels selected in favorable and unfavorable conditions (see Table 2 and Fig. 3) are shown in the Supplementary Material in Figs. S1 and S2, respectively. The spectral signature of N₂O appears in the three spectral regions with significant differences of intensity. The most intense absorption band is between 2190 and 2240 cm⁻¹ (4.5 μm) and shows sensitivity to N₂O 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 (7.8 μm) is less intense than the previous band and is sensitive to N₂O between 1000 and 100 hPa. The third band located between 2500 and 2600 cm⁻¹ (3.9 μm) is much less intense than the two other bands and is sensitive to N₂O from 900 to 300 hPa.

To illustrate the sensitivity of these 3 bands to N₂O and to the other atmospheric and surface parameters, a sensitivity study (Fig. 2) has been performed using a set of atmospheric and surface parameters representative of a given atmospheric state consistent with, as an example, one pixel over France in summer daytime (see Table 2 and Fig. 3). Note that the spectral sensitivity associated to the 2 × 15 pixels selected in favorable and unfavorable conditions (see Table 2 and Fig. 3) are shown in the Supplementary Material in Figs. S3 and S4, respectively. This study consists in calculating the variation of the absolute value of BT (called hereafter |ΔBT|) over the IASI-NG spectral range and resolution (consistent with MIN₂OS) for a 1% variation of the major atmospheric constituents and surface emissivity and 1 K variation of temperature profiles and surface. We selected the 3 following bands as follow: B1 (1240–1350 cm⁻¹), B2 (2150–2260 cm⁻¹) and B3 (2400–2500 cm⁻¹). The band B1 is mainly sensitive to: H₂O, temperature, CH₄, surface temperature and surface emissivity. The band B2 is mainly sensitive to: H₂O, temperature, CO₂, CO and O₃, surface temperature and surface emissivity. The band B3 is mainly sensitive to: H₂O, temperature, surface temperature and surface emissivity.

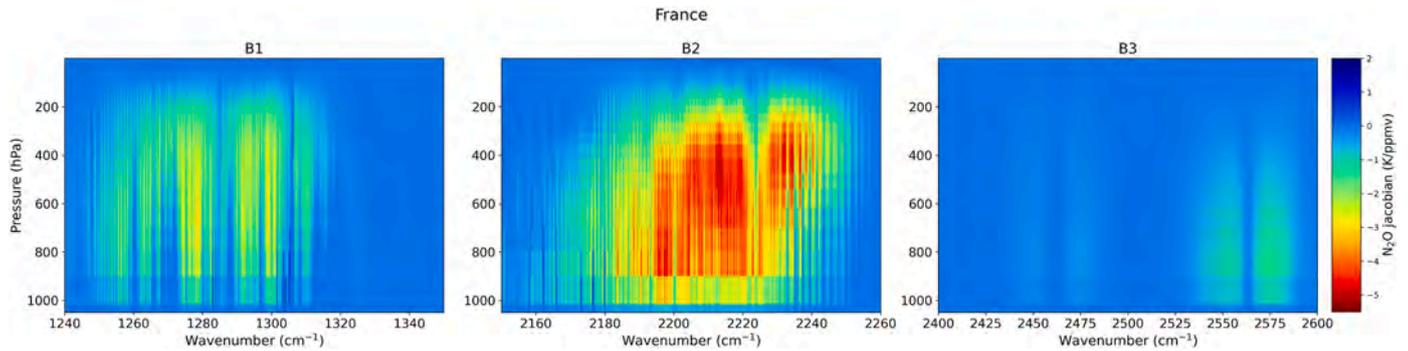


Fig. 1. N₂O Jacobian in brightness temperature (K/ppmv) calculated by RTTOV for one pixel selected over France in favorable conditions (summer daytime) and presented in Table 2 and Fig. 3, over the 3 IASI spectral micro-windows of 1240–1350 cm⁻¹ (B1, left), 2150–2260 cm⁻¹ (B2, middle), and 2400–2600 cm⁻¹ (B3, right). Note the colour scale is logarithmic.

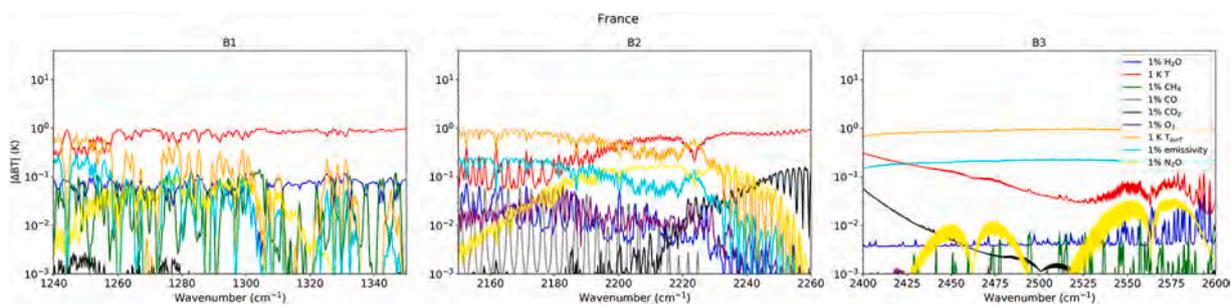


Fig. 2. Absolute change in brightness temperature ($|\Delta BT|$) for one pixel selected over France in favorable conditions (summer daytime) and presented in Table 2 and Fig. 3 for 1% change in: H₂O (dark blue), CH₄ (green), CO (grey), CO₂ (black), O₃ (purple), N₂O (yellow), and surface emissivity (light blue) and for 1 K change in: temperature profile (red), and surface temperature (orange) for the IASI-NG (consistent with MIN₂OS spectral resolution) over France in summer daytime in B1, B2 and B3. The y axis is in logarithmic scale. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

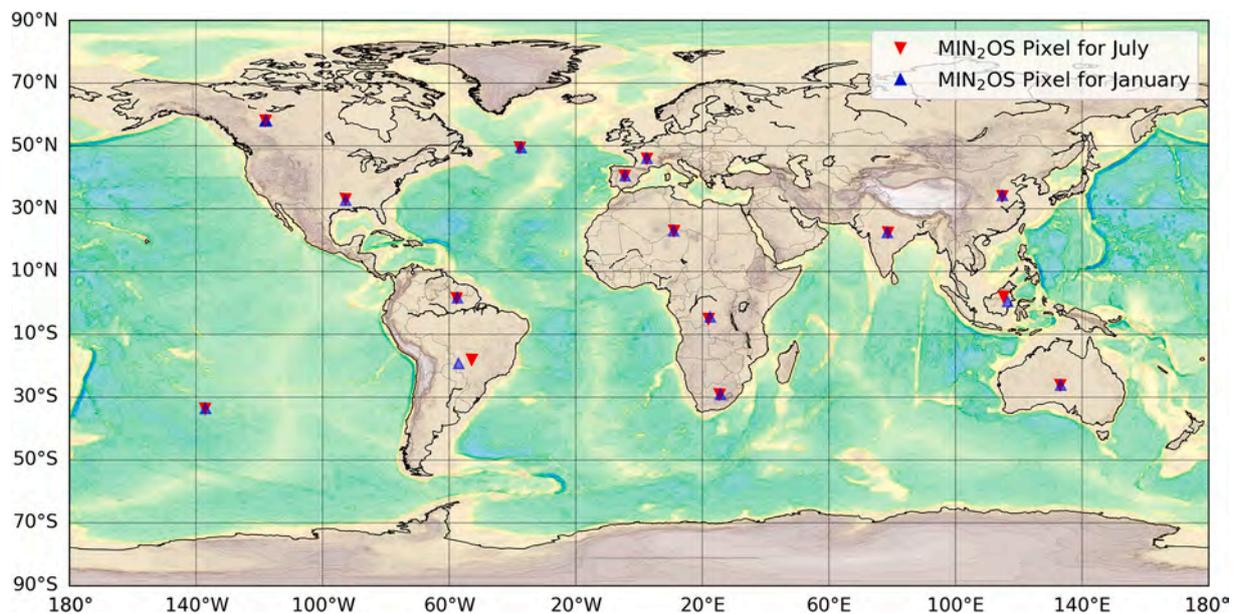


Fig. 3. Locations of the 2 × 15 MIN₂OS pixels (red triangles for July 2011 and blue triangles for January 2011 – dates and times of observations are listed in Table 2) used to highlight the radiance residuals, the averaging kernels, the DOFs, the N₂O total errors and the N₂O error contaminations. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

2.3. Vertical sensitivity

To evaluate the retrievals of N₂O profiles considering different configurations of the MIN₂OS instruments, we have used and adapted the

TN₂OR V1.7 tool initially developed to analyze IASI spectral measurements (Chalinel et al., 2021). The restitution process goes through several steps and uses mainly the RTTOV model version 12 and the Levenberg-Marquardt method that is a non-linear inversion algorithm

based on the optimal estimation method. For MIN₂OS, the IASI-NG instrumental line shape has been selected in RTTOV, providing a spectral resolution of 0.125 cm⁻¹, and a FWHM of 0.25 cm⁻¹. Depending on the band studied (B1 to B3), we used the a priori information and errors in the a priori covariance matrices consistent with Table 1. These values were consistent with the IASI study presented in Chalinel et al. (2021). We have to note that the expected improvement of the IASI-NG accuracy compared to the IASI accuracy on the retrievals of several species has been presented in Crevoisier et al. (2014): 0.1 to 0.5% for tropospheric temperature, 0–8% for tropospheric H₂O, 5–47% for CH₄ tropospheric columns, 5–5% for CO₂ tropospheric columns, and 3–51% for tropospheric O₃. This means that the configuration of our retrieval a priori and error covariance matrices for MIN₂OS can be considered as pessimistic and could be improved in the future.

The total error was evaluated as the sum of the smoothing error (issued from the covariance matrix of the a priori state) and the measurement error (issued from the error covariance matrix of the observed spectral radiance). In band B1, we have selected the variables to be retrieved to be: N₂O, CH₄, H₂O, temperature (T), surface temperature (T_s) and surface emissivity (ε). In band B2, the variables to be retrieved are: N₂O, H₂O, O₃, CO₂, CO, T, T_s and ε. And, in band B3, the variables to be retrieved are: N₂O, H₂O, T, T_s and ε. Note that ocean emissivity models are very accurate but we can expect more errors over land surfaces due to unknowns about viewing-angle dependence of some surface types such as desert. A value of 1% over ocean is attainable but, above land surfaces, values ranging 2–5% can be expected (Loveless et al., 2021), namely still less than the a priori error on surface emissivity (Δε) fixed to be 15% in our study.

For each band, the Signal-to-Noise Ratio (SNR) associated with MIN₂OS was tuned to be either three times or five times higher than the one associated with IASI-NG. Consistent with the study presented in Chalinel et al. (2021), the retrieval process was applied for the 2 × 15 pixels presented in Fig. 3 and Table 2, which correspond to 2 extreme conditions in the TIR domain caused by the impact of the thermal contrast on the vertical sensitivity of the observations, namely in favorable (summer daytime) and unfavorable (winter nighttime) conditions over land and the ocean.

Concretely, to determine for the MIN₂OS project the spectral and vertical sensitivities, total random errors and contaminations, we have used spectral radiances measured by IASI over 0.5 cm⁻¹ resolution in the bands B1, B2 and B3 in the vicinity of 15 sites in favorable and unfavorable conditions. This set of 30 radiances is then spectrally interpolated into 0.25 cm⁻¹ to reach the IASI-NG and MIN₂OS spectral resolutions. The noise associated to the 3 bands is then: 1) the IASI noise, 2) the IASI-NG noise, and 3) the MIN₂OS noise that is to say the IASI-NG noise divided either by 3 or by 5. The TN₂OR V1.7 tool is then applied to the 2 × 15 spectral radiances consistent with IASI, IASI-NG or MIN₂OS (SNR × 3 or 5 compared to the one of IASI-NG) to obtain vertical profiles and associated random errors of a set of geophysical variables including N₂O. Three points are worthwhile mentioning. 1) The Optimal Estimation Method is an unbiased random retrieval method. As a consequence, we have not calculated systematic errors but we have estimated the contamination factor (Chalinel et al., 2021) on the N₂O estimation induced by the parameters simultaneously retrieved (see Section 3.4). 2) The retrieved radiances are debiased against the observed radiances, this has the main advantage of lessening the impact of systematic errors

(such as the spectroscopic errors) on the retrieved species. From Matricardi (2009), the differences between radiances observed by IASI and radiances calculated by RTTOV in the MIN₂OS bands B1, B2 and B3 are ranging -0.8 to 0.0 K, -1.2 to 0.0 K and -0.8 to 0.1 K, respectively in the Northern Hemisphere, -1.6 to 0.4 K, -1.2 to 1.2 K and -1.0 to -0.4 K, respectively in the tropics, and -0.8 K to 0.2 K, -1.2 to +1.6 K, and -0.8 to 0.0 K, respectively in the Southern Hemisphere. And 3) the a priori temperature and H₂O vertical profiles were taken from the official EUMETSAT IASI Level 2 products associated to the 2 × 15 pixels selected in favorable and unfavorable conditions (see Table 2 and Fig. 3); these profiles are shown in Figs. S5 and S6, respectively.

Figs. 4 and 5 illustrate the averaging kernels calculated for one pixel selected over France in favorable and unfavorable conditions, respectively. Note that the N₂O averaging kernels associated to the 2 × 15 pixels selected in favorable and unfavorable conditions (see Table 2 and Fig. 3) are shown in the Supplementary Material in Figs. S7 and S8, respectively. The averaging kernel represents the vertical sensitivity contained in the observations. Increasing the SNR from IASI and IASI-NG instruments to the ones of MIN₂OS increases the vertical sensitivity of the N₂O observations, with an obvious lower-tropospheric peak in MIN₂OS B1 and B2 during favorable conditions, even more pronounced in B2 than in B1 at 900 hPa. Three independent pieces of information are found at 300, 600 and, in favorable conditions, at 900 hPa. Whatever the conditions, retrievals in B3 show less sensitivity in the low troposphere compared to the ones in B1 and B2. The Degree-of-Freedom (DOF) characterizes the vertical information contained in the retrieval. In favorable conditions (Fig. 4), the DOFs in the MIN₂OS B1 and B2 reach ~2, while it is only 1.1–1.3 in IASI-NG; in B3, the MIN₂OS DOF is only 0.9–1.0 while the IASI-NG DOF is 0.5. In unfavorable conditions (Fig. 5), MIN₂OS DOFs in B1 and B2 (1.0–1.6) are still greater than IASI-NG DOFs (0.7–1.0) while, in B3, MIN₂OS DOFs are even much lower (0.2–0.5). From this analysis and the 2 × 15 pixels selected in favorable and unfavorable conditions (Figs. S7 and S8, respectively), we definitely rejected the band B3 to get valuable N₂O observations in the lower troposphere.

We kept the B1 and B2 bands in MIN₂OS for getting meaningful information on N₂O in the lowermost troposphere. We summarized the results obtained from MIN₂OS using the best configuration (SNR × 5) over the bands B1 and B2 in Fig. 6. We show the DOF (calculated from the surface to the top of the atmosphere), the DOF-600 (calculated from the surface to 600 hPa) to quantify the vertical information contained in the lowermost tropospheric retrieval, and the sensitivity of the averaging kernels (defined as the value of the averaging kernels at a given pressure) at 900 hPa in bands B1 and B2 for the 15 pixels in 2 conditions (favorable and unfavorable). Along the vertical, DOFs show a higher sensitivity in B1 (1.5–2.0) than in B2 (1.0–1.5) in unfavorable conditions and a similar sensitivity (2.0–2.5) in favorable conditions. However, in the lowermost troposphere, B2 provides more sensitivity (0.8–1.2) than B1 (0.6–1.0) while, in unfavorable conditions, sensitivity in B1 is slightly higher (0.4–0.6) than in B2 (0.2–0.5). This means that overall, in B1, the sensitivity in the upper troposphere is higher than in B2. This is also confirmed by our analyses focusing on 300 hPa. Fig. S9 shows a comparison of the MIN₂OS sensitivity of the averaging kernels considering a IASI-NG SNR × 5 between the bands at 1200 cm⁻¹ (8 μm) and 2200 cm⁻¹ (4 μm) for the 2 × 15 pixels (Fig. 3) in favorable (red and orange symbols) and unfavorable (dark and light blue symbols) conditions at

Table 1

Synthesis of the parameters setup in the TN₂OR V1.7 retrieval scheme as a function of the 3 bands B1, B2 and B3: a priori information and error for N₂O, CH₄, H₂O, O₃, CO₂, CO, temperature (T), surface temperature (T_s) and surface emissivity (ε).

N ₂ O		CH ₄		H ₂ O		O ₃	CO ₂		CO	T	T _s	ε					
B1, B2, B3		B1		B1, B2, B3		B2	B2		B2	B1, B2, B3	B1, B2, B3		B1, B2, B3				
N ₂ O _{ap}	ΔN ₂ O	CH _{4ap}	ΔCH ₄	H ₂ O _{ap}	ΔH ₂ O	O _{3ap}	ΔO ₃	CO _{2ap}	ΔCO ₂	CO _{ap}	ΔCO	T _{ap}	ΔT	T _{sap}	ΔT _s	ε _{ap}	Δε
HIPPO & LMDz	0.8%	MACC	2%	IASI	20%	MIPAS	30%	MIPAS	2%	MACC	20%	IASI	0.5 K	IASI	1.5 K	Atlas	0.15

Table 2

Location, latitude, longitude, date, time, day/night and surface pressure of the 2×15 MIN₂OS pixels used in our study measured in favorable (summer daytime) and unfavorable (winter nighttime) conditions.

Pixel #	Location	Latitude	Longitude	Date/2011	Time/UT	Day/Night	Surface P/hPa
1	Canada	58.03°N	118.08°W	17 July	17:58	Day	961.47
2		58.15°N	117.86°W	30 January	05:26	Night	991.3
3	North Atlantic Ocean	49.47°N	37.72°W	12 July	13:00	Day	1017.07
4		49.55°N	37.37°W	2 January	23:38	Night	1010.62
5	France	45.99°N	2.41°E	2 July	09:45	Day	934.47
6		46.12°N	2.45°E	19 January	21:03	Night	960.51
7	Spain	40.61°N	4.55°W	20 July	10:15	Day	893.73
8		40.58°N	4.4°W	2 January	21:54	Night	890.58
9	China	34.0°N	114.73°E	14 July	02:14	Day	1010.66
10		34.35°N	114.8°E	4 January	12:44	Night	1007.27
11	USA	33.12°N	92.82°W	18 July	16:03	Day	1000.56
12		32.81°N	92.83°W	6 January	03:34	Night	1019.15
13	Sahara	23.07°N	10.99°E	9 July	09:46	Day	915.74
14		23.07°N	10.88°E	6 January	20:25	Night	916.94
15	India	22.52°N	78.69°E	27 July	04:30	Day	950.05
16		22.46°N	78.36°E	8 January	16:20	Night	949.03
17	Maritime Continent	2.08°N	115.13°E	30 July	01:52	Day	904.86
18		0.54°N	116.49°E	5 January	13:54	Night	998.89
19	Amazonia	1.56°N	57.66°W	11 July	13:34	Day	982.17
20		1.74°N	57.43°W	12 January	01:20	Night	970.04
21	Equatorial Africa	4.99°S	21.94°E	4 January	08:22	Day	956.58
22		4.4°S	22.39°E	6 July	19:32	Night	948.33
23	Brazil	18.05°S	52.88°W	6 January	12:48	Day	923.44
24		19.13°S	57.05°W	4 July	01:35	Night	1014.21
25	Australia	26.08°S	133.12°E	7 January	00:39	Day	945.65
26		26.07°S	133.15°E	1 July	12:44	Night	956.67
27	South Africa	28.99°S	25.44°E	6 January	07:46	Day	878.57
28		29.11°S	25.64°E	1 July	19:29	Night	878.7
29	South Pacific Ocean	33.58°S	137.16°W	5 January	18:17	Day	1018.99
30		33.52°S	137.02°W	3 July	06:56	Night	1005.68

The 2×15 MIN₂OS pixels are also shown in Fig. 3.

900, 600 and 300 hPa. This clearly illustrates that overall, in B1, the sensitivity of the 300-hPa averaging kernels (0.25–0.30) is higher than in B2 (0.17–0.28). In the middle troposphere (600 hPa), the sensitivity of the averaging kernels in bands B1 and B2 is similar (0.20–0.25). The sensitivity of the 900-hPa averaging kernels is similar in B1 and B2 in unfavorable conditions (0.0–0.2) but, in favorable conditions, the sensitivity is higher in B2 (0.2–0.5) than in B1 (0.1–0.4). The theoretical analysis so far does not allow us to differentiate clearly, between the spectral bands B1 and B2, which one performs better in providing optimum information on N₂O in the lowermost troposphere for any condition. In Section 3, we present further results of the SNRs expected from actual detectors.

3. The MIN₂OS instrumental concept

3.1. Mission

The MIN₂OS instrument will be onboard a platform in synergy with 2 other platforms expected to fly in 2031–2032. It will fly in time and space coincidence with Metop-SG carrying IASI-NG and Sentinel-2 NG so as to use surface properties such as temperature and emissivity, vertical profiles of atmospheric constituents (pollutants, GHGs and aerosols) and temperature to optimally estimate N₂O vertical profiles in the retrieval procedure. Sentinel-2 NG will provide ancillary data on the soil, crop and management practices on the field scale, an added value to the N₂O surface fluxes inverted in the MIN₂OS project. Flying with Metop-SG constrains the altitude and the time of Equator crossing to about 830 km and 09:30 LT, respectively. The expected lifetime of the MIN₂OS project is 4–5 years in order to study the interannual variability of N₂O surface fluxes on the local and global scales for the first time.

3.2. Instrument configuration

To address major shortcomings in IASI and IASI-NG, namely a lack of

information on N₂O in the lowermost troposphere, we propose a novel TIR satellite instrument. Instead of expecting that the Noise Equivalent delta Radiance (NEDL) could be decreased by a factor 3–5 compared to that of the IASI-NG as we showed in Section 2, we used the actual configurations (SNR and horizontal resolution) of a set of 4 detectors (see Fig. 9). At 1300 cm⁻¹, LYNRED/SCORPIO and TELEDYNE/GEOSNAP were chosen and, at 2200 cm⁻¹, we selected LYNRED/DAPHNIS and TELEDYNE/GEOSNAP. For both bands at any given horizontal resolution, the TELEDYNE detectors showed much less NEDL than the LYNRED detectors. Note that at 10-km resolution, the SNR associated with the 4 detectors was 4–7 times higher than the one from IASI-NG.

3.3. Instrument performance

We made calculations with TN₂OR, consistent with Section 2, only modifying the SNR to the one from the 4 detectors at a 10-km resolution, namely the lowest noise reachable, considering the same 15 pixels in favorable and unfavorable conditions. Fig. 7 shows the averaging kernel sensitivity vs the total error calculated at 300, 600 and 900 hPa for the 4 detectors in bands B1 and B2. On average, for any pressure level and band, the higher the sensitivity (ranging 0.0–0.7), the lower the total error (ranging 0.3–0.7%). At 300 and 600 hPa, the impact of the favorable conditions on the sensitivity and error is not obvious, except that the poorest sensitivity is always found in unfavorable conditions. At these two levels, on average, the sensitivity in B1 is slightly better than the sensitivity in band B2 by 0.2. Consistent with results obtained in Section 2.3, the sensitivity (and error) at 900 hPa: 1) is better by 0.4 in favorable than in unfavorable conditions and 2), in a given condition, is slightly better by 0.1–0.2 in band B2 than in band B1. As expected with the associated SNR, the sensitivity calculated with the TELEDYNE/GEOSNAP detectors is higher by 0.1–0.2 than the one calculated with the LYNRED/DAPHNIS and LYNRED/SCORPIO detectors.

However, several possible effects on the N₂O retrievals need to be addressed:

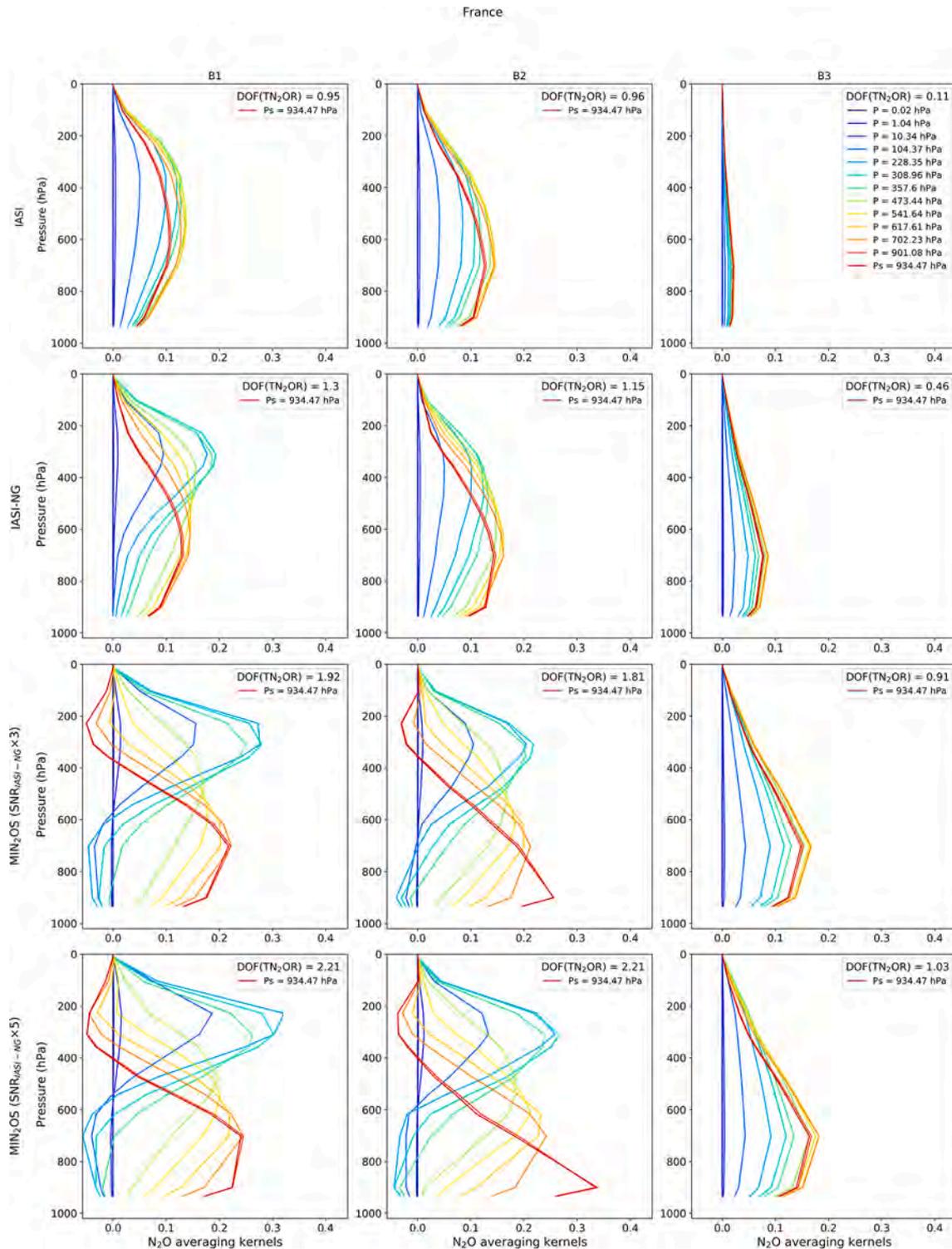


Fig. 4. N_2O averaging kernels calculated with TN_2OR for one pixel over France (see Fig. 3 and Table 2) in favorable conditions considering the 3 bands (B1, B2 and B3, from left to right) and 4 instrumental concepts (from top to bottom): IASI, IASI-NG, $MIN_2OS (SNR_{IASI-NG} \times 3)$ and $MIN_2OS (SNR_{IASI-NG} \times 5)$.

3.3.1. Aerosol contamination

The RTTOV model is able to consider aerosol impact on the IR radiances by using climatological vertical distributions of different types of aerosols. Aerosol information from the IASI spectra is now routinely retrieved (e.g., Clarisse et al., 2013; Cuesta et al., 2015) relying on the spectral band $750\text{--}1250\text{ cm}^{-1}$. Sensitivity of aerosols in the LWIR and MWIR has been investigated with AIRS sensor (Peyridieu et al., 2010; updated in <https://ara.lmd.polytechnique.fr/index.php?page=aeroso>

ls_{old} for IASI) considering mineral dust for aerosol optical depths (AODs) ranging 0.2–0.6: 1) above 1250 cm^{-1} , the impact of aerosol appears to be negligible (difference between clear sky radiance and aerosol-impacted radiance less than 0.2 K) while 2) between 2150 and 2260 cm^{-1} , aerosol has non-negligible effects on the radiance from 0.5 to 1.5 K, with its maximum impact around 2150 cm^{-1} .

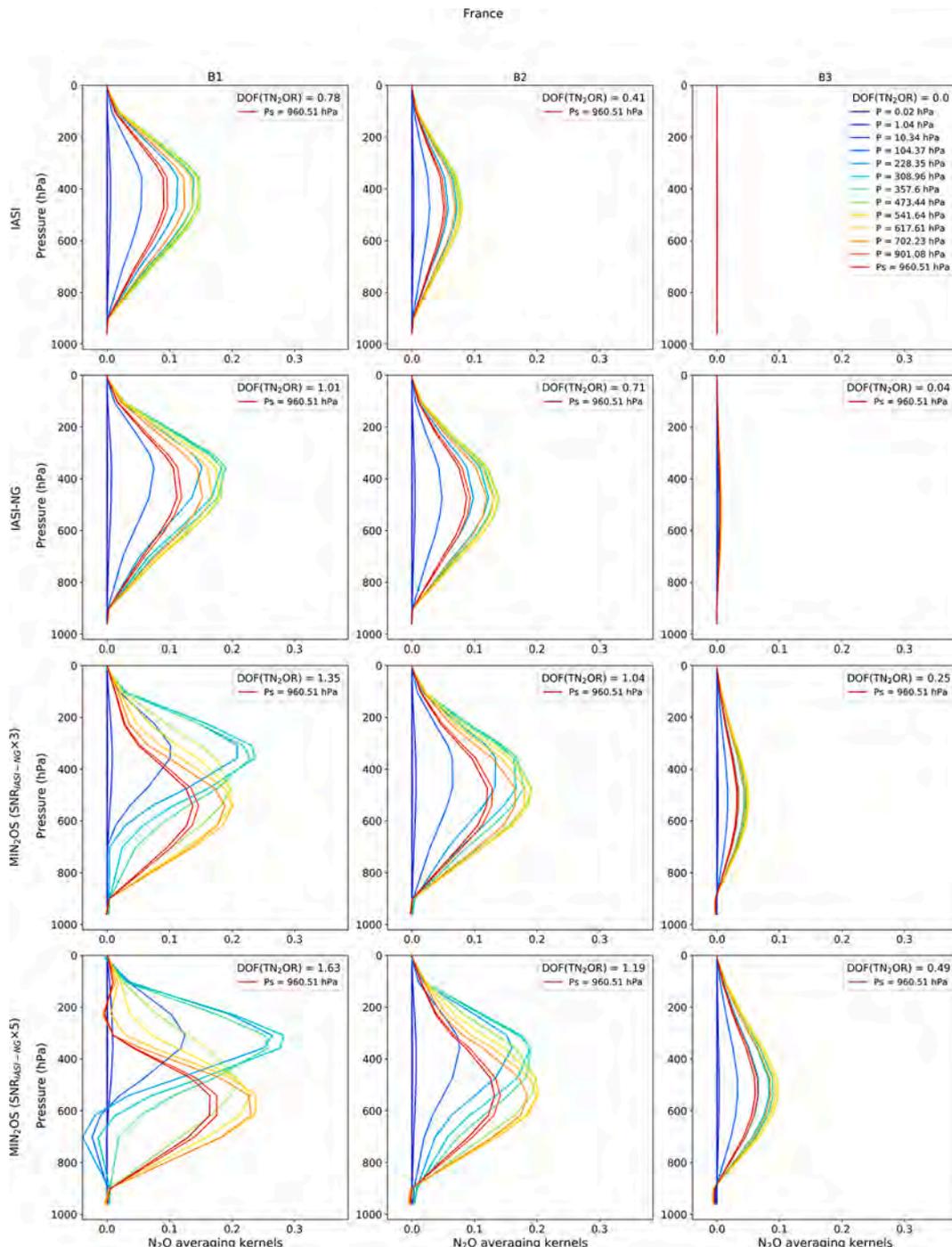


Fig. 5. Same as Fig. 4 but for one pixel over France (see Fig. 3 and Table 2) in unfavorable conditions.

3.3.2. Non-Local Thermodynamic Effect (NLTE) effect

The RTTOV model is also able to consider NLTE impact on the IR radiances. This effect is important in the 4 μm band. Since the N₂O lines are mixed with the CO₂ bands in this region, recent studies (Matricardi et al., 2018) have investigated this effect on daytime measurements. The difference between radiances with and without taking into account NLTE effects can reach 6 K around 2320 cm⁻¹, with a NLTE effect that is non-negligible over the region 2240–2390 cm⁻¹.

3.3.3. Spectroscopy

We are aware of some issues discussed in the community that will need to be investigated theoretically and in the laboratory by the group

during phases 0 and A: 1) line mixing in the region around the Q-branch at 1306 cm⁻¹, 2) accuracy of the spectroscopic parameters describing the Voigt shape and their temperature dependence, and 3) contribution/overlap of CH₄ lines with those of N₂O.

3.3.4. Retrieval

1) Contamination of the retrieved species other than N₂O onto N₂O retrieval errors: the retrieval contamination issues have already been tackled when retrieving N₂O from IASI radiances with TN₂OR V1.7. For MIN₂OS, we have evaluated the contamination factor (Chalinel et al., 2021) on the N₂O estimation induced by the parameters to be simultaneously retrieved. In band B1, H₂O and CH₄ impacted the N₂O total

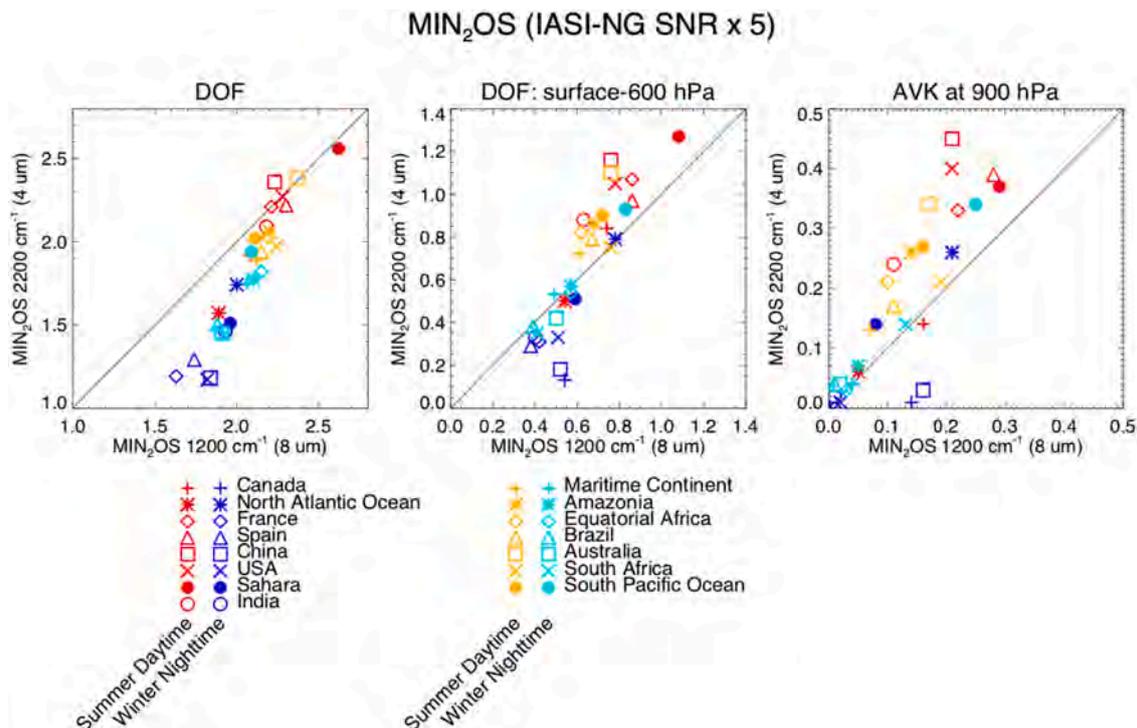


Fig. 6. Comparison of the MIN₂OS sensitivity considering a IASI-NG SNR × 5 between the bands at 1200 cm⁻¹ (8 μm) and 2200 cm⁻¹ (4 μm) for the 2 × 15 pixels (Fig. 3) in favorable (red and orange symbols) and unfavorable (dark and light blue symbols) conditions: (left) DOF (calculated from the surface to the top of the atmosphere), (middle) lowermost tropospheric DOF (calculated from the surface to 600 hPa) and (right) sensitivity of the averaging kernels at 900 hPa. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

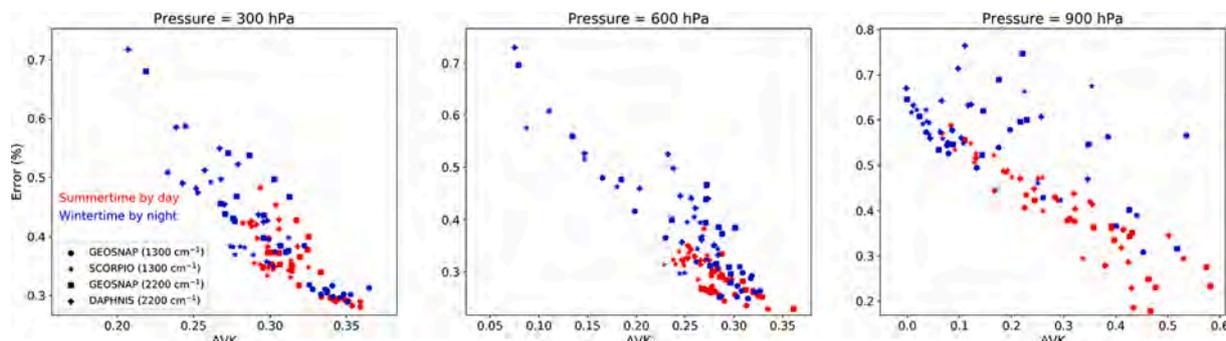


Fig. 7. Averaging kernel sensitivity vs total error calculated over the 2 × 15 pixels in favorable (summer daytime, red) and unfavorable (winter nighttime, blue) conditions at 300 (left), 600 (centre) and 900 hPa (right) considering the NEDL associated with the 4 detectors with a 10-km horizontal resolution: LYNRED/SCORPIO (star) and TELEDYNE/GEOSNAP (circle) at 1300 cm⁻¹, LYNRED/DAPHNIS (plus) and TELEDYNE/GEOSNAP (square) at 2200 cm⁻¹. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

error by 0.1–0.3% (Fig. 8). Similarly, in band B2, H₂O, O₃ and CO impacted the N₂O total error by ~0.7% (not shown). 2) Systematic errors (detectors, temperature, spectroscopy) will need to be specifically investigated when adapting our TN₂OR tool to the MIN₂OS final specifications during phases 0 and A. As a consequence, to minimize aerosol contamination and NLTE effect on the radiances, we reduced the total bandwidth of the 2 bands to B1 (1250–1330 cm⁻¹) and B2 (2150–2240 cm⁻¹).

3.4. Instrument and project specification synthesis

In summary, using highly-sensitive detectors, three independent pieces of information in the N₂O vertical profile could be obtained within the MIN₂OS project by retrieving the radiances measured in both bands B1 (1250–1330 cm⁻¹) and B2 (2150–2240 cm⁻¹): at 900 hPa

(specific to MIN₂OS), 600 hPa (middle troposphere same as with IASI-NG and GOSAT-2) and 300 hPa (upper troposphere same as with IASI, IASI-NG, GOSAT and GOSAT-2). The standard deviation error on one single pixel of 10 × 10 km² is calculated to be lower than the one estimated for IASI and GOSAT, namely less than 1% at all levels, reaching 0.2–0.8% (0.8–2.7 ppbv) at 900 hPa. The N₂O observation in the lowermost troposphere is highly dependent on the conditions encountered: over land, with high sensitivity in favorable conditions, such as in summer daytime, and low sensitivity in unfavorable conditions, such as in winter nighttime, and, over the ocean, opposite to over land. For information, since one configuration has been chosen to develop the MIN₂OS technical concept focusing on B1 with a GEOSNAP detector, we show the associated averaging kernel, total error and contamination factor (as defined in Chalinel et al., 2021) averaged over the 15 pixels considered in favorable and unfavorable conditions (Fig. 8). Averaging

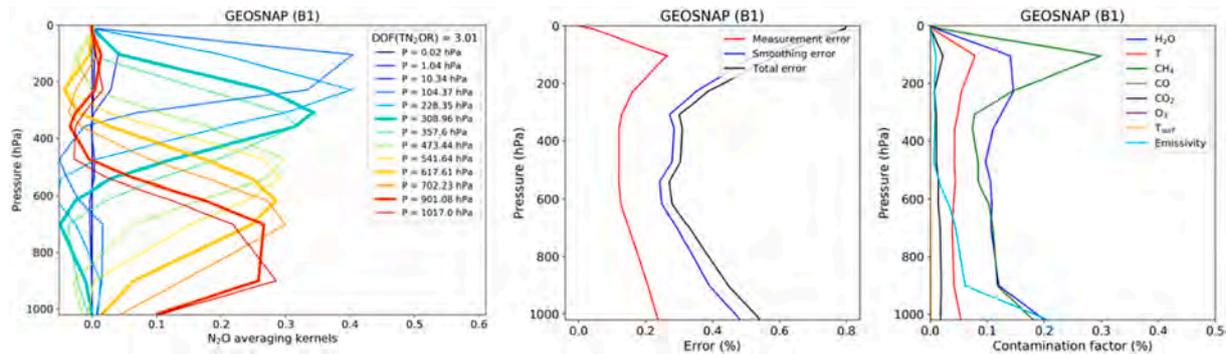


Fig. 8. (Left) Averaging kernel sensitivity, (center) total error (%) and (right) contamination factor (%) calculated over the 2×15 pixels in favorable and unfavorable conditions with the GEOSNAP detector in band B1.

kernels peak at 900 hPa, with a DOF ~ 3 , a total error $< 1\%$ and mainly 2 constituents (H_2O and CH_4 and, to a lesser extent, surface emissivity) contaminate N_2O in the lowermost troposphere (0.1–0.2%).

4. The MIN_2OS system solution

4.1. The MIN_2OS optical payload

Our theoretical study (Section 3) shows that two bands can be used to optimally retrieve N_2O in the lowermost troposphere at 8 (B1) and 4 μm (B2). In the present study, we have considered both bands and several detectors. The main instrument is an imaging spectrometer composed of an entrance telescope, a slit, and a spectrometer made of a collimator, a diffraction grating, imaging optics and a detection module. The instrument is sized to provide a horizontal resolution of 10 km from an altitude close to 800 km. In complement to the spectrometer, a wide field and high horizontal resolution TIR imager is implemented for cloud detection with an improved spatial resolution of 1 km. The two instruments are sharing a common calibration system including calibration blackbody. Several design options have been investigated for the spectrometer, with two candidate spectral bands suitable to the mission objectives, at 4 and 8 μm . Several candidate detectors have been analyzed, providing different instrument characteristics and radiometric performance levels.

4.1.1. Main instrument requirements

Two candidate spectral bands are considered at mission level: spectral band B1, centered on 1290 cm^{-1} , and spectral band B2, centered on 2205 cm^{-1} . The spectral resolution requirement is based on the IASI-NG spectral resolution of 0.25 cm^{-1} , with an oversampling factor of 2. The resulting resolving power is 5160 for B1 and 8820 for B2. The selected orbit is based on the Sentinel-2 orbit (786 km); the required horizontal resolution is below 10 km, with a minimum swath width at least equal to Sentinel-2 MSI (290 km). The radiometric noise requirement is set at a reference temperature of 280 K, with a Noise Equivalent Differential Temperature (NEdT) about five times lower than the IASI-NG requirement, for a spatial sampling distance of 10 km. The MIN_2OS payload will also include a cloud imager to discard cloudy and/or partly-cloudy pixels. The actual analysis was performed by considering cloud-free pixels only. This imager must operate in the TIR band in order to be operational during day and night. The instrument technology is using a microbolometer array operated near ambient conditions.

4.1.2. Candidate detector arrays

4.1.2.1. Spectral band B1. Three detector arrays have been identified as possible candidate to cover the spectral band B1: the SCORPIO and DAPHNIS arrays from Lynred, and the GEOSNAP array from Teledyne. The SCORPIO LongWave InfraRed (LWIR) is a 640×512 pixels IR

detector produced by Lynred since 2010. The DAPHNIS LWIR corresponds to DAPHNIS MidWave InfraRed (MWIR) ROIC coupled to Lynred LWIR photodiodes. Despite its large format (1280×720 pixels), a full frame rate as high as 85 Hz can be reached thanks to the implementation of digital output, offering 80 Mpixel/s output rate. The GEOSNAP/CHROMA-D corresponds to a family of 18- μm pixel pitch MCT IR detectors developed by Teledyne US mainly for Earth Observation from space.

4.1.2.2. Spectral band B2. Two detector arrays have been identified as possible candidate to cover the spectral band B2: the DAPHNIS array from Lynred, and the GEOSNAP array from Teledyne. The DAPHNIS MWIR ROIC for band B2 is similar to the DAPHNIS LWIR ROIC described above. GEOSNAP for B2 is similar to the one proposed for B1 except that MWIR MCT p/n photodiodes are used, offering an even larger Technology Readiness Level (TRL) (≥ 6) thanks to ongoing space programs (e.g., the James Webb Space Telescope) using similar 18- μm pitch MWIR photodiode technology.

4.1.2.3. Cloud Imager. The uncooled detector technology is selected for the Cloud Imager. The PICO1024Gen2 is a COTS microbolometers 2D array manufactured by Lynred, featuring a 1024×768 -pixels format with a 17- μm pixel pitch.

4.1.3. Cooling system

Considering the requested spectrometer and detector temperature, active cooling is a robust solution e.g. with fully qualified Air Liquid LPTC two-stage pulse-tube cooler, already implemented on IASI-NG. Alternatively, active detector cooling with its IDCCA, combined with spectrometer passive cooling may be considered, especially in case of nadir pointing only.

4.2. Optical performance

4.2.1. Optical quality

All instrument design cases provide very good optical quality with spot diagrams RMS diameter smaller than the pixel size, with values well below the Airy diameter.

4.2.2. Cloud Imager

The cloud imager consists in a refractive camera combined with a microbolometer detector array operating at ambient temperature. The PICO 1024 array from Lynred is selected: the array features 1024×768 pixels at 17- μm pitch.

4.3. Radiometric performances

4.3.1. Spectrometer

The radiometric performances have been estimated using a signal-to-

noise model of the instrument including typical optical transmission data and detector characteristics. The instrument is operating in push-broom mode.

4.3.2. Instrument operating temperature

The required detector and spectrometer temperatures have been determined to provide a limited contribution to the overall noise budget according to the available detector noise models. The operating temperature of the Teledyne array is about 10 K higher than for the Lynred arrays.

4.3.3. Noise budget

The detector array and spectrometer temperatures have been determined to provide noise contributors consistent with the photonic signal levels. Typical models have been used. The gain factor of 5 with regard to IASI-NG is so achievable in most of the cases, with significant margin using the GEOSNAP array (Fig. 9).

4.3.4. Cloud imager

The radiometric performances are estimated using the Airbus internal performance model of the PICO 1024 detector array. We consider an along-track spatial sampling equal to the native spatial resolution, i.e., 0.333 km.

4.4. Implementation

A tentative accommodation of the instrument on a platform has been performed to get an estimate of the required satellite resources (Fig. 10). For this exercise, the spectral band B1 has been considered, on the basis of the GEOSNAP array, which corresponds to the largest instrument case. The spectrometer optics are mounted on a main baseplate. The optics are split into two units: the telescope and collimator unit, and the imaging optics unit. The TIR camera and the spectrometer share the same calibration mechanism.

4.5. Instrument properties

Table 3 synthesizes the instrument budget: mass, volume, power, etc.

5. The MIN₂OS mission

5.1. The MIN₂OS orbit

The mission is directly driven by the need to fly in convoy mode with Metop-SG embedding IASI-NG. Considering that both ocean and land have to be covered and that imaging is performed both during day and night, Fig. 11 illustrates the resulting mission performances of the system. As a result, all land is accessed both in day and night conditions over the complete 29 days of orbital cycle.

Regarding satellite operations, the MIN₂OS mission is simple and repetitive, which allows us to implement a simple operation scheme, with limited frequency of Telemetry, Tracking & Command contacts (typically once every few days). Regarding the payload data download, the amount of data to be downloaded is particularly limited. But the payload data latency required may be short, in the order of 5–10 h. This implies that payload data would potentially have to be downloaded almost every orbit, which would be a significant constraint on the payload ground station antennas network selection.

5.2. MIN₂OS platform and satellite configuration

The MIN₂OS satellite is dedicated to a single imaging spectrometer instrument. The satellite design is driven by the instrument design, the need to acquire images continuously over the orbit (including night time), the minimization of development risks through an extensive reuse of already developed and validated elements and the end of life deorbitation.

5.2.1. MIN₂OS platform built around Astrobus avionics

The platform identified to best suit the MIN₂OS mission will be built around the Astrobus standard avionics. AstroBus is Airbus' Low Earth Orbit (LEO) avionics product. It comprises a suite of flight hardware, software, documentation, test benches and tools, implemented and managed as an avionics product. It is maintained to adopt improvements/issues from individual projects, shared and addressed for the benefit of current and future projects. Projects based on an avionics product benefit from proven elements already developed, validated and flown together.

5.2.2. Satellite configuration

The payload is directly accommodated on the top floor of the platform, as shown in Fig. 12. The platform is a simple box-shaped structure, with a stable top floor to be used for platform interface. The star trackers can be mounted on the top floor for improved pointing performances. With respect to the accommodation, a great care is brought to ensuring the feasibility of harness installation, satellite accessibility, testability and dismountability. Scientific data downlink is ensured in X-band, thanks to the moderate data volume generated by the instrument. The proposed platform product can easily be customized with a Ka-band system such as the one baselined for Copernicus LSTM. All other functional chains (electrical power, S-band, payload data handling and transmission, propulsion) are defined in the AstroBus standard, and fulfill all the needs and performance requirements of the MIN₂OS mission. The modular central software is also part of the platform product, and is designed so as to be easily adapted to any mission.

Such a platform largely covers the 5 years lifetime as required as a minimum by the mission. The suitability of a standard platform designed for Earth Observation is confirmed thanks to MIN₂OS main mission

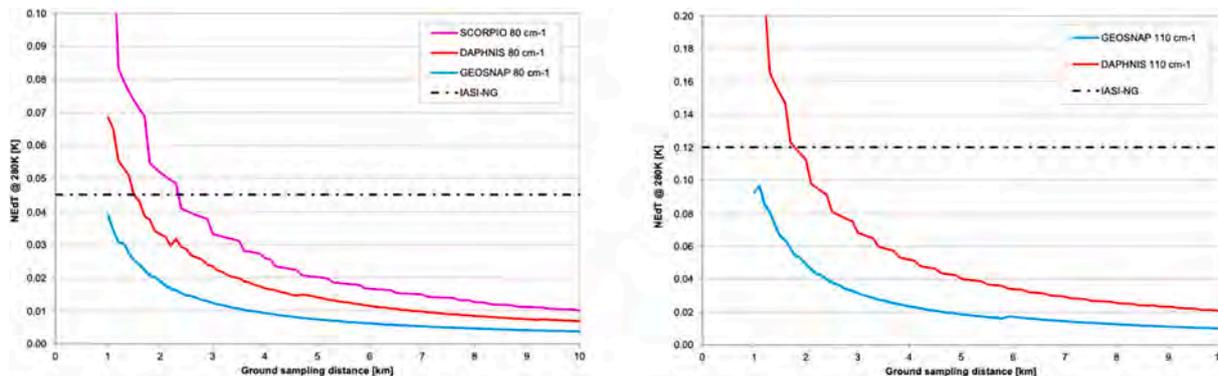


Fig. 9. Noise Equivalent differential Temperature (NEdT) @ 280 K as a function of the ground spatial sampling distance in band B1 (left) and B2 (right).

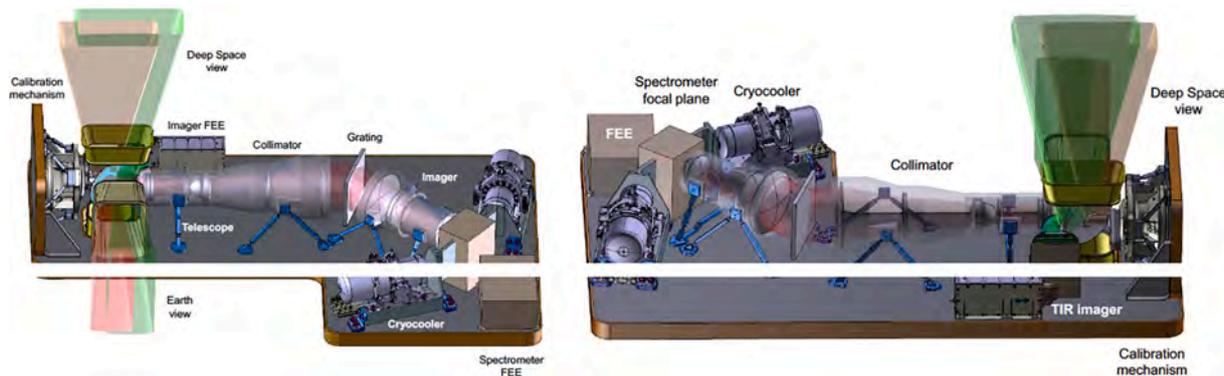


Fig. 10. Instrument accommodation.

Table 3
Synthesis of the instrument properties: mass, volume, power and data rate.

Property	Value
Mass	91.4 kg
Volume	1200 × 600 × 300 mm ³
Power	167 W
Data Rate	200 Mbits/s (spectro) & 6.4 kbits/s (camera)

requirements. The constant power demand from the instrument is lower than that of other high-resolution instruments. The permanent nadir pointing offers a stable thermal environment, and does not put agility constraints on the attitude control subsystem. Finally, fair pointing stability and geolocation requirements are a consequence of the instrument 10-km resolution, and can be easily ensured with the proposed platform class.

VEGA-C launcher is considered as the reference launcher. More specifically the presented configuration is largely compatible with VESPA-C from volume point of view, thus offering the possibility to have a co-passenger to largely limit launch costs. Also, the Sun Synchronous 09:30 LT at Descending Node is a common orbit giving many possibilities of compatibility with other satellites as co-passenger.

A total mass budget of 430 kg has been estimated. The propellant budget was computed with the following assumptions: 1) altitude of 820 km with a reference surface of 10 m², 2) ISP of 210 s (hydrazine), and 3) 7 years lifetime, assumption of worst-case phasing with solar activity.

6. N₂O sources

6.1. Source inversion

N₂O fluxes can be estimated by TD approaches from observations of N₂O mixing ratio assimilated into an atmospheric inversion system (e.g., Huang et al., 2008; Thompson et al., 2014; Bergamaschi et al., 2015; Thompson et al., 2019). Up to now, however, inversions had to rely on sparse ground-based networks owing to the lack of satellite observations with the necessary sensitivity and precision. Our innovative TD approach will use space-borne observations of N₂O vertical profiles over land and ocean, with sensitivity to the lowermost troposphere around 800 hPa, going down to 900 hPa in favorable conditions such as in summer during daytime (see Section 3). We will develop the capacity for global- and regional-scale inverse modelling using satellite N₂O retrievals. We will use existing Chemical Transport Models (CTMs) and their adjoint models. One of the candidate models for the global scale is Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMDz5), which is used for the Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CMS) N₂O inversions and currently has a horizontal resolution of 3.75° × 1.875° (Thompson et al., 2019). We will increase the horizontal resolution to 1° × 1° and incorporate the assimilation of satellite data of N₂O. For the regional scale, candidate models are the Eulerian CTM, CHIMERE (Menut et al., 2013), and the Lagrangian particle dispersion model, FLEXible PARTicle dispersion model (FLEXPART; Pisso et al., 2019) for high resolution (10 × 10 km²) inversions (Fig. 13 left). The models will be driven with meteorological reanalyses from European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF), such as the new ECMWF Reanalyses v5

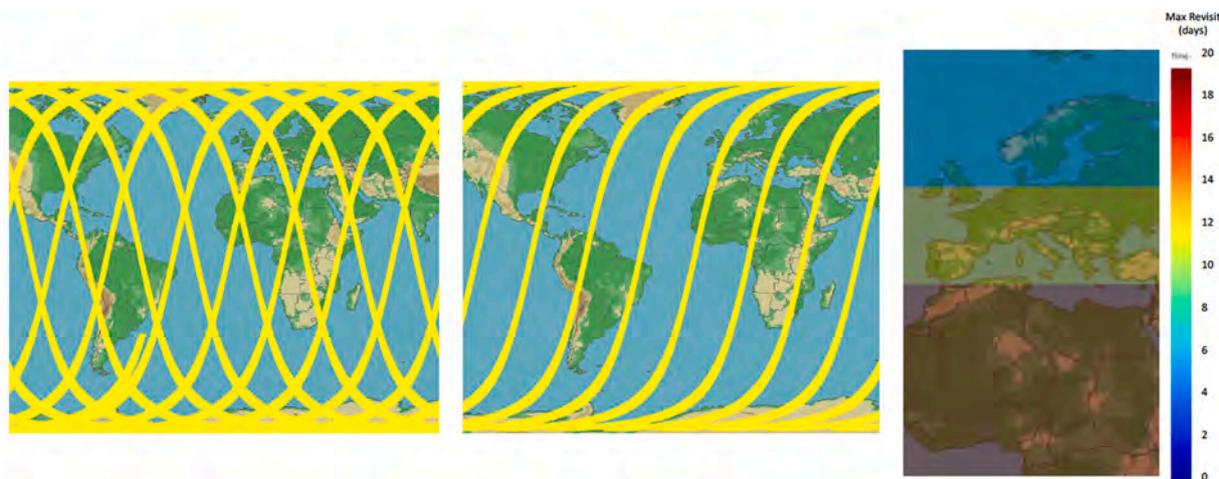


Fig. 11. Mission performance illustration: (left) areas observed over 1 day and considering both ascending and descending orbits visibilities, (center) considering only descending orbits visibilities and (right) maximum revisit delays considering only descending orbits (ascending case would give the same results).

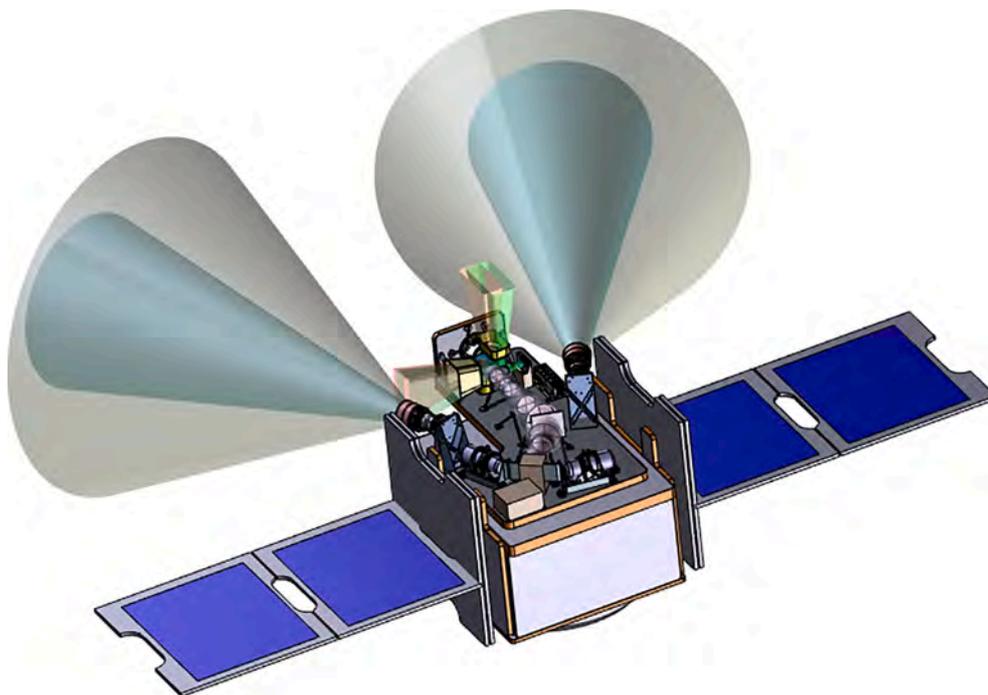


Fig. 12. Imaging spectrometer instrument accommodation on AstroBus platform.

(ERA5) reanalysis available hourly at a 30-km horizontal resolution for global-scale modelling, and the High RESolution (HRES) analysis data available hourly at a 10-km resolution for regional-scale modelling.

For all CTMs, the optimization will be based on Bayesian statistics and will use existing optimization algorithms, such as the Quasi-Newton algorithm, M1QN3. Furthermore, we will make use of the new Community Inversion Framework (CIF), which is an open-source Python toolbox for atmospheric inversions, developed in the framework of the H2020 project VERIFY (Berchet et al., 2020), and we will further contribute to its development, especially in terms of the assimilation of high-resolution satellite data. The CIF is based on the PyVAR system used for N₂O (Thompson et al., 2014; Bergamaschi et al., 2015; Thompson et al., 2019), CO₂ (Chevallier et al., 2010; Broquet et al., 2011; Chevallier et al., 2014; Monteil et al., 2020), CH₄ (Pison et al., 2009; Cressot et al., 2014; Bergamaschi et al., 2015; Pison et al., 2018)

and CO and NO_x (Fortems-Cheiney et al., 2019). The CIF is already interfaced with the CTMs: LMDz5 (global scale), FLEXPART (global and regional scales) and CHIMERE (regional scale). It includes the variational inversion method (among other methods) and can be used to assimilate satellite data, as well as surface measurements. It is currently used for projects dealing with GHGs (H2020 VERIFY (<https://verify.lscce.fr/>) and CHE (<https://che-project.eu/>) projects and the French Agence Nationale de la Recherche (ANR) ARGONAUT project (<https://anr.fr/Project-ANR-19-CE01-0007>)) as well as reactive species (H2020 VERIFY, and the French ANR projects ARGONAUT and POLEASIA (<http://www.lisa.u-pec.fr/projets/?id=1269>)). An advantage of using different CTMs is the possibility to assess the impact of atmospheric transport errors in the posterior fluxes.

We show two examples of N₂O source inversions. Firstly, a technical demonstration of the source inversion system CIF set up to assimilate

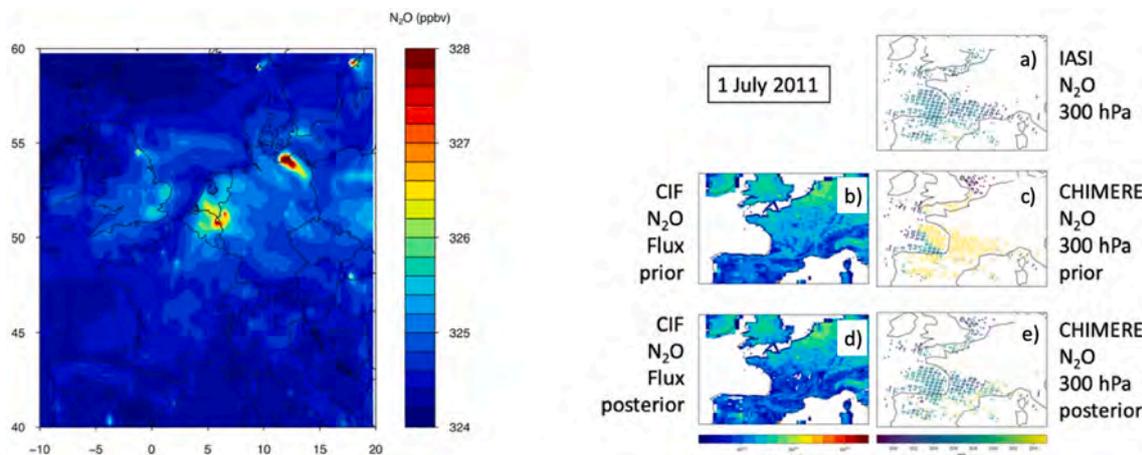


Fig. 13. (Left) Surface N₂O as calculated by FLEXPART in July 2011 over Europe at 25-km resolution. Some of the N₂O hotspots are industrial sources, namely nitric acid plants (e.g. in northeast Germany, Sweden and Norway) and not agricultural sources. (Right) Source inversion system CIF set-up to assimilate IASI TN₂O observations at 300 hPa on 1 July 2011 (a) into CHIMERE in a domain covering France at a 10 × 10 km² horizontal resolution. From the prior N₂O fluxes (b) by EDGAR v5, the prior equivalents of the observations are simulated by CHIMERE (c). After 10 iterations, the posterior fluxes (d) and concentrations at 300 hPa (e) are obtained.

IASI TN₂OR observations at 300 hPa on 1 July 2011 into CHIMERE in a domain covering France at a $10 \times 10 \text{ km}^2$ horizontal resolution is shown Fig. 13 right. From the prior N₂O fluxes (b) by Emissions Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) v5 (Crippa et al., 2019), the prior equivalents of the observations are simulated (c). The source inversion system minimizes the differences between the observations (a) and the simulations (c) by correcting the prior fluxes (b). After 10 iterations, the posterior fluxes (d) and the concentrations at 300 hPa (e) simulated with the posterior fluxes are obtained. The reduction of the differences between the posterior concentrations (e) and the observations (a) shows that the inversion system behaves optimally. Secondly, the PyVAR-CAMS system has assimilated over the period of July 2011: 1) in a first inversion, the NOAA N₂O surface observations, 2) in a second inversion, the IASI TN₂OR N₂O Total Columns over land and daytime, and 3) in a third inversion, the IASI TN₂OR N₂O Total Columns over land and the ocean during daytime and nighttime. The uncertainty reduction in the surface fluxes shows the actual impact of the observations onto the inverted fluxes. The uncertainty reduction is calculated as one minus the ratio of the posterior to prior uncertainty for each grid cell. The posterior uncertainty is calculated using a Monte Carlo ensemble of inversions each with a perturbed prior according to the method of Chevallier (2007). When using NOAA surface data, the uncertainty reduction can reach high values (~50%) over areas where surface observations are available (Northern America, Europe and East Asia) (Fig. 14 top left) but is very weak (<5%) over the tropics, subtropics and southern hemisphere owing to a lack of observations. When using IASI space-borne observations over land and daytime, the uncertainty reduction is on average greater than 10% over land and could reach high values (~25%) over the tropics (South America, Africa, India, South-East Asia) in areas where surface observations are not available (Fig. 14 bottom left).

When using all IASI observations (land/ocean and daytime/nighttime), the uncertainty reduction is on average similar to the uncertainty reduction obtained when assimilating only IASI ocean/daytime observations (Fig. 14 top right) although slightly smaller (~20%) except at high latitudes (Siberia and Canada) and over the ocean where it is greater (25–30%). Note again the lack of observations over these particular regions, which underlines the complementarity of spaceborne and surface observations.

The impact of assimilating either NOAA or IASI observations over land/daytime or over land/ocean/daytime/nighttime on the surface flux in a synthetic data experiment is shown in Fig. 15. Consistent with

uncertainty reduction maps, the N₂O fluxes are mainly modified in the Northern Hemisphere over land, where the NOAA sites are located, when assimilating surface observations while, when using the IASI observations, the N₂O fluxes are also impacted in the tropics and over the Indian sub-continent. There is consistency between IASI- and NOAA-derived N₂O flux adjustments over USA and Siberia and Eastern China only when considering IASI daytime data. The negative adjustment in N₂O flux observed in NOAA data over Eastern Canada is not present in the IASI data, and the positive adjustment in NOAA-derived N₂O flux observed in NOAA data over Europe is not so high in the IASI data. The real impact of space-borne observations on the derived surface flux compared to surface observations is over South America, Equatorial Africa, the Indian sub-continent and South-East Asia and Australia. The “true” pattern of flux differences (labelled as “Reference”) shows basically the same distribution as the ones calculated with IASI and NOAA data but with amplitudes significantly larger by a factor 2–3 on average.

6.2. Modelling

The seasonal variability of modelled surface N₂O demonstrates how limited our knowledge is about the processes affecting tropospheric N₂O, which represents the combined effects of surface fluxes as well as atmospheric transport and chemistry. The same N₂O inventories were used in three state-of-the-art CTMs (LMDz5, FLEXPART and Model for Interdisciplinary Research on Climate – version 4 (MIROC-4, Patra et al., 2018)) to examine the impact of modelled transport on tropospheric N₂O variability for the year 2011 (Fig. 16). Especially at high latitudes, the models have difficulties in capturing the phase and amplitude of the observed seasonality (Fig. 16 left). The annual mean meridional gradient in surface N₂O with respect to the South Pole station (Fig. 16 right) is underestimated by the models (~1.25 ppbv in the models and ~1.75 ppbv in NOAA data from the South Pole to 30°N) suggesting an underestimate of the tropical and northern hemisphere sources in the inventory.

In Fig. 17, global-scale distributions of N₂O horizontal variability taken from IASI TN₂OR V1.7 (Chalinel et al., 2021) in July 2011 also reveal higher values (+3%) at 300 hPa over the tropics (with local maximum over Africa) than at high latitudes (–3%). This variability is reduced in the PyVAR-CAMS inversion products with tropical maxima of +1% (no local maximum over Africa) and minima of –1% at high latitudes.

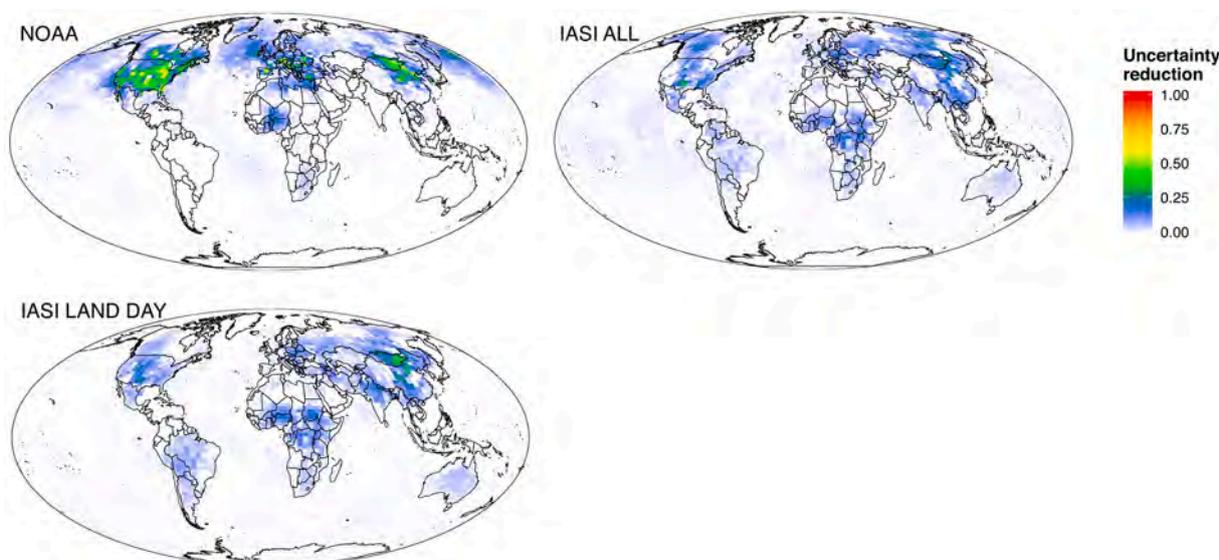


Fig. 14. Uncertainty reduction (0–1) in the N₂O surface flux obtained in PyVAR-CAMS when assimilating (top left) NOAA N₂O surface observations, (bottom left) IASI TN₂OR N₂O Total Columns over land during daytime, (top right) IASI TN₂OR N₂O Total Columns over land and the ocean during daytime and nighttime in July 2011.

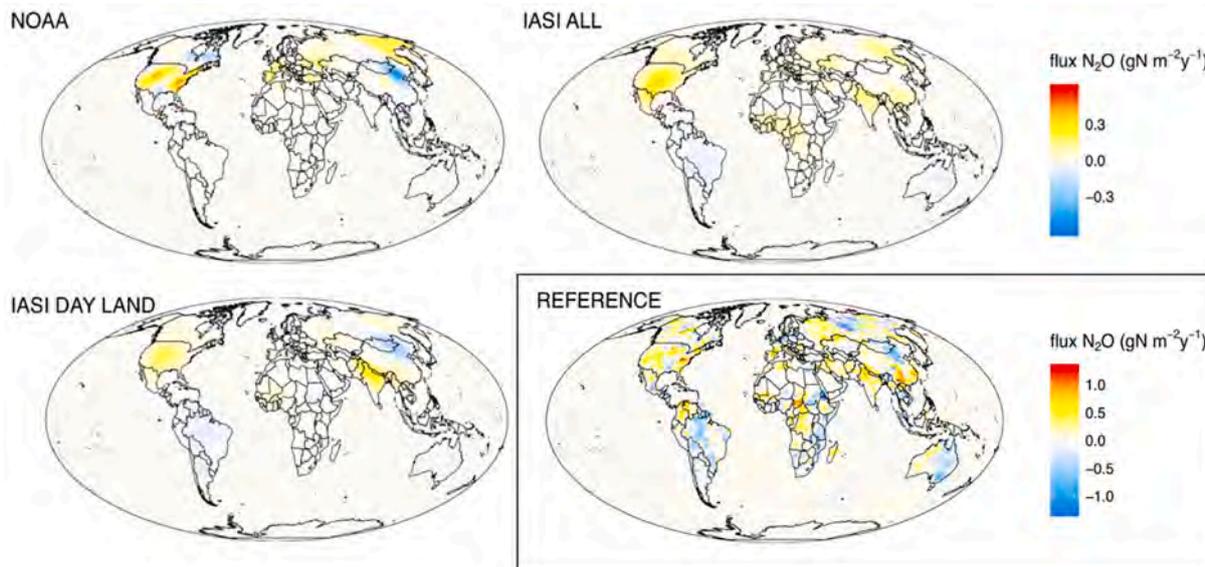


Fig. 15. Impact on the N₂O surface flux obtained by PyVAR-CAMS in a synthetic data experiment when assimilating (top left) NOAA N₂O surface observations, (bottom left) IASI TN₂OR N₂O Total Columns over land and daytime, (top right) IASI TN₂OR N₂O Total Columns over land, ocean, daytime and nighttime in July 2011. The “true” pattern of flux differences (labelled as “Reference”) is presented in the bottom right panel with a colour table different from the 3 other panels.

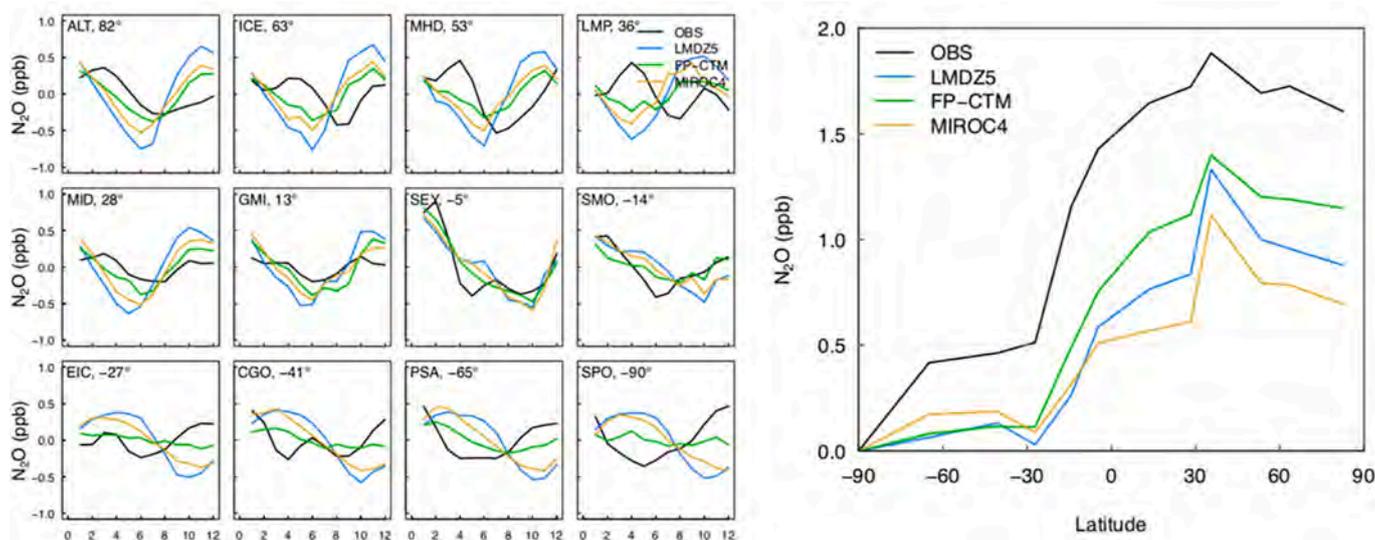


Fig. 16. (Left) Seasonal cycle of N₂O measured at the surface of 12 stations in 2011 (black) and calculated by LMDz (blue), FLEXPART (green) and MIROC-4 (orange) from the northern to the southern high latitudes. (Right) Observed and calculated annual mean meridional gradient in surface N₂O with respect to the South Pole station. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

A process-based model will be used to calculate local to regional N₂O fluxes from agroecosystems on a daily basis. The STICS soil-crop model (Brisson et al., 1998; Bergez et al., 2014) describes and integrates biophysical-chemical processes related to the functioning of the agricultural cropping systems which accounts for agricultural management practices. The majority of process-based models that can predict N₂O emissions (e.g., STICS; DeNitrification-DeComposition (DNDC), Giltrap et al., 2010; Daily Century (DayCent), Del Grosso et al., 2005) have daily outputs. Being one dimensional, they need to run on actual or conceptual homogeneous sub-units in term of soil, crop and management practices. Insofar that spatial databases of soil properties, crop identification and associated management practices are available, they can provide explicit regional N₂O emission predictions in response to climatic conditions. STICS crop model has a built-in capability of reinitializing missing spatial information such as seeding dates, seeding

density and soil moisture at field capacity using leaf area index derived from satellite observations such as Landsat or Sentinel-2 (e.g., Jégo et al., 2012, 2015). Therefore, it can be run for large agricultural regions using relevant soil, crop, and climate databases.

6.3. Validation

The validation of space-borne atmospheric N₂O is a difficult process since there is a lack of N₂O observations in the troposphere, the vast majority of atmospheric N₂O measurements being at the surface (ground-based sites) and in the stratosphere (satellites). Nevertheless, aircraft campaigns (e.g., HIAPER Pole-to-Pole Observations (HIPPO); National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) and Atmospheric Tomography Mission (ATOM), National Aeronautics and Space Administration (NASA)), ground-based networks using Fourier-

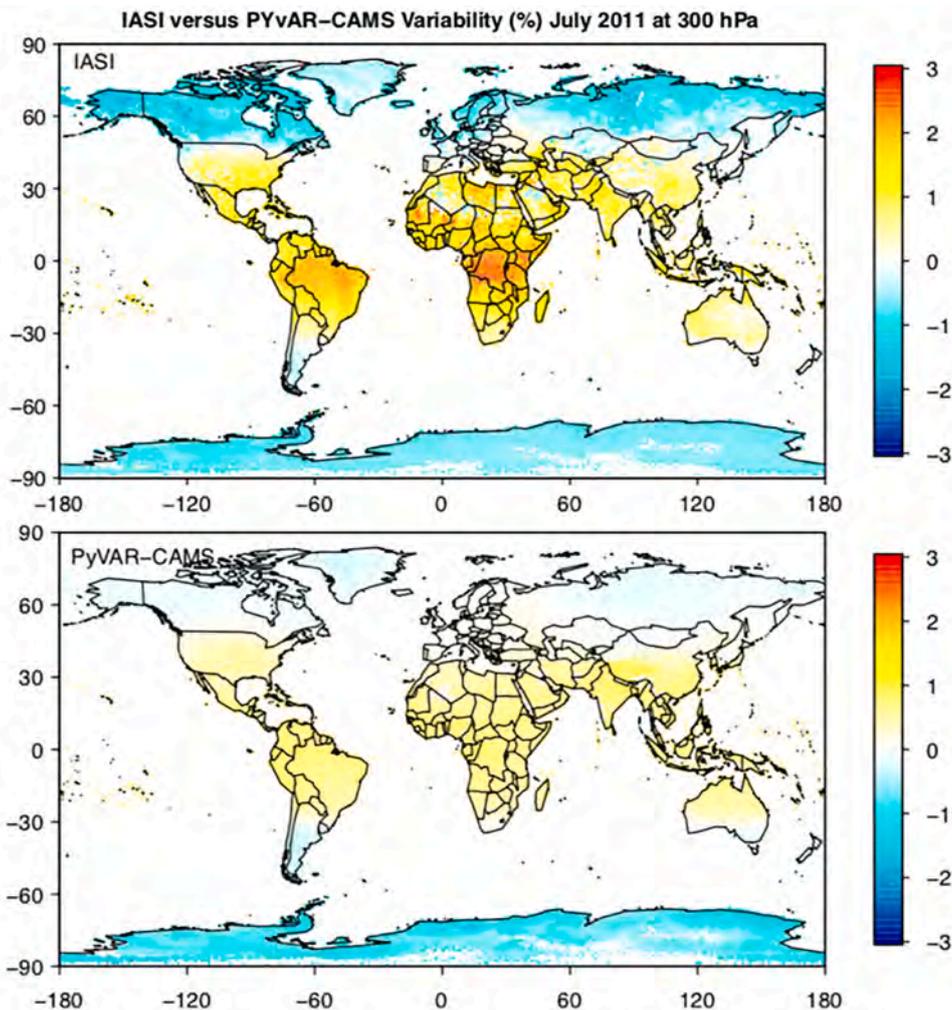


Fig. 17. Horizontal distribution of the monthly-averaged variability of N₂O at 300 hPa from IASI TN₂OR V1.7 (Chalinel et al., 2021) within 1° × 1° pixels (top) and in PyVAR-CAMS model (bottom) in July 2011.

transform infrared spectroscopy (FTIR) detectors (e.g., Network for the Detection of Atmospheric Composition Change, NDACC; Total Carbon Column Observing Network, TCCON), and space-borne observations (e.g., GOSAT-2, IASI-NG) will help assessing the quality of MIN₂OS observations. As an example, retrievals of IASI TN₂OR N₂O at 300 hPa have been compared with HIPPO and NOAA airborne observations (Chalinel et al., 2021). On average, IASI N₂O behaved consistently with HIPPO and NOAA data (correlations of 0.65–0.68), a bias of 1.52–1.87 ppbv but a higher variability (by a factor 2) is found in IASI data compared to HIPPO and NOAA data.

Surface N₂O fluxes and vertical N₂O profiles obtained within the MIN₂OS project will be validated against in situ surface measurements obtained within the Integrated Carbon Observation System (ICOS)-Atmosphere and ICOS-Ecosystem networks, the Network for the Detection of Atmospheric Composition Change (NDACC), the AirCore innovative atmospheric sampling system, together with coincident space-borne observations (e.g., IASI-NG on MetOp-SG). Dedicated campaigns in Germany and Italy could be organized through the Modelling European Agriculture with Climate Change for Food Security (MACSUR) initiative.

7. Conclusions

The MIN₂OS project aims at monitoring nitrous oxide (N₂O) sources on the global scale at a spatial resolution of 1° × 1° and on the regional scale at a high spatial resolution (10 × 10 km²) by inverting surface

fluxes from N₂O space-borne measurements sensitive to the lowermost atmospheric layers under favorable conditions. The emission inventories of N₂O provided by MIN₂OS will contribute to quantifying the Earth's radiative forcing on the global scale and on a weekly to monthly basis depending on the application (e.g., agriculture, national inventories, policy, scientific research). Our novel approach is based on the development of: 1) a space-borne instrument operating in the TIR domain inherited from a more sensitive version of the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) and the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer-New Generation (IASI-NG) instruments, providing N₂O mixing ratio, in clear sky conditions, in the lowermost atmosphere (900 hPa) under favorable conditions (summer daytime) over land and under favorable and unfavorable (winter nighttime) conditions over the ocean and 2) an inversion source model to estimate, from atmospheric satellite observations, N₂O surface fluxes.

To fulfill the MIN₂OS objectives, a new TIR instrument will be developed. Our study shows that two bands can be used to optimally retrieve N₂O in the lowermost troposphere at 8 (spectral band B1) and 4 μm (spectral band B2) with 4 highly-sensitive detectors (signal-to-noise at least better by a factor 5 than the one of IASI-NG). Our scientific requirements can be reached whatever the detector and the band used. The MIN₂OS baseline instrument will finally be centered on the N₂O spectral band B1 at 1250–1330 cm⁻¹, with a resolution of 0.125 cm⁻¹, a Full Width at Half Maximum of 0.25 cm⁻¹ and a swath of 300 km. It will be on-board a platform at ~830 km altitude crossing the Equator in

descending node at 09:30 local time in synergy with 2 other platforms expected to fly in 2031–32: 1) in time and space coincident with Metop-SG that will contain IASI-NG to use surface properties and vertical profiles of atmospheric constituents and temperature to optimally constrain the retrieval of N₂O vertical profiles and 2) with Sentinel-2 NG to use agricultural surface information on the field scale (crop types, area, management practices) with no need of synchronization. The lifetime of the MIN₂OS project could be 4–5 years to study the inter-annual variability of N₂O surface fluxes. In this configuration, the spectral noise can be decreased by at least a factor 5 compared to the lowest noise accessible to date with the IASI-NG and the Greenhouse gases Observing SATellite-2 (GOSAT-2) missions. The horizontal resolution is expected to be 1° × 1° on the global scale and 10 × 10 km² on the regional scale, consistent with the resolution of state-of-the-art regional transport and source inversion models. With the MIN₂OS project, N₂O will be obtainable from three separate atmospheric layers: in the lowermost troposphere around 900 hPa (specific to MIN₂OS), in the middle troposphere around 600 hPa (like IASI-NG and GOSAT-2) and in the upper troposphere around 300 hPa (like IASI, IASI-NG and GOSAT-2). The N₂O total random error is expected to be less than ~1% (~3 ppbv) along the vertical, reaching 0.2–0.6% at 900 hPa in favorable conditions.

The main instrument is an imaging spectrometer operating at 8 μm and composed of an entrance telescope, a slit and a spectrometer made of a collimator, a diffraction grating, an imager and a detection module. It provides a swath of 300 km and a resolution of 10 × 10 km². The instrument dimensioning is largely driven by the requirement to have a signal-to-noise that is at least better than a factor 5 compared to the one of IASI-NG. The preliminary design of the MIN₂OS project results in a small instrument (payload of 90 kg, volume of 1200 × 600 × 300 mm³) with, in addition to the spectrometer, a wide field and 1-km resolution imager desirable for cloud detection. It results in a possible accommodation of the instrument(s) on a small platform, the whole satellite being largely compatible with a dual launch on VEGA-C. The main trade-offs on spectrometer design are at the level of detector technology (preliminary baseline is a TELEDYNE GEOSNAP 2048 × 1024 matrix), reflective or refractive optical design (preference for refractive design), optical material, slit, active or passive cooling, selection of grating technology.

The source inversion system will be based on the Community Inversion Framework, using CTMs that include photochemical loss of N₂O in the stratosphere. Globally, we aim at a global horizontal resolution of 1° × 1° for the source inversion, which will be a significant improvement of the current state-of-the-art of ~3° × 2°. In addition, we will use regional CTMs for source inversions with a high target resolution of 10 × 10 km². Maps of N₂O flux analyses will be provided at a weekly to monthly time resolution for several years, and will be used to estimate national and regional scale emissions. With accurate emission estimates from the TD approach together with land-biosphere models to estimate the natural sources, we aim at reducing the uncertainties of the anthropogenic emissions on the national scale. Local N₂O fluxes from agricultural fields will also be predicted using the 1-D process-based crop model (STICS), developed for a large range of crops and cropping systems and adapted in various agricultural regions of the world (Europe, Canada, Asia, Africa). Vertical profiles of N₂O will be validated against measurements from international networks as well as dedicated intensive field campaigns.

The MIN₂OS project will produce the expertise needed for producing high spatiotemporal resolution N₂O fluxes, which will be delivered to the user community (research scientists, agricultural policy makers, and other stakeholders) and will help verify the implementation and impact of policies and support international initiatives such as the IPCC and the Paris Agreement. We expect that the N₂O flux estimates from MIN₂OS will facilitate management strategies, e.g., by optimizing agricultural management practices to minimize N₂O emissions, and mitigate emissions of this important GHG. The MIN₂OS project was submitted to the

European Space Agency (ESA) Earth Explorer 11 (EE11) mission ideas.

Funding and acknowledgements

The TN₂OR project is funded by the Région Occitanie, the University of Toulouse, the Institut National des Sciences de l'Univers (INSU)/Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS), Météo-France, the Centre National d'Etudes Spatiales (CNES), Airbus Defense and Space, and Sciences et technologies pour l'Aéronautique et l'Espace (STAE) foundation. RC's PhD has been funded by Région Occitanie and Airbus Defense and Space. We would like to thank the three anonymous reviewers for their beneficial comments.

Declaration of Competing Interest

The authors declare no conflict of interest.

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.rse.2021.112688>.

References

- Alves, B.J., Smith, K.A., Flores, R.A., Cardoso, A.S., Oliveira, W.R., Jantalia, C.P., Urquiaga, S., Boddey, R.M., 2012. Selection of the most suitable sampling time for static chambers for the estimation of daily mean N₂O flux from soils. *Soil Biol. Biochem.* 46, 129–135. <https://doi.org/10.1016/j.soilbio.2011.11.022>.
- Bakker, D.C., Bange, H.W., Gruber, N., Johannessen, T., Upstill-Goddard, R.C., Borges, A.V., Delille, B., Löscher, C.R., Naqvi, S.W.A., Omar, A.M., Santana-Casiano, J.M., 2014. Air-sea interactions of natural long-lived greenhouse gases (CO₂, N₂O, CH₄) in a changing climate. In: Liss, P.S., Johnson, M.T. (Eds.), *Ocean-Atmosphere Interactions of Gases and Particles*, pp. 113–169.
- Berchet, A., Sollum, E., Thompson, R.L., Pison, I., Thanwerdas, J., Broquet, G., Chevallier, F., Aalto, T., Bergamaschi, P., Brunner, D., Engelen, R., Fortems-Cheiney, A., Gerbig, C., Groot Zwaafink, C., Haussaire, J.-M., Henne, S., Houweling, S., Karstens, U., Kutsch, W.L., Lujikx, I.T., Monteil, G., Palmer, P.I., van Peet, J.C.A., Peters, W., Peylin, P., Potier, E., Rödenbeck, C., Saunois, M., Scholze, M., Tsuruta, A., Zhao, Y., 2020. The Community Inversion Framework v1.0: a unified system for atmospheric inversion studies. *Geosci. Model Dev. Discuss.* <https://doi.org/10.5194/gmd-2020-407> in review.
- Bergamaschi, P., Corazza, M., Karstens, U., Athanassiadou, M., Thompson, R.L., Pison, I., Manning, A.J., Bousquet, P., Segers, A., Vermeulen, A.T., Janssens-Maenhout, G., Schmidt, M., Ramonet, M., Meinhardt, F., Aalto, T., Hatzpra, L., Moncrieff, J., Popa, M.E., Lowry, D., Steinbacher, M., Jordan, A., O'Doherty, S., Piacentini, S., Dlugokencky, E., 2015. Top-down estimates of European CH₄ and N₂O emissions based on four different inverse models. *Atmos. Chem. Phys.* 15, 715–736. <https://doi.org/10.5194/acp-15-715-2015>.
- Bergez, J.E., Raynal, H., Launay, M., Beaudoin, N., Casellas, E., Caubel, J., Chabrier, P., Coucheny, E., Dury, J., Garcia de Cortazar-Atauri, I., Justes, E., Mary, B., Ripoche, D., Ruget, F., 2014. Evolution of the STICS crop model to tackle new environmental issues: new formalisms and integration in the modelling and simulation platform RECORD. *Environ. Model. Softw.* 62, 370–384.
- Brisson, N., Mary, B., Ripoche, D., Jeuffroy, M.H., Ruget, F., Nicoullaud, B., Gate, P., Devienne-Barret, F., Antonioletti, R., Dürr, C., Richard, G., Beaudoin, N., Recous, S., Tayot, X., Plenet, D., Cellier, P., Mached, J.M., Meynard, J.-M., Delécolle, R., 1998. STICS: a generic model for the simulation of crops and their water and nitrogen balances. I. Theory and parameterization applied to wheat and corn. *Agronomie* 18 (5–6), 311–346.
- Broquet, G., Chevallier, F., Rayner, P., Aulagnier, C., Pison, I., Ramonet, M., Schmidt, M., Vermeulen, A.T., Ciais, P., 2011. A European summertime CO₂ biogenic flux inversion at mesoscale from continuous in situ mixing ratio measurements. *J. Geophys. Res.* Atmos. 116, D23303 <https://doi.org/10.1029/2011JD016202>.
- Chalinel, R., Attié, J.-L., Ricaud, P., Vidot, J., Kangah, Y., Hauglustaine, D., Thompson, R.L., 2021. Global-scale observation and evaluation of nitrous oxide from IASI on MetOp-A. Submitted to *Remote Sens. Environ. Special Issue: Remote Sensing of Greenhouse Gas Emissions*, under review.
- Charteris, A.F., Chadwick, D.R., Thorman, R.E., Vallejo, A., de Klein, C.A., Rochette, P., Cárdenas, L.M., 2020. Global research alliance N₂O chamber methodology guidelines: recommendations for deployment and accounting for sources of variability. *J. Environ. Qual.* 49 (5), 1092–1109. <https://doi.org/10.1002/jeq2.20126>.
- Chevallier, F., 2007. Impact of correlated observation errors on inverted CO₂ surface fluxes from OCO measurements. *Geophys. Res. Lett.* 34, 24. <https://doi.org/10.1029/2007GL030463>.
- Chevallier, F., Feng, L., Bösch, H., Palmer, P.I., Rayner, P.J., 2010. On the impact of transport model errors for the estimation of CO₂ surface fluxes from GOSAT observations. *Geophys. Res. Lett.* 37, L21803 <https://doi.org/10.1029/2010GL044652>.

- Chevallier, F., Palmer, P.I., Feng, L., Boesch, H., O'Dell, C.W., Bousquet, P., 2014. Toward robust and consistent regional CO₂ flux estimates from in situ and spaceborne measurements of atmospheric CO₂. *Geophys. Res. Lett.* 41, 1065–1070. <https://doi.org/10.1002/2013GL058772>.
- Clarisse, L., Coheur, P.F., Prata, F., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Clerbaux, C., 2013. A unified approach to infrared aerosol remote sensing and type specification. *Atmos. Chem. Phys.* 13 (4), 2195–2221.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., Coheur, P.-F., 2009. Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 6041–6054. <https://doi.org/10.5194/acp-9-6041-2009>.
- Cressot, C., Chevallier, F., Bousquet, P., Crevoisier, C., Dlugokencky, E.J., Fortems-Cheiney, A., Frankenberg, C., Parker, R., Pison, I., Scheepmaker, R.A., Montzka, S.A., Krummel, P.B., Steele, L.P., Langenfelds, R.L., 2014. On the consistency between global and regional methane emissions inferred from SCIAMACHY, TANSO-FTS, IASI and surface measurements. *Atmos. Chem. Phys.* 14, 577–592. <https://doi.org/10.5194/acp-14-577-2014>.
- Crevoisier, C., Clerbaux, C., Guidard, V., Phulpin, T., Armante, R., Barret, B., Camy-Peyret, C., Chaboureaud, J.-P., Coheur, P.-F., Crépeau, L., Dufour, G., Labonnote, L., Lavanant, L., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Jacquinet-Husson, N., Payan, S., Péquignot, E., Pierangelo, C., Sellitto, P., Stubenrauch, C., 2014. Towards IASI-New Generation (IASI-NG): impact of improved spectral resolution and radiometric noise on the retrieval of thermodynamic, chemistry and climate variables. *Atmos. Meas. Tech.* 7, 4367–4385. <https://doi.org/10.5194/amt-7-4367-2014>.
- Crippa, M., Guizzardi, D., Muntean, M., Schaaf, E., Lo Vullo, E., Solazzo, E., Monforti-Ferrario, F., Olivier, J., Vignati, E., 2019. EDGAR v5.0 Greenhouse Gas Emissions. European Commission, Joint Research Centre (JRC) [Dataset] PID. <http://data.europa.eu/89h/488dc3de-f072-4810-ab83-47185158ce2a>.
- Cuesta, J., Eremenko, M., Flamant, C., Dufour, G., Laurent, B., Bergametti, G., Höpfner, M., Orphal, J., Zhou, D., 2015. Three-dimensional distribution of a major desert dust outbreak over East Asia in March 2008 derived from IASI satellite observations. *J. Geophys. Res.* 120 (14), 7099–7127.
- Davidson, E.A., Kanter, D., 2014. Inventories and scenarios of nitrous oxide emissions. *Environ. Res. Lett.* 9, 105012.
- De Klein, C., Novoa, R.S.A., Ogle, S., Smith, K.A., Rochette, P., Wirth, T.C., McConkey, B. G., Mosier, A., Rypdal, K., Walsh, M., Williams, S.A., 2006. N₂O emissions from managed soils, and CO₂ emissions from lime and urea application. In: IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories, Prepared by the National Greenhouse Gas Inventories Programme, pp. 1–54.
- Del Grosso, S.J., Mosier, A.R., Parton, W.J., Ojima, D.S., 2005. DAYCENT model analysis of past and contemporary soil N₂O and net greenhouse gas flux for major crops in the USA. *Soil Tillage Res.* 83, 9–24.
- Desjardins, R.L., Pattey, E., Smith, W.N., Worth, D., Grant, B., Srinivasan, R., MacPherson, J.I., Mauder, M., 2010. Multiscale estimates of N₂O emissions from agricultural lands. *Agric. Forest Meteorol.* 150, 817–824.
- Ehrhardt, F., Soussana, J.F., Bellocchi, G., Grace, P., McAuliffe, R., Recous, S., Sándor, R., Smith, P., Snow, V., de Antoni Migliorati, M., Basso, B., Bhatia, A., Brilli, L., Doltra, J., Dorich, C.D., Doro, L., Fitton, N., Giacomini, S.J., Grant, B., Harrison, M. T., Jones, S.K., Kirschbaum, M.U.F., Klumpp, K., Laville, P., Léonard, J., Liebig, M., Lieffering, M., Martin, R., Massad, R.S., Meier, E., Merbold, L., Moore, A.D., Myrjotis, V., Newton, P., Pattey, E., Rolinski, S., Sharp, J., Smith, W.N., Wu, L., Zhang, Q., 2017. Assessing uncertainties in crop and pasture ensemble model simulations of productivity and N₂O emissions. *Glob. Change Bio.* 1–14. <https://doi.org/10.1111/gcb.13965>.
- Fortems-Cheiney, A., Pison, I., Dufour, G., Broquet, G., Berchet, A., Potier, E., Coman, A., Siour, G., Costantino, L., 2019. Variational regional inverse modeling of reactive species emissions with PYVAR-CHIMERE. *Geosci. Model Dev. Discuss.* <https://doi.org/10.5194/gmd-2019-186>.
- Giltrap, D.L., Li, C., Saggarr, S., 2010. DNDC: a process-based model of greenhouse gas fluxes from agricultural soils. *Agric. Ecosyst. Environ.* 136, 292–300.
- Grant, R.F., Pattey, E., 1999. Mathematical modelling of nitrous oxide emissions from an agricultural field during spring thaw. *Glob. Biogeochem. Cycles* 13 (2), 679–694.
- Grant, R.F., Pattey, E., 2003. Modelling variability in N₂O emissions from fertilized agricultural fields. *Soil Biol. Biochem.* 35 (2), 225–243.
- Hocking, J., Rayer, P., Rundel, D., Saunders, R., Matricardi, M., Geer, A., Brunel, P., Vidot, J., 2015. RTTOV v11 Users Guide. NWP SAF.
- Huang, J., Golombek, A., Prinn, R., Weiss, R., Fraser, P., Simmonds, P., Dlugokencky, E. J., Hall, B., Elkins, J., Steele, P., Langenfelds, R., Krummel, P., Dutton, G., Porter, L., 2008. Estimation of regional emissions of nitrous oxide from 1997 to 2005 using multinetwork measurements, a chemical transport model, and an inverse method. *J. Geophys. Res.* 113, D17313 <https://doi.org/10.1029/2007JD009381>.
- IPCC, 2007. Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories. <http://www.ipcc-nggi.piges.or.jp/public/2006gl/>.
- IPCC, 2019. Refinement to the 2006 IPCC Guidelines for National Greenhouse Gas Inventories. <https://www.ipcc.ch/report/2019-refinement-to-the-2006-ipcc-guidelines-for-national-greenhouse-gas-inventories>.
- Jégo, G., Pattey, E., Liu, J., 2012. Using Leaf Area Index, retrieved from optical imagery, in the STICS crop model for predicting yield and biomass of field crops. *Field Crop Res.* 131, 63–74.
- Jégo, G., Pattey, E., Mesbah, S.M., Liu, J., Duchesne, I., 2015. Impact of the spatial resolution of climatic data and soil physical properties on regional corn yield predictions using the STICS crop model. *Int. J. Appl. Earth Obs. Geoinf.* 41, 11–22.
- Kangah, Y., Ricaud, P., Attié, J.L., Saitoh, N., Hauglustaine, D.A., Wang, R., El Amraoui, L., Zbinden, R., Delon, C., 2017. Summertime upper tropospheric nitrous oxide over the Mediterranean as a footprint of Asian emissions. *J. Geophys. Res.* Atmos. 122 <https://doi.org/10.1002/2016JD026119>.
- Kurata, O., Iki, N., Matsunuma, T., Inoue, T., Tsujimura, T., Furutani, H., Kobayashi, H., Hayakawa, A., 2017. Performances and emission characteristics of NH₃-air and NH₃/CH₄-air combustion gas-turbine power generations. *Proceed. Combust. Inst.* 36, 3351–3359. <https://doi.org/10.1016/j.proci.2016.07.088>.
- Levenberg, K., 1944. A method for the solution of certain nonlinear problems in least squares. *Q. Appl. Math.* 2, 164.
- Loveless, M., Borbas, E.E., Knuteson, R., Cawse-Nicholson, K., Hulley, G., Hook, S., 2021. Climatology of the combined ASTER MODIS emissivity over land (CAMEL) version 2. *Remote Sens.* 13, 111. <https://doi.org/10.3390/rs13010111>.
- Marquardt, D.W., 1963. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *SIAM J. Appl. Math.* 11, 431.
- Matricardi, M., 2009. 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>.
- Matricardi, M., López-Puertas, M., Funke, B., 2018. Modeling of nonlocal thermodynamic equilibrium effects in the classical and principal component-based version of the RTTOV fast radiative transfer model. *J. Geophys. Res.* Atmos. 123 (11), 5741–5761.
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J.-L., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., Vivanco, M.G., 2013. CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling. *Geosci. Model Dev.* 6, 981–1028. <https://doi.org/10.5194/gmd-6-981-2013>.
- Metivier, K.A., Pattey, E., Grant, R.F., 2009. Using the Ecosys mathematical model to simulate temporal variability of nitrous oxide emissions from a fertilized agricultural soil. *Soil Biol. Biochem.* 41, 2370–2386.
- Minschwaner, K., Salawitch, R.J., McElroy, M.B., 1993. Absorption of solar radiation by O₂: implications for O₃ and lifetimes of N₂O, CFC₁₃, and CF₂Cl₂. *J. Geophys. Res.* Atmos. 98 (D6), 10543–10561.
- Monteil, G., Broquet, G., Scholze, M., Lang, M., Karstens, U., Gerbig, C., Koch, F.-T., Smith, N.E., Thompson, R.L., Lujikx, I.T., White, E., Meesters, A., Ciais, P., Ganesan, A.L., Manning, A., Mischurrow, M., Peters, W., Peylin, P., Tarniewicz, J., Rigby, M., Rödenbeck, C., Vermeulen, A., Walton, E.M., 2020. The regional European atmospheric transport inversion comparison, EUROCOM: first results on European-wide terrestrial carbon fluxes for the period 2006–2015. *Atmos. Chem. Phys.* 20, 12063–12091. <https://doi.org/10.5194/acp-20-12063-2020>.
- Nevison, C.D., Weiss, R.F., Erickson III, D.J., 1995. Global oceanic emissions of nitrous oxide. *J. Geophys. Res.* 100 (C8), 15809–15820. <https://doi.org/10.1029/95JC00684>.
- Patra, P.K., Takigawa, M., Watanabe, S., Chandra, N., Ishijima, K., Yamashita, Y., 2018. Improved chemical tracer simulation by MIROC4. 0-based atmospheric chemistry-transport model (MIROC4-ACTM). *Sola* 14, 91–96.
- Pattey, E., Edwards, G.C., Desjardins, R.L., Pennock, D.J., Smith, W., Grant, B., MacPherson, J.I., 2007. Tools for quantifying N₂O emissions from agroecosystems. *Agric. Forest Meteorol.* 142, 103–119.
- Pattey, E., Blackburn, L.G., Strachan, I.B., Desjardins, R., Dow, D., 2008. Spring thaw and growing season N₂O emissions from a field planted with edible peas and a cover crop. *Can. J. Soil Sci.* 88, 241–249.
- Peyridieu, S., Chédin, A., Tanré, D., Capelle, V., Pierangelo, C., Lamquin, N., Armante, R., 2010. Saharan dust infrared optical depth and altitude retrieved from AIRS: a focus over North Atlantic – comparison to MODIS and CALIPSO. *Atmos. Chem. Phys.* 10, 1953–1967. <https://doi.org/10.5194/acp-10-1953-2010>.
- Pison, I., Bousquet, P., Chevallier, F., Szopa, S., Hauglustaine, D., 2009. Multi-species inversion of CH₄, CO and H₂ emissions from surface measurements. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 5281–5297. <https://doi.org/10.5194/acp-9-5281-2009>.
- Pison, I., Berchet, A., Saunois, M., Bousquet, P., Broquet, G., Conil, S., Delmotte, M., Ganesan, A., Laurent, O., Martin, D., O'Doherty, S., Ramonet, M., Spain, T.G., Vermeulen, A., Yver Kwok, C., 2018. How a European network may help with estimating methane emissions on the French national scale. *Atmos. Chem. Phys.* 18, 3779–3798. <https://doi.org/10.5194/acp-18-3779-2018>.
- Pisso, I., Sollum, E., Grythe, H., Kristiansen, N.I., Cassiani, M., Eckhardt, S., Arnold, D., Morton, D., Thompson, R.L., Groot Zwaafink, C.D., Evangelio, N., Sodemann, H., Haimberger, L., Henne, S., Brunner, D., Burkhardt, J.F., Fouilloux, A., Brioude, J., Philipp, A., Seibert, P., Stohl, A., 2019. The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 10.4. *Geosci. Model Dev.* 12, 4955–4997. <https://doi.org/10.5194/gmd-12-4955-2019>.
- Prather, M.J., Hsu, J., DeLuca, N.M., Jackman, C.H., Oman, L.D., Douglass, A.R., Fleming, E.L., Strahan, S.E., Steenrod, S.D., Søvde, O.A., Isaksen, I.S.A., Froidevaux, L., Funke, B., 2015. Measuring and modeling the lifetime of Nitrous Oxide including its variability. *J. Geophys. Res.* 120, 5693–5705. <https://doi.org/10.1002/2015JD023267>.
- Ravishankara, A., Daniel, J.S., Portmann, R.W., 2009. Nitrous oxide (N₂O): the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century. *Science* 326, 123–125. <https://doi.org/10.1126/science.1176985>.
- Ricaud, P., Attié, J.-L., Teyssedre, H., Amraoui, L.E., Peuch, V.-H., Matricardi, M., Schlüssel, P., 2009. Equatorial total column of nitrous oxide as measured by IASI on MetOp-A: implications for transport processes. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 3947–3956. <https://doi.org/10.5194/acp-9-3947-2009>.
- Ricaud, P., Sicé, B., El Amraoui, L., Attié, J.-L., Zbinden, R., Huszar, P., Szopa, S., Parmentier, J., Jaidan, N., Michou, M., Abida, R., Carminati, F., Hauglustaine, D., August, T., Warner, J., Imasu, R., Saitoh, N., Peuch, V.-H., 2014. Impact of the Asian monsoon anticyclone on the variability of mid-to-upper tropospheric methane above the Mediterranean Basin. *Atmos. Chem. Phys.* 14, 11427–11446. <https://doi.org/10.5194/acp-14-11427-2014>.

- Rodgers, C.D., 2000. *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, Vol. 2. World Scientific Singapore.
- Saito, R., Patra, P.K., Deutscher, N., Wunch, D., Ishijima, K., Sherlock, V., Blumenstock, T., Dohe, S., Griffith, D., Hase, F., Heikkinen, P., Kyrö, E., Macatangay, R., Mendonca, J., Messerschmidt, J., Morino, I., Notholt, J., Rettinger, M., Strong, K., Sussmann, R., Warneke, T., 2012. Technical Note: latitude-time variations of atmospheric column-average dry air mole fractions of CO₂, CH₄ and N₂O. *Atmos. Chem. Phys.* 12 (7767–7777), 2012. <https://doi.org/10.5194/acp-12-7767-2012>.
- Saunders, R., Matricardi, M., Brunel, P., 1999. A Fast Radiative Transfer Model for Assimilation of Satellite Radiance Observations-RTTOV-5. European Centre for Medium-Range Weather Forecasts.
- Shurpali, N., Rannik, Ü., Jokinen, S., Lind, S., Biasi, C., Mammarella, I., Peltola, O., Pihlatie, M., Hyvönen, N., Rätty, M., Haapanala, S., Zahniser, M., Virkajärvi, P., Vesala, T., Martikainen, P.J., 2016. Neglecting diurnal variations leads to uncertainties in terrestrial nitrous oxide emissions. *Sci. Rep.* 6, 25739. <https://doi.org/10.1038/srep25739>.
- Therond, O., Tichit, M., Tibi, A., Accatino, F., Biju-Duval, L., Bockstaller, C., Bohan, D., Bonaudo, T., Boval, M., Cahuzac, E., Casellas, E., Chauvel, B., Cholier, P., Constantin, J., Cousin, I., Daroussin, J., David, M., Delacote, P., Derocles, S., de Sousa, L., Domingues, J.P., Dross, C., Duru, M., Eugène, M., Fontaine, C., Garcia, B., Geijzendorffer, I.R., Girardin, A., Graux, A.-I., Jouven, M., Langlois, B., Le Bas, C., Le Bissonnais, Y., Lelievre, V., Lifran, R., Maigne, E., Martin, G., Martin, R., Martin-Laurent, F., Martinet, V., Mclaughlin, O., Millet, A., Mignolet, C., Mouchet, M., Nozieres-Petit, M.-O., Ostermann, O.P., Paracchini, M.L., Pellerin, S., Peyraud, J.-L., Petit, S., Picaud, C., Plantureux, S., Poméon, T., Porcher, E., Puech, T., Puillet, L., Rambonilaza, T., Raynal, H., Resmond, R., Ripoché, D., Ruget, F., Rulleau, B., Rush, A., Salles, J.-M., Sauvant, D., Schott, C., Tardieu, L., 2017. Volet écosystèmes agricoles de l'Évaluation Française des Écosystèmes et des Services Écosystémiques. Rapport d'étude. INRA, France. <https://doi.org/10.15454/prmv-wc85>, 966.
- Thompson, R.L., Chevallier, F., Crotwell, A.M., Dutton, G., Langenfelds, R.L., Prinn, R.G., Weiss, R.F., Tohjima, Y., Nakazawa, T., Krummel, P.B., Steele, L.P., Fraser, P., O'Doherty, S., Ishijima, K., Aoki, S., 2014. Nitrous oxide emissions 1999 to 2009 from a global atmospheric inversion. *Atmos. Chem. Phys.* 14, 1801–1817.
- Thompson, R.L., Lassaletta, L., Patra, P.K., Wilson, C., Wells, K.C., Gressent, A., Koffi, E. N., Chipperfield, M.P., Winiwarter, W., Davidson, E.A., Tian, H., Canadell, J.G., 2019. Acceleration of global N₂O emissions seen from two decades of atmospheric inversion. *Nat. Clim. Chang.* 9 (12), 993–998.
- Tian, H., Chen, G., Lu, C., Xu, X., Ren, W., Zhang, B., Banger, K., Tao, B., Pan, S., Liu, M., Zhang, C., Bruhwiler, L., Wofsy, S., 2015. Global methane and nitrous oxide emissions from terrestrial ecosystems due to multiple environmental changes. *Ecosyst. Health Sustain.* 1 (1), 1–20.
- Tian, H., Xu, R., Canadell, J.G., Thompson, R.L., Winiwarter, W., Suntharalingam, P., Davidson, E.A., Ciais, P., Jackson, R.B., Janssens-Maenhout, G., Prather, M.J., Regnier, P., Pan, N., Pan, S., Peters, G.P., Shi, H., Tubiello, F.N., Zaehle, S., Zhou, F., Arneeth, A., Battaglia, G., Berthet, S., Bopp, L., Bouwman, A.F., Buitenhuis, E.T., Chang, J., Chipperfield, M.P., Dangal, S.R.S., Dlugokencky, E., Elkins, J.W., Eyre, B. D., Fu, B., Hall, B., Ito, A., Joos, F., Krummel, P.B., Landolfi, A., Laruelle, G.G., Lauerwald, R., Li, W., Lienert, S., Maavara, T., MacLeod, M., Millet, D.B., Olin, S., Patra, P.K., Prinn, R.G., Raymond, P.A., Ruiz, D.J., van der Werf, G.R., Vuichard, N., Wang, J., Weiss, R.F., Wells, K.C., Wilson, C., Yang, J., Yao, Y., 2020. A comprehensive quantification of global nitrous oxide sources and sinks. *Nature* 586 (7828), 248–256.
- Wagner-Riddle, C., Congreves, K.A., Abalos, D., Berg, A.A., Brown, S.E., Ambadan, J.T., Gao, X., Tenuta, M., 2017. Globally important nitrous oxide emissions from croplands induced by freeze-thaw cycles. *Nat. Geosci.* 10, 279–283. <https://doi.org/10.1038/ngeo2907>.
- Wells, K.C., Millet, D.B., Bousserre, N., Henze, D.K., Griffis, T.J., Chaliyakunnel, S., Dlugokencky, E.J., Saikawa, E., Xiang, G., Prinn, R.G., O'Doherty, S., Young, D., Weiss, R.F., Dutton, G.S., Elkins, J.W., Krummel, P.B., Langenfelds, R., Steele, L.P., 2018. Top-down constraints on global N₂O emissions at optimal resolution: application of a new dimension reduction technique. *Atmos. Chem. Phys.* 18, 735–756. <https://doi.org/10.5194/acp-18-735-2018>.
- Werner, C., Butterbach-Bahl, K., Haas, E., Hickler, T., Kiese, R., 2007. A global inventory of N₂O emissions from tropical rainforest soils using a detailed biogeochemical model. *Glob. Biogeochem. Cycles* 21. <https://doi.org/10.1029/2006gb002909>.
- Xiong, X., Maddy, E.S., Barnett, C., Gambacorta, A., Patra, P.K., Sun, F., Goldberg, M., 2014. Retrieval of nitrous oxide from Atmospheric Infrared Sounder: characterization and validation. *J. Geophys. Res. Atmos.* 119, 9107–9122. <https://doi.org/10.1002/2013JD021406>.

Conclusion générale et perspectives

Le N₂O reste à ce jour le troisième gaz à effet de serre derrière le CO₂ et le CH₄. Malgré cela, il existe peu d'observations de N₂O à l'échelle globale, comparées à celles du CO₂ et du CH₄. Les raisons sont multiples. Le manque de mesures in-situ de N₂O, surtout au-dessus des terres mais aussi sa très faible variabilité dans l'atmosphère, due en partie à son temps de vie très long (120 ans), rendent les restitutions de N₂O difficiles à paramétrer de manière optimale, notamment au niveau du sol. Les instruments spatiaux actuels, tels que IASI, GOSAT ou encore AIRS, mesurant le rayonnement électromagnétique dans l'infrarouge thermique, permettent toutefois d'avoir une bonne sensibilité du signal au N₂O dans la moyenne et haute troposphère, entre 100 et 500 hPa, avec un maximum de sensibilité autour de 300 hPa.

Cette thèse a permis d'optimiser les restitutions de N₂O à l'échelle globale avec IASI, initiées au préalable par Kangah (2017). Le système d'inversion de données TN₂OR développé au cours de cette thèse, utilisant la méthode d'estimation optimale de Levenberg-Marquardt couplée au code de transfert radiatif rapide RTTOV, a été paramétré afin de cibler en premier lieu les produits N₂O issus des observations spatiales de IASI, dans la bande infrarouge thermique 1240-1350 cm⁻¹. Deux versions de TN₂OR ont été développées. Avec la version 2.0 de TN₂OR, ces inversions de N₂O sont produites avec une erreur aléatoire sur l'a priori de 0.8%. En plus du N₂O sont inversés simultanément les paramètres de température, de température de surface, d'émissivité de surface, de vapeur d'eau et de CH₄ avec une erreur sur l'a priori respectivement de 0.5 K, 1.5 K, 15%, 10% et 1%. Plusieurs études ont été menées sur les restitutions de N₂O issues des observations IASI sur l'ensemble de l'année 2011 ainsi que sur celles coïncidant avec les mesures aéroportées de N₂O des campagnes HIPPO 1-5 (2009-2011) et NOAA (2011).

Les résultats de ces restitutions de N₂O en coïncidence avec les mesures des données

avions montrent une corrélation de 0.77 à 300 hPa et 0.74 à 500 hPa, avec un biais entre les restitutions et les mesures avions de respectivement +1.01 et +0.59 ppbv. Elles montrent de plus une évolution latitudinale et temporelle similaire à ces mêmes mesures. Latitudinalement, les biais sont positifs au-delà de $\pm 40^\circ$ et augmentent à mesure que l'on se rapproche des latitudes extrêmes. Temporellement, ces biais sont proches de 0 ppbv entre mai et octobre 2011 et sont compris entre 1 et 2 ppbv le reste de l'année 2011. Les études de comparaison entre les restitutions de N_2O et les données des spectromètres FTIR de N_2O des 9 stations NDACC présentes dans Chalinel et al. (2022) indiquent des corrélations supérieures à 0.7 dans les moyennes latitudes, dans l'hémisphère nord et des biais positifs dûs en partie aux différences obtenues entre les biais de l'a priori de N_2O de IASI de TN₂OR v2.0, provenant pour rappel des données aéroportées des campagnes HIPPO 1-5 (2009-2011) et ceux des FTIRs de NDACC provenant de MIPAS (2001). Les biais entre les observations de N_2O de IASI et celles du NDACC rejoignent également l'analyse des résultats des comparaisons obtenues avec les données aéroportées, c'est-à-dire des biais positifs qui augmentent à mesure qu'on s'éloigne des tropiques (~ 0.5 - 1.5 ppbv) et des biais inter-tropicaux négatifs (entre -0.8 et -0.4 ppbv). Ensuite, individuellement, l'erreur aléatoire de chaque restitution de N_2O est en moyenne de 0.6% (~ 2 ppbv). À l'échelle globale, pour des moyennes journalières de N_2O comprises dans des mailles $1^\circ \times 1^\circ$, l'erreur aléatoire peut même diminuer jusqu'à 0.1% (~ 0.4 ppbv). De plus, sur l'ensemble de l'année 2011, toutes saisons confondues, les distributions de N_2O de IASI à 300 hPa montrent des maxima de N_2O , au-delà de 330 ppbv, principalement dans les régions intertropicales, en Afrique centrale et en Amérique du sud (Amazonie) principalement, régions denses en végétations et fortement émettrices en N_2O . Puis selon les saisons, des maxima locaux apparaissent. Durant la période JJA 2011, ils sont présents au niveau de l'océan atlantique équatorial, dans la région nord du Mexique/sud-est des États-Unis. On retrouve également des maxima durant la période décembre-janvier-février (DJF) 2011 au-dessus de l'Australie. Enfin, à 300 hPa et 500 hPa, les moyennes mensuelles globales de N_2O avec IASI TN₂OR v2.0, LMDz et MIROC4-ACTM ont été effectuées. Elles montrent, avec IASI, la présence d'un cycle saisonnier de N_2O avec des maxima durant l'hiver boréal et un minimum pendant l'été boréal. Les évolutions temporelles ne montrent pas de cycle marqué pour les modèles, mais une augmentation entre avril et octobre 2011, puis une brutale diminution entre octobre et décembre. En plus, une analyse des distributions à l'échelle globale des corrélations entre les données mensuelles des restitutions de N_2O de IASI et des données mensuelles de N_2O des modèles MIROC-4 ACTM et LMDz a été menée. Elle montre des corrélations

Conclusion

supérieures à 0.7 entre 15° et 45°N, sur toutes les longitudes, avec une zone corrélée plus large (~10-50°N) pour LMDz que pour MIROC-4 ACTM. Des corrélations plus faibles que les précédentes (≥ 0.5) sont également observées autour de 30°S, sur une très faible bande latitudinale pour LMDz, cette bande étant légèrement supérieure avec MIROC-4 ACTM. Les corrélations sont également plus élevées (~0.7), notamment autour de l'Amérique du sud.

Cette thèse a permis également d'effectuer une étude détaillée sur la sensibilité au N₂O d'un potentiel futur instrument focalisé la mesure de N₂O et l'inversion de ses sources : MIN₂OS. Des études de sensibilité ont été produites à partir des bandes B1_{N₂O} (1240-1350 cm⁻¹), B2_{N₂O} (2150-2260 cm⁻¹) et B3_{N₂O} (2400-2600 cm⁻¹) avec la version 1.7 de TN₂OR. Elles ont montré que, malgré une augmentation du rapport signal sur bruit d'un facteur 5 par rapport à celui de IASI-NG, la bande B3_{N₂O} ne répond toujours pas aux attentes fixées pour MIN₂OS, principalement en raison du bruit spectral trop élevé. Pour B1_{N₂O} et B2_{N₂O} des études supplémentaires ont été réalisées en utilisant des capteurs potentiels pour MIN₂OS, répondant aux attentes fixées sur le rapport signal sur bruit, à savoir TELEDYNE/GEOSNAP (B1_{N₂O} et B2_{N₂O}), LYNRED/SCORPIO (B1_{N₂O}) et LYNRED/DAPNHIS (B1_{N₂O}). Toutes conditions de mesure confondues (favorables et défavorables) GEOSNAP B1_{N₂O} présente les meilleures sensibilités et les erreurs aléatoires sur les inversions de N₂O les plus faibles à 300 hPa (respectivement $\simeq 0.35$ et 0.3%). En moyenne, il est également plus sensible que le reste des capteurs à 600 hPa (AVK $\simeq 0.35$) et 900 hPa ($0.2 < AVK < 0.4$), de même pour les erreurs (respectivement $\simeq 0.3\%$ et 0.5%). Le DOF moyen est de 3.01, c'est-à-dire près de 3 fois plus que ce qu'il est possible de produire avec IASI. Enfin plusieurs modèles tels que PyVAR-CAMS (Thompson et al., 2019), CHIMERE (Menut et al., 2013), LMDz, FLEXPART (Pisso et al., 2019) ainsi que MIROC-4 (Patra et al., 2018) permettraient l'inversion des sources de N₂O issues des inversions de MIN₂OS.

Les perspectives issues de ce travail de thèse sont multiples. L'ensemble des travaux effectués au cours de cette thèse permettront l'exploration de plusieurs sujets d'étude avec l'outil TN₂OR v2.0 ou une version ultérieure de celui-ci. Le premier d'entre eux serait de produire, sur une décennie, une restitution de N₂O avec IASI/Metop-A sur la majorité des stations NDACC. Ce but serait à la fois de valider ces restitutions sur une échelle de temps plus longue, mais aussi d'étudier, avec IASI, les tendances décennales du N₂O. Le deuxième point serait d'assimiler les produits N₂O de l'année 2011 afin de remonter à ces sources. CHIMERE devrait pour cela être le modèle utilisé. Le troisième sujet serait de

procéder, d'une manière analogue à la méthode employée avec IASI, à des restitutions de N_2O à l'échelle globale avec GOSAT-2 ou IASI-NG. Avec GOSAT-2, déjà en vol, il faut désormais attendre que les produits de niveau LIC soient opérationnels, notamment dans les bandes d'absorption du N_2O . Ces instruments permettraient d'augmenter la sensibilité verticale au N_2O que l'on possède actuellement avec IASI, notamment grâce à leur bruit spectral inférieur à IASI ainsi qu'une résolution spectrale plus fine qu'avec ce dernier. On obtiendrait, par conséquent, une meilleure sensibilité de ces instruments au N_2O dans la moyenne et basse troposphère. Le quatrième sujet serait également de procéder, toujours avec IASI, à des études à l'échelle globale sur des périodes plus récentes (2019 ou 2020 par exemple). On pourrait évaluer ces données en utilisant les mesures FTIR du NDACC ainsi que les mesures des campagnes NOAA récentes. Finalement, il existe plusieurs axes d'amélioration concernant TN_2OR . Le plus pertinent d'entre eux serait d'utiliser un profil a priori dynamique de N_2O provenant de données assimilées telles que CAMS ou LMDz et variant latitudinalement en fonction la hauteur de la tropopause. En effet, bien que IASI parvienne à avoir une certaine sensibilité au N_2O selon la hauteur de la tropopause, l'objectif de ce changement de version de TN_2OR serait d'améliorer cette sensibilité, afin que les concentrations de N_2O dans l'UTLS soient davantage en adéquation avec ce qui est observé par les modèles, en particulier au niveau de l'équateur. Le but de cette démarche serait également, si possible, d'améliorer les résultats obtenus dans l'hémisphère sud, notamment en terme de cohérence avec les mesures in-situ et les données FTIR, par rapport à ceux qui sont observés actuellement dans l'hémisphère nord, à 300 et 500 hPa.

Bibliographie

- B. Barret, Y. Gouzenes, E. Le Flochmoen, and S. Ferrant. Retrieval of Metop-A/IASI N₂O profiles and validation with NDACC FTIR data. *Atmosphere*, 12(2) :219, 2021.
- D. R. Bates and P. Hays. Atmospheric nitrous oxide. *Planetary and Space Science*, 15(1) : 189–197, 1967.
- D. Blumstein, G. Chalon, T. Carlier, C. Buil, P. Hébert, T. Maciaszek, G. Ponce, T. Phulpin, B. Tournier, D. Simeoni, P. Astruc, and A. Clauss. Iasi instrument : Technical overview and measured performances. *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering*, 5543, 11 2004. doi : 10.1117/12.560907.
- W. J. Borucki and W. L. Chameides. Lightning : Estimates of the rates of energy dissipation and nitrogen fixation. *Reviews of Geophysics*, 22(4) :363–372, 1984.
- R. Brouquisse and A. Puppò. Des plantes qui vivent de l’air du temps. *Encyclopédie de l’air du temps*, [en ligne ISSN 2555-0950], 2021. URL <https://www.encyclopedie-environnement.org/vivant/plantes-air-du-temps/>.
- K. Butterbach-Bahl, E. M. Baggs, M. Dannenmann, R. Kiese, and S. Zechmeister-Boltenstern. Nitrous oxide emissions from soils : how well do we understand the processes and their controls? *Philosophical Transactions of the Royal Society B : Biological Sciences*, 368(1621) :20130122, 2013.
- R. Chalinel, J.-L. Attié, P. Ricaud, J. Vidot, Y. Kangah, D. Hauglustaine, and R. Thompson. Evaluation and Global-Scale Observation of Nitrous Oxide from IASI on Metop-A. *Remote Sensing*, 14(6), 2022. ISSN 2072-4292. doi : 10.3390/rs14061403. URL <https://www.mdpi.com/2072-4292/14/6/1403>.

- F. Chevallier, S. D. Michele, and A. McNally. Diverse profile datasets from the ecmwf 91-level short-range forecasts. (10) :14, 12 2006. URL <https://www.ecmwf.int/node/8685>.
- P. Ciais, C. Sabine, G. Bala, L. Bopp, V. Brovkin, J. Canadell, A. Chhabra, R. DeFries, J. Galloway, M. 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.
- C. Clerbaux, A. Boynard, L. Clarisse, M. George, J. Hadji-Lazaro, H. Herbin, D. Hurtmans, M. Pommier, A. Razavi, S. Turquety, et al. Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared iasi/metop sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(16) : 6041–6054, 2009.
- P. J. Crutzen. The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 96(408) :320–325, 1970.
- M. De Mazière, A. M. Thompson, M. J. Kurylo, J. D. Wild, G. Bernhard, T. Blumenstock, G. O. Braathen, J. W. Hannigan, J.-C. Lambert, T. Leblanc, T. J. McGee, G. Nedoluha, I. Petropavlovskikh, G. Seckmeyer, P. C. Simon, W. Steinbrecht, and S. E. Strahan. The network for the detection of atmospheric composition change (ndacc) : history, status and perspectives. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(7) :4935–4964, 2018. doi : 10.5194/acp-18-4935-2018. URL <https://acp.copernicus.org/articles/18/4935/2018/>.
- E. Dlugokencky. NOAA/GML, 2022. URL gml.noaa.gov/ccgg/trends_n2o/.
- EUMETSAT. RTTOV Platforms Supported | NWP SAF, 2020. URL <https://nwp-saf.eumetsat.int/site/software/rttov/documentation/platforms-supported/>. Consulté le 17 août 2021.
- EUMETSAT, IASI. Level 1 : Product Guide. Technical report, EUM/OPS-EPS/MAN/04/0032, 2019.
- European Environment Agency, 2014. Annual European Union greenhouse gas inventory 1990-2012 and inventory report 2014. Technical report. URL <https://www.eea.europa.eu/publications/european-union-greenhouse-gas-inventory-2014>.

Bibliographie

- O. E. García, M. Schneider, B. Ertl, E. Sepúlveda, C. Borger, C. Diekmann, A. Wiegele, F. Hase, S. Barthlott, T. Blumenstock, U. Raffalski, A. Gómez-Peláez, M. Steinbacher, L. Ries, and A. M. de Frutos. The MUSICA IASI CH₄ and N₂O products and their comparison to HIPPO, GAW and NDACC FTIR references. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(7) :4171–4215, 2018. doi : 10.5194/amt-11-4171-2018. URL <https://amt.copernicus.org/articles/11/4171/2018/>.
- D. Hauglustaine, F. Hourdin, L. Jourdain, M.-A. Filiberti, S. Walters, J.-F. Lamarque, and E. Holland. Interactive chemistry in the laboratoire de météorologie dynamique general circulation model : Description and background tropospheric chemistry evaluation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D4), 2004.
- A. Hayhurst and A. Lawrence. Emissions of nitrous oxide from combustion sources. *Progress in energy and combustion science*, 18(6) :529–552, 1992.
- J. Heil, H. Vereecken, and N. Brüggemann. A review of chemical reactions of nitrification intermediates and their role in nitrogen cycling and nitrogen trace gas formation in soil. *European journal of soil Science*, 67(1) :23–39, 2016.
- J. Holton. STRATOSPHERE/TROPOSPHERE EXCHANGE & STRUCTURE | Global Aspects. In G. R. North, J. Pyle, and F. Zhang, editors, *Encyclopedia of Atmospheric Sciences (Second Edition)*, pages 257–261. Academic Press, Oxford, second edition edition, 2015. ISBN 978-0-12-382225-3. doi : <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-382225-3.00394-7>. URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780123822253003947>.
- A. Inness, M. Ades, A. Agustí-Panareda, J. Barré, A. Benedictow, A.-M. Blechschmidt, J. J. Dominguez, R. Engelen, H. Eskes, J. Flemming, V. Huijnen, L. Jones, Z. Kipling, S. Massart, M. Parrington, V.-H. Peuch, M. Razinger, S. Remy, M. Schulz, and M. Suttie. The cams reanalysis of atmospheric composition. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(6) :3515–3556, 2019. doi : 10.5194/acp-19-3515-2019. URL <https://acp.copernicus.org/articles/19/3515/2019/>.
- S. Jevrejeva, A. Grinsted, and J. C. Moore. Anthropogenic forcing dominates sea level rise since 1850. *Geophysical Research Letters*, 36(20), 2009.
- B. Ji, K. Yang, L. Zhu, Y. Jiang, H. Wang, J. Zhou, and H. Zhang. Aerobic denitrifica-

- tion : a review of important advances of the last 30 years. *Biotechnology and bioprocess engineering*, 20(4) :643–651, 2015.
- G. Jones and P. Stott. Sensitivity of the attribution of near surface temperature warming to the choice of observational dataset. *Geophysical Research Letters*, 38(21), 2011.
- K. G. Y. Kangah. *Mesure du protoxyde d’azote (N₂O) depuis l’espace*. PhD thesis, Université Paul Sabatier-Toulouse III, 2017.
- Y. Kangah, P. Ricaud, J.-L. Attié, N. Saitoh, D. A. Hauglustaine, R. Wang, L. El Amraoui, R. Zbinden, and C. 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.
- M. Konda, N. Imasato, K. Nishi, and T. Toda. Measurement of the sea surface emissivity. *Journal of Oceanography*, 50(1) :17–30, 1994.
- J. C. Kramlich and W. P. Linak. Nitrous oxide behavior in the atmosphere, and in combustion and industrial systems. *Progress in Energy and Combustion Science*, 20(2) : 149–202, 1994. ISSN 0360-1285. doi : [https://doi.org/10.1016/0360-1285\(94\)90009-4](https://doi.org/10.1016/0360-1285(94)90009-4). URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0360128594900094>.
- K. Levenberg. A method for the solution of certain non-linear problems in least squares. *Quarterly of applied mathematics*, 2(2) :164–168, 1944.
- F. Lipschultz, O. Zafriou, S. Wofsy, M. McElroy, F. Valois, and S. Watson. Production of NO and N₂O by soil nitrifying bacteria. *Nature*, 294(5842) :641–643, 1981.
- MACC-II Consortium. MACC Reanalysis of Global Atmospheric Composition (2003-2012). Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS), 2011. Consulté le 31 août 2021.
- D. W. Marquardt. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *Journal of the society for Industrial and Applied Mathematics*, 11(2) :431–441, 1963.
- B. Marzeion, A. Jarosch, and M. Hofer. Past and future sea-level change from the surface mass balance of glaciers. *The Cryosphere*, 6(6) :1295–1322, 2012.
- S. Massart, A. Agusti-Panareda, I. Aben, A. Butz, F. Chevallier, C. Crevoisier, R. Engelen, C. Frankenberg, and O. Hasekamp. Assimilation of atmospheric methane products into

Bibliographie

- the macc-ii system : from sciamachy to tanso and iasi. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(12) :6139–6158, 2014.
- M. Matricardi. *The generation of RTTOV regression coefficients for IASI and AIRS using a new profile training set and a new line-by-line database*. ECMWF Reading, 2008.
- L. McMillin, L. Crone, and T. Kleespies. Atmospheric transmittance of an absorbing gas. 5. improvements to the optran approach. *Applied optics*, 34(36) :8396–8399, 1995.
- M. Meinshausen, S. J. Smith, K. Calvin, J. S. Daniel, M. L. Kainuma, J.-F. Lamarque, K. Matsumoto, S. A. Montzka, S. C. Raper, K. Riahi, et al. The RCP greenhouse gas concentrations and their extensions from 1765 to 2300. *Climatic change*, 109(1) :213–241, 2011.
- L. Menut, B. Bessagnet, D. Khvorostyanov, M. Beekmann, N. Blond, A. Colette, I. Coll, G. Curci, G. Foret, A. Hodzic, S. Mailler, F. Meleux, J.-L. Monge, I. Pison, G. Siour, S. Turquety, M. Valari, R. Vautard, and M. G. Vivanco. CHIMERE 2013 : a model for regional atmospheric composition modelling. *Geoscientific Model Development*, 6(4) : 981–1028, 2013. doi : 10.5194/gmd-6-981-2013. URL <https://gmd.copernicus.org/articles/6/981/2013/>.
- N. Nakicenovic, J. Alcamo, G. Davis, B. d. Vries, J. Fenhann, S. Gaffin, K. Gregory, A. Grubler, T. Y. Jung, T. Kram, et al. Special report on emissions scenarios. 2000.
- T. L. Nguyen, A. Ravishankara, and J. F. Stanton. Analysis of the potential atmospheric impact of the reaction of N₂O with OH. *Chemical Physics Letters*, 708 :100–105, 2018.
- Organisation des Nations unies, Convention-cadre sur les changements climatiques, 2014. Données présentées dans les inventaires de gaz à effet de serre pour la période 1990-2012. URL <https://www.eea.europa.eu/publications/european-union-greenhouse-gas-inventory-2014>.
- R. Oswald, T. Behrendt, M. Ermel, D. Wu, H. Su, Y. Cheng, C. Breuninger, A. Moravek, E. Mougín, C. Delon, et al. Hono emissions from soil bacteria as a major source of atmospheric reactive nitrogen. *Science*, 341(6151) :1233–1235, 2013.
- P. K. Patra, M. Takigawa, S. Watanabe, N. Chandra, K. Ishijima, and Y. Yamashita. Improved chemical tracer simulation by miroc4.0-based atmospheric chemistry-transport model (miroc4-actm). *SOLA*, 14 :91–96, 2018. doi : 10.2151/sola.2018-016.

- I. Pisso, E. Sollum, H. Grythe, N. I. Kristiansen, M. Cassiani, S. Eckhardt, D. Arnold, D. Morton, R. L. Thompson, C. D. Groot Zwaaftink, N. Evangeliou, H. Sodemann, L. Haimberger, S. Henne, D. Brunner, J. F. Burkhart, A. Fouilloux, J. Brioude, A. Philipp, P. Seibert, and A. Stohl. The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 10.4. *Geoscientific Model Development*, 12(12) :4955–4997, 2019. doi : 10.5194/gmd-12-4955-2019. URL <https://gmd.copernicus.org/articles/12/4955/2019/>.
- N. Pougatchev, T. August, X. Calbet, T. Hultberg, O. Oduleye, P. Schlüssel, B. Stiller, K. S. Germain, and G. Bingham. Iasi temperature and water vapor retrievals—error assessment and validation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(17) :6453–6458, 2009.
- J. Priestley. Experiments and observations on different kinds of air, vol. 1 London, UK : W. Bowyer and J. Nichols, 1774.
- A. Ravishankara, J. S. Daniel, and R. W. Portmann. Nitrous oxide (N₂O) : the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century. *science*, 326(5949) :123–125, 2009.
- J. Remedios, R. Leigh, A. Waterfall, D. Moore, H. Sembhi, I. Parkes, J. Greenhough, M. Chipperfield, and D. Hauglustaine. Mipas reference atmospheres and comparisons to v4. 61/v4. 62 mipas level 2 geophysical data sets. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 7(4) :9973–10017, 2007.
- P. Ricaud, J.-L. Attié, H. Teyssède, L. E. Amraoui, V.-H. Peuch, M. Matricardi, and P. Schlüssel. 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.
- P. Ricaud, J.-L. Attié, R. Chalinel, F. Pasternak, J. Léonard, I. Pison, E. Pattey, R. L. Thompson, Z. Zelinger, J. Lelieveld, J. Sciare, N. Saitoh, J. Warner, A. Fortems-Cheiney, H. Reynal, J. Vidot, L. Brooker, L. Berdeu, O. Saint-Pé, P. K. Patra, M. Dostál, J. Suchánek, V. Nevrlý, and C. G. Zwaaftink. The Monitoring Nitrous Oxide Sources (MIN₂OS) satellite project. *Remote Sensing of Environment*, 266 : 112688, 2021. ISSN 0034-4257. doi : <https://doi.org/10.1016/j.rse.2021.112688>. URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0034425721004089>.
- G. P. Robertson and P. Groffman. Nitrogen transformations. In *Soil microbiology, ecology and biochemistry*, pages 341–364. Elsevier, 2007.

Bibliographie

- C. D. Rodgers. *Inverse methods for atmospheric sounding : theory and practice*, volume 2. World scientific, 2000.
- R. Rodhe. Clear-Sky Atmospheric Transmission, 2019. URL <https://twitter.com/rarohde/status/1196762005136392192>.
- R. Saunders, M. Matricardi, and P. Brunel. An improved fast radiative transfer model for assimilation of satellite radiance observations. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 125(556) :1407–1425, 1999.
- R. Saunders, J. Hocking, D. Rundle, P. Rayer, S. Havemann, M. Matricardi, A. Geer, C. Lupu, P. Brunel, and J. Vidot. *RTTOV-12 : Science and Validation Report*. Met. Office, ECMWF, Météo-France, 2017. URL https://nwp-saf.eumetsat.int/site/download/documentation/rtm/docs_rttov12/rttov12_svr.pdf.
- R. Saunders, J. Hocking, E. Turner, P. Rayer, D. Rundle, P. Brunel, J. Vidot, P. Roquet, M. Matricardi, A. Geer, et al. An update on the RTTOV fast radiative transfer model (currently at version 12). *Geoscientific Model Development*, 11(7) :2717–2737, 2018.
- P. Schlüssel, T. H. Hultberg, P. L. Phillips, T. August, and X. Calbet. The operational IASI Level 2 processor. *Advances in space research*, 36(5) :982–988, 2005.
- S. W. Seemann, E. E. Borbas, R. O. Knuteson, G. R. Stephenson, and H.-L. Huang. 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(1) :108–123, 2008.
- V. Sherlock and R. Saunders. Isem-6 : Infrared surface emissivity model for rttov-6. *NWP-SAF report*, 1999.
- U. Skiba. Denitrification. In S. E. Jørgensen and B. D. Fath, editors, *Encyclopedia of Ecology*, pages 866–871. Academic Press, Oxford, 2008. ISBN 978-0-08-045405-4. doi : <https://doi.org/10.1016/B978-008045405-4.00264-0>. URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780080454054002640>.
- T. Stocker. *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.

- C. Sweeney, A. Karion, S. Wolter, T. Newberger, D. Guenther, J. A. Higgs, A. E. Andrews, P. M. Lang, D. Neff, E. Dlugokencky, et al. Seasonal climatology of CO₂ across North America from aircraft measurements in the NOAA/ESRL Global Greenhouse Gas Reference Network. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 120(10) :5155–5190, 2015.
- A. Syakila, C. Kroeze, and C. P. Slomp. Neglecting sinks for N₂O at the earth’s surface : does it matter ? *Journal of Integrative Environmental Sciences*, 7(S1) :79–87, 2010.
- R. L. Thompson, L. Lassaletta, P. K. Patra, C. Wilson, K. C. Wells, A. Gressent, E. N. Koffi, M. P. Chipperfield, W. Winiwarter, E. A. Davidson, et al. Acceleration of global N₂O emissions seen from two decades of atmospheric inversion. *Nature Climate Change*, 9(12) :993–998, 2019.
- H. Tian, R. Xu, J. G. Canadell, R. L. Thompson, W. Winiwarter, P. Suntharalingam, E. A. Davidson, P. Ciais, R. B. Jackson, G. Janssens-Maenhout, et al. A comprehensive quantification of global nitrous oxide sources and sinks. *Nature*, 586(7828) :248–256, 2020.
- D. Tilman, C. Balzer, J. Hill, and B. L. Befort. Global food demand and the sustainable intensification of agriculture. *Proceedings of the national academy of sciences*, 108(50) : 20260–20264, 2011.
- S. Turquety, J. Hadji-Lazaro, C. Clerbaux, D. Hauglustaine, S. 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.
- D. P. Van Vuuren, J. Edmonds, M. Kainuma, K. Riahi, A. Thomson, K. Hibbard, G. C. Hurtt, T. Kram, V. Krey, J.-F. Lamarque, et al. The representative concentration pathways : an overview. *Climatic change*, 109(1) :5–31, 2011.
- S. W. Watson, F. W. Valois, and J. B. Waterbury. The family nitrobacteraceae. In *The prokaryotes*. Springer, 1981.
- M. Wild, D. Folini, C. Schär, N. Loeb, E. G. Dutton, and G. König-Langlo. The global energy balance from a surface perspective. *Climate dynamics*, 40(11-12) :3107–3134, 2013.

Bibliographie

- S. Wofsy, S. Afshar, H. Allen, E. Apel, E. Asher, B. Barletta, J. Bent, H. Bian, B. Biggs, D. Blake, et al. ATom : Merged atmospheric chemistry, trace gases, and aerosols. *ORNL DAAC*, 2018.
- S. 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 A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 369(1943) :2073–2086, 2011.
- D. Wunch, G. C. Toon, V. Sherlock, N. M. Deutscher, C. Liu, D. G. Feist, and P. O. Wennberg. Documentation for the 2014 tcon data release. 2015. doi : 10.14291/TCCON.GGG2014.DOCUMENTATION.R0/1221662. URL <https://data.caltech.edu/records/249>.
- WWF, 2018. Living Planet Report - 2018 : Aiming Higher. Grooten, M. and Almond, R.E.A.(Eds). Technical report, WWF, Gland, Switzerland.
- X. Xiong, E. S. Maddy, C. Barnet, A. Gambacorta, P. K. Patra, F. Sun, and M. Goldberg. Retrieval of nitrous oxide from Atmospheric Infrared Sounder : Characterization and validation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119(14) :9107–9122, 2014.