

UPE

Proposition de sujet de thèse pour la rentrée 2018 – ED SIE N° 531

Merci de tout renseigner ce qui est demandé

Date limite de candidature : 31 mai 2018

Directeur de thèse (impérativement HDR) : Pascale CHELIN (MCF HDR, UPEC)

Contact : Pascale CHELIN, pascale.chelin@lisa.u-pec.fr, Tel. 0145176556

Co encadrement : Juan CUESTA (MCF HDR, UPEC)

Modalités d'encadrement, de suivi de la formation et d'avancement des recherches du doctorant :

Le candidat(e) sera accueilli(e) dans l'équipe SPECAT (Spectroscopie-Atmosphères), qui se compose de 12 personnes, dont 9 chercheurs/enseignants-chercheurs permanents (7 HDR), 2 étudiants en thèse, 1 stagiaire au niveau postdoctoral, avec l'appui de 3 ingénieurs du département technique du LISA.

Il (elle) sera encadré(e) par Pascale Chelin (directrice), maître de conférences HDR à l'UPEC, et Juan Cuesta (co-directeur), maître de conférences HDR à l'UPEC. Les deux encadrants sont experts dans la mesure des polluants atmosphériques par des méthodes innovantes de télédétection. Pascale Chelin est responsable scientifique de l'observatoire OASIS qui mesure de manière routinière depuis 2009 les concentrations d'ozone, de monoxyde de carbone et d'acide nitrique en milieu urbain. Les observations infrarouges d'OASIS ont permis la mesure novatrice pour le type d'instrument utilisé de la colonne partielle de l'ozone troposphérique intégrée entre la surface et 8 km d'altitude (qui est sous l'influence du transport régional et continental dans la troposphère libre). Ce point est d'intérêt pour la qualité de l'air en zone urbaine (Créteil) où l'on s'intéresse à la composition des basses couches de l'atmosphère et offre des perspectives intéressantes concernant la complémentarité des mesures au sol et des mesures par satellites. Juan Cuesta, expert en télédétection satellitaire, est lauréat du prix La Recherche 2014 dans la catégorie environnement, pour la publication de travaux de recherche dans le journal « Atmospheric Chemistry and Physics » le 2 octobre 2013. Les principaux résultats de ces recherches constituent trois premières mondiales dans l'observation l'atmosphère: i) la mesure satellitaire de l'ozone dans la très basse troposphère, ii) la restitution de la répartition 3D des panaches de poussières désertiques et iii) le cycle diurne de la répartition verticales des poussières au Sahara.

Le (la) candidat(e) pourra compter sur le soutien technique de deux ingénieurs d'études pour l'acquisition des spectres atmosphériques par télédétection depuis le sol.

Un comité de thèse sera mis en place en concertation avec l'ED SIE pour le suivi d'avancement des recherches du doctorant, avec une réunion par an.

Titre en français : Télédétection infrarouge d'ammoniac et de particules de sulfate d'ammonium depuis le sol et l'espace

Titre en anglais : Ammonia and ammonium sulphate infrared remote sensing from the ground and from space

Mots clés en français (2 minimum et jusqu'à 6) : polluants atmosphériques, qualité de l'air dans les mégacités, spectroscopie infrarouge, télédétection, ammoniac, particules de sulfate d'ammonium

Mots clés en anglais (2 minimum et jusqu'à 6) : tropospheric pollutants, air quality in megacities, infrared spectroscopy, remote-sensing, ammonia, ammonium sulfate

Présentation détaillée du projet doctoral en français :

L'originalité de cette thèse est la mesure et l'analyse de l'évolution diurne à pluriannuelle de la pollution atmosphérique à l'ammoniac (NH_3) et aux particules de sulfate d'ammonium. Ce travail sera effectué à partir des mesures novatrices de ces deux polluants, obtenues pour l'ammoniac à partir des spectres atmosphériques infrarouges collectés de manière routinière depuis 2009 par le spectromètre à transformée de Fourier de l'observatoire OASIS du LISA à Créteil (service d'observations de l'OSU-EFLUVE) et pour les particules de sulfate d'ammonium, à partir des mesures satellitaires de l'instrument IASI donc à l'échelle globale.

L'ammoniac est un polluant atmosphérique très nocif pour la santé, les écosystèmes et l'environnement, mais également précurseur gazeux d'autres polluants majeurs secondaires, comme les particules fines ($\text{PM}_{2.5}$) inorganiques : les particules de sulfates et de nitrates d'ammonium. Cette source de $\text{PM}_{2.5}$ est la responsable principale des épisodes d'ampleur nationale et européenne de pollution en particules qui ont sévi en Ile-de-France et en Europe au mois de mars en 2014, 2015 et 2016. Malgré ce rôle sociétal et scientifique majeur, notre connaissance sur les évolutions spatio-temporelles du NH_3 et notre étude sur son rôle clé dans la formation des $\text{PM}_{2.5}$ demeurent très limitées. Cela est fortement lié au manque crucial d'observations de l'ammoniac et de la spéciation de la composition chimique des particules. Or ils ne sont pas mesurés de manière routinière par les stations sol de surveillance de la qualité de l'air, vu la grande complexité des capteurs in situ capables de les mesurer. Une alternative innovante et très prometteuse pour le quantifier est la télédétection depuis le sol et de l'espace, exploitant ses signatures spectrales sur le rayonnement, comme proposée par la présente thèse. La contribution de ce travail à l'analyse de la qualité de l'air francilienne sera donc très importante, compte tenu du manque flagrant de mesures de NH_3 .

L'ammoniac a été détecté dans les spectres atmosphériques d'OASIS grâce à ses fortes signatures spectrales. Le travail de thèse consistera premièrement à la mise au point de l'algorithme d'inversion et à la restitution des concentrations atmosphériques de NH_3 à partir des spectres mesurés par OASIS en continu (en conditions de ciel clair) durant 9 ans. Ces mesures novatrices et uniques en France de NH_3 seront comparées à d'autres estimations disponibles de leurs concentrations : des mesures in situ en Ile-de-France effectuées lors de campagnes intensives de mesures (comme FRANCIPOL en 2010-2011, et des campagnes dédiées à ce projet de thèse en collaboration avec l'IMT de Douai et le LSCE), des restitutions satellitaires (NH_3 à partir de IASI en collaboration avec le LATMOS et de CrIS en collaboration avec l'Environment and Climate Change de Toronto au Canada) et des sorties du modèle de chimie-transport CHIMERE (développé par l'équipe Modélisation du LISA dans le cadre du projet AmP'Air de l'ADEME pour le NH_3). Dans un second temps, une méthode de restitution d'aérosols développée au LISA à partir des mesures satellitaires IASI sera adaptée pour la caractérisation des particules de sulfate d'ammonium qui pourront aussi être comparées à d'autres estimations disponibles notamment en Ile-de-France (projet Etude de la Pollution Particulaire en Ile-de-France du LEFE-CHAT).

L'analyse de l'ensemble des résultats portera sur l'évolution des concentrations de ces deux polluants aux échelles diurne, saisonnière, pluriannuelle et lors des évènements de pollutions hivernales particulières, en établissant les liens avec les conditions météorologiques et de transport régional, et la chimie atmosphérique. Cette thèse permettra notamment **la première et unique caractérisation de l'évolution diurne et saisonnière des émissions d'ammoniac en Ile-de-France, en fonction des sources majeures telles que l'agriculture, et l'impact du trafic qui est largement sous-estimé actuellement** mais également **l'étude sur son rôle clé dans la formation des particules fines d'ammonium.**

Présentation détaillée du projet doctoral en anglais :

The originality of this PhD is the observation and analysis of the diurnal to multi-year evolution of atmospheric pollution by ammonia (NH_3) and ammonium sulfate. This work will be carried out using innovative measurements of these two pollutants, obtained for ammonia from infrared atmospheric spectra performed by the Fourier transform spectrometer of the OASIS observatory at Créteil (France) since 2009 and for ammonium sulphate particles, from the satellite measurements of the IASI instrument with global coverage.

Ammonia is a very harmful air pollutant for public health, ecosystems and the environment, but also a gaseous precursor of other major secondary pollutants, such as inorganic fine particles ($\text{PM}_{2.5}$): ammonium sulfate and nitrates particles, that are responsible for severe pollution outbreaks over Ile-de-France and Europe, during springtime of 2014, 2015 and 2016. Despite this major societal and scientific interest, our knowledge of its spatio-temporal evolution and our study on its key role in $\text{PM}_{2.5}$ formation remain very limited. This is strongly related to the crucial lack of observations of ammonia and the speciation of the chemical composition of particles. They are not routinely measured by ground-based stations for monitoring air quality, due to the great complexity of the in situ sensors used to measure them. An innovative and very promising alternative for observing ammonia and ammonium particle speciation is remote sensing, which exploits their spectral signatures on atmospheric radiation. This approach is currently used for measurements derived from satellite sensors, but within a precision of 50 % at most. Ground-based remote sensing of these pollutants is also expected to be feasible, using measurements from the OASIS Observatory of the LISA laboratory at Créteil. These measurements will be a new method for ground-based monitoring of these pollutants, while innovatively characterizing their diurnal evolution. The contribution of this PhD to the analysis of air quality will therefore be very important, given the alarming lack of measurements of NH_3 .

Ammonia has been already detected in atmospheric spectra of OASIS due to its strong spectral signatures. First, the PhD will consist in the development of the inversion algorithm and in the retrieval of atmospheric concentrations of NH_3 from the spectra measured routinely by OASIS (in clear sky conditions) during 9 years. These innovative and unique measurements of NH_3 will be compared to other available estimates of their concentrations: in situ measurements in Ile-de-France carried out during measurement campaigns (such as FRANCIPOL in 2010-2011, and dedicated campaigns to this PhD in collaboration with the IMT-Douai and the LSCE), satellite retrievals (NH_3 from IASI in collaboration with LATMOS and from CrIS in collaboration with the Environment and Climate Change of Toronto in Canada) and simulations of the CHIMERE chemistry-transport model (implemented at LISA by the modeling team). Secondly, an aerosol retrieval method developed at LISA using IASI satellite measurements will be adapted for the characterization of ammonium sulphate particles, which can also be compared to other available estimates, for instance in Ile-de-France (EPPI project).

This study will allow **the first and only characterization of the diurnal and seasonal evolution of ammonia emissions in Ile-de-France, according to major sources such as agriculture, and the impact of traffic that is today largely under-estimated, but also the study of its key role in the formation of the fine ammonium aerosols.**

Contexte :

En France, l'ammoniac (NH_3) est une espèce gazeuse émise à plus de 95 % par les activités agricoles [Ringuet et al., 2016] via les déjections et urines du bétail, l'épandage de lisier et l'utilisation de fertilisants synthétiques azotés. D'autres sources existent dont la combustion de biomasse et d'énergies fossiles ainsi que l'activité industrielle. La source liée au trafic automobile a nettement augmenté ces dernières années, en raison de l'utilisation croissante de systèmes de réduction catalytiques (ou non-catalytiques) de NO_x sur les véhicules légers et poids lourds. Ces dispositifs utilisent une injection d'urée ou d'ammoniac et peuvent donner lieu à des émissions de NH_3 [Chang et al., 2016].

En Ile-de-France où on peut souligner l'importance de l'agglomération parisienne (deuxième mégapole en Europe avec plus de 11 millions d'habitants), les émissions d'ammoniac, évaluées à 10980

tonnes pour 2014, sont attribuées à 93 % aux activités agricoles, avec une contribution de l'élevage négligeable [DRIEE, 2017]. La région parisienne comporte 49 % de surfaces agricoles [Moloufoukila et al., 2016], avec une activité particulièrement soutenue dans la moitié Est de son territoire. L'agriculture francilienne est essentiellement orientée vers les grandes cultures en particulier les céréales (avec une dominance du blé tendre) qui occupent 67% des surfaces cultivées et les terrains agricoles se situent essentiellement dans la grande couronne, qualifiée de ceinture agricole (avec 59% en Seine-et-Marne). Le trafic francilien est estimé responsable de 5 % des émissions d'ammoniac de la région, et l'industrie, 2 % [DRIEE, 2017].

Le temps de vie dans l'atmosphère de NH_3 est de l'ordre de quelques heures à quelques jours [Galloway et al., 2003]. D'importants puits en sont la cause : les dépôts sec et humide dominant la vidange atmosphérique de ce composé inorganique. Il existe aussi un puits chimique puisque le NH_3 est aussi un précurseur gazeux d'une partie significative des particules fines ($\text{PM}_{2.5}$: particules de diamètre aérodynamique inférieur $2.5 \mu\text{m}$). Principale molécule alcaline de l'atmosphère, l'ammoniac réagit rapidement avec les acides sulfurique (H_2SO_4) et nitrique (HNO_3) de l'atmosphère pour former des particules de sulfates et nitrates d'ammonium [Behera et al., 2013]. Ces sels d'ammonium peuvent être majoritaires parmi les particules fines, durant les pics de pollution atmosphérique du printemps, périodes d'épandage de fertilisants par l'agriculture.

Surveiller les concentrations atmosphériques de NH_3 et des particules d'ammonium est donc essentiel pour l'amélioration de la qualité de l'air en France, et donc pour les politiques publiques. La maîtrise de ces émissions passe par une meilleure connaissance et quantification des sources de NH_3 , et une meilleure appréhension de leur variabilité spatiale et temporelle, très dépendante de l'ensemble des conditions agropédoclimatiques.

La mesure des concentrations en ammoniac dans l'air ambiant n'est pas soumise à réglementation (au sens des Directives européennes) et reste un vrai challenge pour plusieurs raisons : (i) Fortes dépendances temporelles et spatiales des niveaux de concentrations ambiantes [Allen et al., 1988 ; Sutton et al., 1998] ; (ii) Conversion rapide du NH_3 entre les phases gazeuse, particulaire et liquide [Warneck, 1988] ; (iii) Artéfacts de mesures dus à la réactivité du NH_3 avec les systèmes de prélèvement et de mesure : conversion $\text{NH}_4^+-\text{NH}_3$, pertes aux parois, etc. [Prevot et al., 2017 ; Sutton et al., 2008; Von Bobritzki et al., 2010]. Ceci justifie le fait qu'il n'y ait actuellement que quelques stations de mesure pour lesquelles les mesures de concentration en ammoniac dans l'air ambiant sont réalisées avec une résolution temporelle plus fine que le mois.

Une approche innovante et très prometteuse pour observer l'ammoniac et les particules d'ammonium est la télédétection exploitant leurs signatures spectrales sur le rayonnement infrarouge thermique, car ces méthodes, elles, sont affranchies de ces problèmes d'échantillonnage. Celles employées actuellement depuis l'espace (spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) : sondeur IASI : Infrared Atmospheric Sounding Interferometer embarqué sur le satellite MetOp [Clarisse et al., 2009] ; TES : Tropospheric Emission Spectrometer embarqué sur le satellite Aura [Shephard et al., 2015] ; CrIS : Cross-track Infrared Sounder embarqué sur le satellite Suomi [Dammers et al., 2017], spectroscopie à réseau : AIRS : Atmospheric Infrared Sounder embarqué sur le satellite Aqua [Warner et al., 2016]) mesurent les colonnes totales d'ammoniac, soit la quantité intégrée verticalement de l'espèce entre la surface terrestre et le sommet de l'atmosphère. Notamment pour l'instrument IASI, les algorithmes de traitement des observations (spectre en radiance) ont beaucoup évolué au cours des dernières années [Van Damme et al 2014, 2015, 2017]. Ces instruments satellitaires offrent la capacité de cartographier la répartition horizontale journalière, mais avec des précisions de l'ordre de 50% (noter que la résolution spectrale des mesures satellitaires est relativement grossière) et avec deux mesures par jour seulement pour un même point. La télédétection de ces polluants est applicable aux mesures spectrométriques effectuées depuis le sol, qui offrent une résolution spectrale plus fine et plus de précision que les satellites, comme celles de l'observatoire OASIS (Observations Atmosphériques par Spectroscopie Infrarouge Solaire) à Créteil (avec une résolution spectrale moyenne, 9

fois plus fine que IASI), celles du réseau d'observation de la composition atmosphérique NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) [Hannigan et al., 2014] et celles du réseau de surveillance des gaz à effet de serre (CO₂, CH₄, N₂O) appelé TCOON (Total Carbon Column Observing Network) [Wunch et al., 2011]. Cependant, la restitution des concentrations de l'ammoniac et des particules d'ammonium par spectrométrie à partir du sol est actuellement inexistante en France métropolitaine. Elle reste très rare, à l'exception de quelques sites de mesures NDACC situés loin des sources de polluants et des mégapoles (par exemple pour l'ammoniac à Brème, Lauder, La Réunion et Jungfraujoch [Dammers et al., 2015]). Ces dernières ont permis une première validation des observations satellitaires du NH₃ avec IASI [Dammers et al., 2016]. Quant à l'observatoire OASIS, la grande pertinence de l'utiliser pour mesurer des polluants atmosphériques a été démontré via la restitution du monoxyde de carbone et de l'ozone troposphérique sur le long terme [Viatte et al., 2011 ; Chelin et al., 2014]. OASIS est un service d'observations de l'OSU-EFLUVE et fait partie du groupe collaboratif de recherche OCAP (Plateforme d'Observation de la Composition Atmosphérique Parisienne) du pôle d'observation de l'IPSL, complémentaire des réseaux opérationnels de surveillance de la qualité de l'air (INERIS et AIRPARIF). **Des nouvelles mesures de NH₃ effectuées avec OASIS permettront de surveiller ce polluant sur le long terme, de l'échelle diurne à pluriannuelle, pour la première fois en Ile-de-France et au cœur d'une mégapole majeure. Par ailleurs, les mesures de sulfate d'ammonium issues de l'instrument IASI serviront pour analyser le lien entre l'ammoniac et ces particules.** Ce projet s'intégrera au sein du DIM émergent QI2 (Réseau Qualité de l'air, Impacts sanitaires et Innovations technologiques et politiques) récemment labellisé par la région Ile-de-France et coordonné par le LISA.

Méthode :

L'originalité de la thèse de doctorat est la mesure et l'analyse de l'évolution diurne à pluriannuelle de la pollution atmosphérique à l'ammoniac dans la mégapole parisienne, estimée à partir des spectres infrarouges mesurés depuis 2009 par le spectromètre à transformée de Fourier de l'observatoire OASIS du LISA à Créteil.

Le travail de thèse consistera premièrement à la restitution des concentrations atmosphériques de NH₃ à partir des spectres mesurés par OASIS de manière routinière (en conditions de ciel clair) depuis 2009 (plus de 9 ans jusqu'à maintenant). La signature spectrale du NH₃ est clairement mesurée dans les spectres atmosphériques enregistrés par l'instrument OASIS qui possède une résolution spectrale de 0,075 cm⁻¹ (qui est notablement plus fine et donc plus sensible que celle de IASI de 0,5 cm⁻¹) dans deux fenêtres atmosphériques de l'infrarouge thermique. Les contraintes d'inversion pour restituer le NH₃ seront déterminées grâce à une collaboration avec les collègues allemands spécialistes de la télédétection du KIT à Karlsruhe qui nous ont fourni le programme d'inversion PROFFIT [Hase et al., 2004]. Après ces mises au point de l'algorithme d'inversion, la détermination des concentrations de NH₃ à partir des séries de mesures spectrales depuis 2009 sera effectuée, en se focalisant sur les épisodes de pollution hivernale particulière où le taux d'ammoniac est particulièrement élevé.

Ensuite, les mesures novatrices de NH₃ issues de OASIS seront comparées à d'autres estimations disponibles de leurs concentrations : i) des mesures in situ en Ile-de-France effectuées lors de campagnes dédiées à ce projet de thèse avec un instrument PICARRO de l'IMT de Douai ou avec l'instrument AIRMONIA du LSCE [Gros, 2013 ; Petetin, 2016], ii) des restitutions satellitaires (NH₃ à partir de IASI en collaboration avec les collègues du LATMOS, et à partir de CrIS avec les collègues de Toronto) et iii) des sorties du modèle de chimie-transport CHIMERE (mis en œuvre au LISA par l'équipe modélisation). Ces dernières utiliseront des inventaires d'émissions mis au point grâce à une technique d'inversion de sources contrainte par des mesures satellitaires de IASI [Fortems-Cheiney et al., 2016] et seront réalisées dans le cadre du projet AmP'Air de l'ADEME (Amélioration de la représentation des émissions agricoles d'AMmoniac pour une meilleure Prévision de la qualité de l'AIR en France). L'analyse de ces résultats portera sur l'évolution des concentrations de l'ammoniac aux échelles diurne, saisonnière et lors des événements de pollutions, en établissant les liens avec les conditions météorologiques et de transport régional, les émissions de polluants et la chimie atmosphérique. **Cette thèse permettra notamment la**

première et unique caractérisation de l'évolution diurne et saisonnière des émissions d'ammoniac en Ile-de-France, en fonction des sources majeures telles que l'agriculture, et l'impact du trafic qui est largement sous-estimé actuellement.

D'intérêt majeur pour l'ammoniac qui en est un précurseur, l'étape suivante de cette thèse sera l'observation de l'évolution de la pollution atmosphérique aux particules de sulfate d'ammonium mesurées par l'instrument IASI. Une méthode de restitution d'aérosols développée au LISA à partir des mesures satellitaires IASI sera adaptée pour la caractérisation des particules de sulfate d'ammonium qui pourront aussi être comparées à d'autres estimations disponibles à la surface notamment en Ile-de-France (projet Etude de la Pollution Particulaire en Ile-de-France du LEFE-CHAT). Des premiers travaux ont montré la capacité de détecter ces particules à partir des mesures IASI, mais de manière qualitative, sur toute la colonne et seulement pour des cas de très forte concentration (en Asie de l'est, Clarisse et al., 2013). L'approche à développer au LISA cherchera à observer quantitativement les particules de sulfate d'ammonium, en terme de leur concentrations et l'altitude de ces couches, pour des niveaux de concentrations retrouvés en France durant des épisodes de pollution printanière.

Résultats attendus :

Ce travail de thèse permettra d'une part **l'observation de l'évolution de la pollution atmosphérique à l'ammoniac, en Ile-de-France et depuis 2009, estimée pour la première fois grâce aux spectres infrarouges mesurés par l'observatoire OASIS à Créteil.** Ces observations seront les premières obtenues d'un spectromètre à moyenne résolution spectrale comme OASIS. Ces nouvelles mesures seront utilisées pour caractériser pour la première fois l'évolution de l'échelle diurne à multi-annuelle du NH₃ en Ile-de-France, en les confrontant avec les variables qui contrôlent leurs évolutions (conditions météorologiques, transport, produits secondaires). Des mesures AIRRMONIA d'ammoniac et également d'autres polluants gazeux (COV, HNO₃, SO₂) permettront aussi une caractérisation plus exhaustive des épisodes de pollution franciliens. Pendant la thèse, plusieurs campagnes d'inter-comparaison des mesures de NH₃ en colonnes verticales avec OASIS et in situ avec un analyseur sol co-localisé type PICARRO de l'IMT-Douai seront planifiées au printemps et permettront notamment d'étudier plus précisément les quantités de NH₃ particulièrement élevé lors des périodes d'épandage et qui peut être transporté par les masses d'air jusqu'en Ile-de-France et dont la variabilité est mal déterminée dans les modèles. Ces mesures permettront également d'identifier l'impact du trafic compte-tenu de la localisation de Créteil proche de l'autoroute A86.

Ce travail de thèse permettra d'autre part **l'observation de l'évolution de la pollution atmosphérique aux particules de sulfate d'ammonium mesurées par l'instrument IASI.** Si les concentrations en sulfate d'ammonium sont notables en Ile-de-France, les mesures IASI permettront également de mieux comprendre le rôle clé de l'ammoniac dans la formation des sels d'ammonium.

L'inter-comparaison des mesures OASIS de NH₃ et celles des sulfates d'ammonium par IASI avec les mesures à la surface, satellitaires et les simulations du modèle de chimie-transport CHIMERE sera une contribution majeure pour la mise en évidence des points forts et faibles des mesures satellitaires et des simulations de NH₃ et de particules d'ammonium, ce qui a une importance primordiale car ces dernières sont incertaines (autour de 100% et jusqu'à un facteur 3) et ont été très peu validées.

Références bibliographiques :

Allen A.G. et al. : A meso-scale study of the behaviour of atmospheric ammonia and ammonium, *Atmospheric Environment*, 22, 1347-1353, 1988.

Behera, S. N., M. Sharma, V. P. Aneja, and R. Balasubramanian, Ammonia in the atmosphere: a review on emission sources, atmospheric chemistry and deposition on terrestrial bodies. *Environmental Science and Pollution Research*, 20 (11), 8092-8131,

2013.

Chang Y., et al. : The importance of vehicle emissions as a source of atmospheric ammonia in the megacity of Shanghai, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 3577–3594, 2016.

Chelin P., C. Viatte, M. Ray, M. Eremenko, J. Cuesta, F. Hase, J. Orphal, and J.-M. Flaud, The OASIS observatory using ground-based solar absorption Fourier transform infrared spectroscopy in the suburbs of Paris (Créteil-France), E. Jimenez et al. (eds.), *Environment, Energy and Climate Change I: Environmental Chemistry of Pollutants and Wastes*, Hdb Env Chem, DOI 10.1007/698_2014_270, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2014.

Clarisse L, et al. : Global ammonia distribution derived from infrared satellite observations, *Nature Geoscience* 2(7), 479–483, 2009.

Clarisse, L., Coheur, P. F., Prata, A., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., & Clerbaux, C.. A unified approach to infrared aerosol remote sensing and type specification. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 2195–2221, 2013

Dammers, E., Vigouroux, C., Palm, M., Mahieu, E., Warneke, T., Smale, D., Langerock, B., Franco, B., Van Damme, M., Schaap, M., Notholt, J., and Erisman, J. W.: Retrieval of ammonia from ground-based FTIR solar spectra, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 12789–12803, doi:10.5194/acp-15-12789-2015, 2015.

Dammers, E., Palm, M., Van Damme, M., Vigouroux, C., Smale, D., Conway, S., Toon, G. C., Jones, N., Nussbaumer, E., Warneke, T., Petri, C., Clarisse, L., Clerbaux, C., Hermans, C., Lutsch, E., Strong, K., Hannigan, J. W., Nakajima, H., Morino, I., Herrera, B., Stremme, W., Grutter, M., Schaap, M., Wichink Kruit, R. J., Notholt, J., Coheur, P.-F. and Erisman, J. W., An evaluation of IASI-NH₃ with ground-based Fourier transform infrared spectroscopy measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 10351–10368, 2016.

Dammers E, et al. : Validation of the CrIS fast physical NH₃ retrieval with ground-based FTIR, *Atmospheric Measurement Techniques*, 10, 2645–2667, 2017.

DRIEE : Plan de protection de l'atmosphère d'Île-de-France, Direction Régionale et Interdépartementale de l'Environnement et de l'Energie, 2017.

Galloway J N, et al. : The Nitrogen Cascade, *BioScience* 53(4), 341–356, 2003.

Gros V., Sciare J., Baudic A., Rosso A., Sanchez O., Petetin H., FRANCIPOL : impact de la pollution longue distance sur les particules et leurs précurseurs gazeux à Paris et Ile-de-France, Programme PRIMEQUAL-2 (LSCE, AIRPARIF), 2013 (révisé 2014), 114pp.

Hannigan J. and T. Blumenstock, representatives of the Infrared Working Group in the NDACC Steering Committee, <http://www.ndsc.ncep.noaa.gov>, accédé le 30/10/2014.

Hase F, J.W.Hannigan, M.T. Coffey et al, Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution, ground-based FTIR measurements. *J Quant Spectrosc Radiat Transf* 87, 25–52, 2004.

Moloufoukila R, et al. : Agreste Île-de-France : memento de la statistique agricole, Ministère de l'agriculture, de l'agroalimentaire et de la forêt, 2016.

Petetin, H., Sciare, J., Bressi, M., Gros, V., Rosso, A., Sanchez, O., Sarda-Estève, R., Petit, J.-E. and Beekmann, M., Assessing the ammonium nitrate formation regime in the Paris megacity and its representation in the CHIMERE model, *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 10419–10440, 2016

Prevot A S H, et al. : Spatial variability and sources of ammonia in three European cities, EGU General Assembly, 2017.

Ringuet J, et al. : Inventaire des émissions de polluants atmosphériques en France au titre de la convention sur la pollution atmosphérique transfrontalière à longue distance et de la directive européenne relative aux plafonds d'émissions nationaux, Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique, 2016.

Shephard M W, et al. : Tropospheric Emission Spectrometer (TES) satellite observations of ammonia, methanol, formic acid, and carbon monoxide over the Canadian oil sands : validation and model evaluation, *Atmospheric Measurement Techniques* 8(12), 5189–5211, 2015

Sutton M A, et al. : Dispersion, deposition and impacts of atmospheric ammonia : quantifying local budgets and spatial

variability, *Environmental Pollution*, 102, 349-361, 1998.

Sutton M A, et al. : Ammonia in the environment: From ancient times to the present”, *Environmental Pollution*, 156, 583-604, 2008.

Van Damme M., et al. : Global distributions, time series and error characterization of atmospheric ammonia (NH₃) from IASI satellite observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 2905-2922, doi:10.5194/acp-14-2905-2014, 2014.

Van Damme M., et al. : Worldwide spatiotemporal atmospheric ammonia (NH₃) columns variability revealed by satellite . *Geophys. Res. Lett.*, 42 (20), 8660-8668, doi: 10.1002/2015GL065496, 2015.

Van Damme M., et al. : Version 2 of the IASI NH₃ neural network retrieval algorithm; near-real time and reanalysed datasets, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 4905–4914, 2017, doi.org/10.5194/amt-10-4905-2017.

Viatte C., B. Gaubert, M. Eremenko, F. Hase, M. Schneider, T. Blumenstock, M. Ray, P. Chelin, J.-M. Flaud, and J. Orphal, Tropospheric and total ozone columns over Paris (France) measured using medium-resolution ground-based solar-absorption Fourier-transform infrared spectroscopy, *Atmospheric Measurement Techniques* 4, 2323–2331, 2011.

Von Bobruzki K., et al. : Field inter-comparison of eleven atmospheric ammonia measurement techniques, *Atmospheric Measurement Techniques.*, 3, 91-112, 2010

Warneck P. : *Chemistry of the natural atmosphere*, Academic Press, New York, 927 p., 1988.

Warner J X, et al. : The global tropospheric ammonia distribution as seen in the 13-year AIRS measurement record, *Atmospheric Chemistry and Physics* 16(8), 5467–5479, 2016.

Wunch, D., G. C. Toon, J.-F. L. Blavier, R. A. Washenfelder, J. Notholt, B. J. Connor, D. W. T. Griffith, V. Sherlock, P. O. Wennberg, The total carbon column observing network, *Phil. Trans. Roy. Soc. A*, 369, 2087–2112, 2011.

Conditions scientifiques matérielles (conditions de sécurité spécifiques) et financières du projet de recherche : Les mesures principales et uniques en France utilisées dans cette thèse sont les spectres atmosphériques mesurés par OASIS à partir du sol et disponibles sur un large domaine spectral (700 – 11000 cm⁻¹) depuis 2009 (plus de 9 ans jusqu’à maintenant).

Les restitutions de l’ammoniac seront comparées aux données IASI grâce à la collaboration avec les collègues du LATMOS en charge des inversions satellitaires. Les données NH₃ recueillies à la surface lors de la campagne FRANCIPOL sont accessibles via la plateforme OCAPI.

Dans le cadre de la thèse, on propose de mener plusieurs campagnes d’inter-comparaison des mesures de NH₃ en colonnes verticales avec OASIS et in situ avec un capteur co-localisé. Dans ce dispositif, des analyseurs d’ammoniac type PICARRO et AIRRMONIA seront utilisés grâce à une collaboration avec l’IMT de Douai et le LSCE (collaboration OCAPI). Les données sur les particules et plus particulièrement les particules d’ammonium seront accessibles puisque le LISA est porteur du projet EPPI en Ile-de-France.

Ouverture Internationale éventuelle : Les candidats étrangers peuvent candidater s’ils maîtrisent couramment soit le français, soit l’anglais

Collaborations envisagées éventuelles :

- Franck HASE (IMK, Karlsruhe Institute of Technology, Allemagne) pour l’expertise sur les inversions à partir du code PROFFIT
- Camille VIATTE et Cathy CLERBAUX (LATMOS, Paris) pour les données NH₃ issues de l’instrument IASI
- Enrico Dammers et Mark Shephard (Environment and Climate Change Canada, Toronto, Ontario, Canada) pour les données NH₃ issues de l’instrument CrIS

Objectifs de valorisation des travaux de recherche du doctorant : diffusion, publication et confidentialité,

