

INSTITUT D'AERONOMIE SPATIALE DE BELGIQUE

3 - Avenue Circulaire

B - 1180 BRUXELLES

AERONOMICA ACTA

A - N° 294 - 1985

Calculs du profil de Voigt appliqués aux raies
infrarouges de la stratosphère et de la mésosphère

par

C. MULLER

BELGISCH INSTITUUT VOOR RUIMTE-AERONOMIE

3 - Ringlaan

B - 1180 BRUSSEL

AVANT-PROPOS

L'article : "Calculs du profil de Voigt appliqués aux raies infrarouges de la stratosphère et de la mésosphère" sera publié dans le Bulletin de la Classe des Sciences de l'Académie Royale de Belgique.

FOREWORD

The paper "Calculs du profil de Voigt appliqués aux raies infrarouges de la stratosphère et de la mésosphère" will be published in the Bulletin de la Classe des Sciences de l'Académie Royale de Belgique.

VOORWOORD

De tekst "Calculs du profil de Voigt appliqués aux raies infrarouges de la stratosphère et de la mésosphère" zal verschijnen in de Bulletin de la Classe des Sciences de l'Académie Royale de Belgique.

VORWORT

Die Arbeit : "Calculs du profil de Voigt appliqués aux raies infrarouges de la stratosphère et de la mésosphère" wird in der Bulletin de la Classe des Sciences de l'Académie Royale de Belgique herausgegeben werden.

CALCULS DU PROFIL DE VOIGT APPLIQUES AUX RAIES
INFRAROUGES DE LA STRATOSPHERE ET DE LA MESOSPHERE

par

C. MULLER

Résumé

Une comparaison est effectuée entre l'approximation empirique de Whiting (1967) au profil de raie de Voigt et un calcul exact. L'approximation de Whiting conduit à des résultats identiques pour l'interprétation de spectres de Spacelab 1 entre 80 et 30 km d'altitude. L'étude de l'erreur relative de l'approximation analytique montre qu'elle ne devient non négligeable que dans le cas de travaux à résolution ultra-élevée.

Abstract

A comparison is made between the Whiting (1967) empirical approximation to the Voigt line profile and a rigorous computation. The Whiting approximation is shown to lead to identical results for the interpretation of Spacelab 1 spectra between 80 and 30 km of altitude. The relative error of the analytical approximation is studied and shown to be non-negligible only in the case of ultrahigh resolution studies.

Samenvatting

Er wordt een vergelijking gemaakt tussen de empirische benadering van Whiting (1967) bij het lijnprofiel van Voigt en een exacte berekening. De benadering van Whiting leidt tot identieke resultaten voor de interpretatie van Spacelab 1 spectra tussen 80 en 30 km hoogte. De studie van de relatieve fout van de analytische beandering toont aan dat deze slechts in geval van werken met ultrahoge resolutie niet te verwaarlozen is.

Zusammenfassung

Man stellt ein Vergleich an zwischen der empirischen Annäherung Whitings (1967) beim Leineprofil Voigts und einer exakten Berechnung. Die Annäherung Whitings führt zu identischen Resultaten für die Interpretation Spacelab 1 Spektras zwischen 80 und 30 km Höhe. Die Studie des relativen Fehlers der analytischen Annäherung zeigt der Fehler nur im Fall der Arbeiten mit Ultrahöhe Resolution nicht zu vernachlässigen.

INTRODUCTION ET DEFINITIONS

Le calcul du transfert radiatif requiert le profil de Voigt chaque fois que le profil de Doppler, relié à la température, ajoute sa contribution au profil de Lorentz qui provient des élargissements naturels, de pression ou Stark. Le cas purement Doppler constitue une limite extrême et ne trouve d'application que pour les températures extrêmement élevées des flammes ou des atmosphères stellaires (Penner, 1959).

Les formes de ces profils font l'objet de nombreux traités (Penner, 1959, Breene, 1961, Goody, 1964); le profil de Doppler, purement gaussien est caractérisé par une décroissance très rapide des ailes; tandis que le profil de Lorentz présente un amortissement quadratique; le profil de Voigt, convolution des deux premiers combine leurs propriétés. La figure 1 montre la comparaison de ces trois profils et indique que les ailes du profil de Voigt sont essentiellement lorentziennes. Dans l'atmosphère terrestre, les valeurs des demi-largeurs Lorentz et Doppler sont gouvernées par le profil de pression et de température. La figure 2 en montre un exemple typique pour une raie de la bande ν_3 de NO_2 (1600 cm^{-1}) et une raie de la bande $\nu_1 + \nu_3$ (2900 cm^{-1}). On voit que la décroissance linéaire de la largeur Lorentz avec la pression l'amène à des valeurs proches de celles de la largeur Doppler autour de 25 km tandis que cette dernière, dépendante de la racine carrée de la température, reste à peu près constante.

La forme lorentzienne des ailes est reliée à la nature des interactions moléculaires pendant les collisions. Dans le cas troposphérique, l'erreur faite en négligeant le noyau dopplérien est négligeable comparée aux écarts observés dans les ailes lointaines; les corrections ne deviennent importantes qu'à partir de $2,5 \text{ cm}^{-1}$ du centre de la raie et peuvent déjà être négligées dans le cas stratosphérique, car le profil de Lorentz peut s'appliquer jusqu'à l'altitude de 15 km. Au dessus, le profil de Voigt est la règle sauf dans quelques cas très limités où la

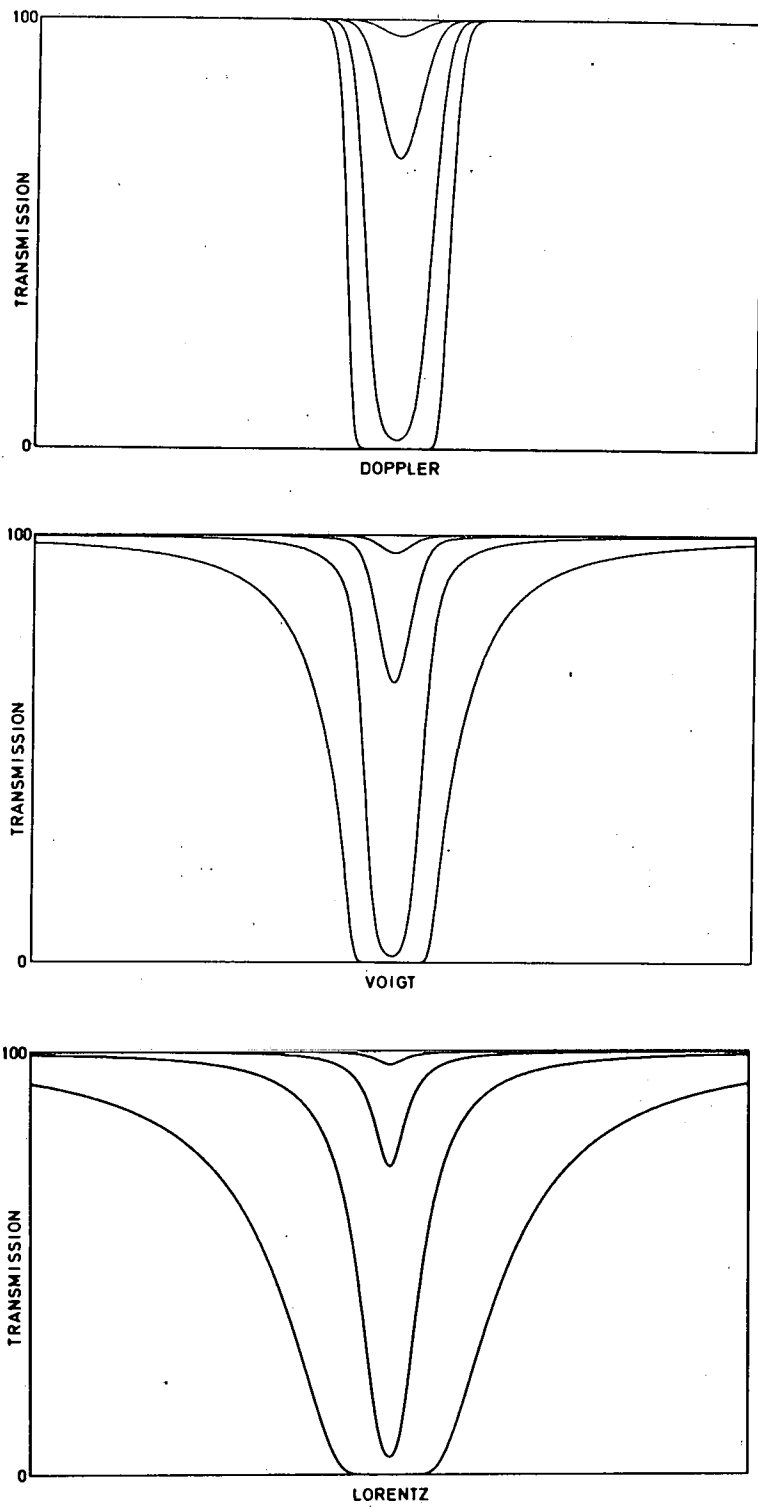


Figure 1 Comparaison entre les transmissions des profils de Doppler, Voigt et Lorentz calculés pour une demi-largeur identique à mi-hauteur et pour des trajets optiques chaque fois multipliés d'un facteur 10.

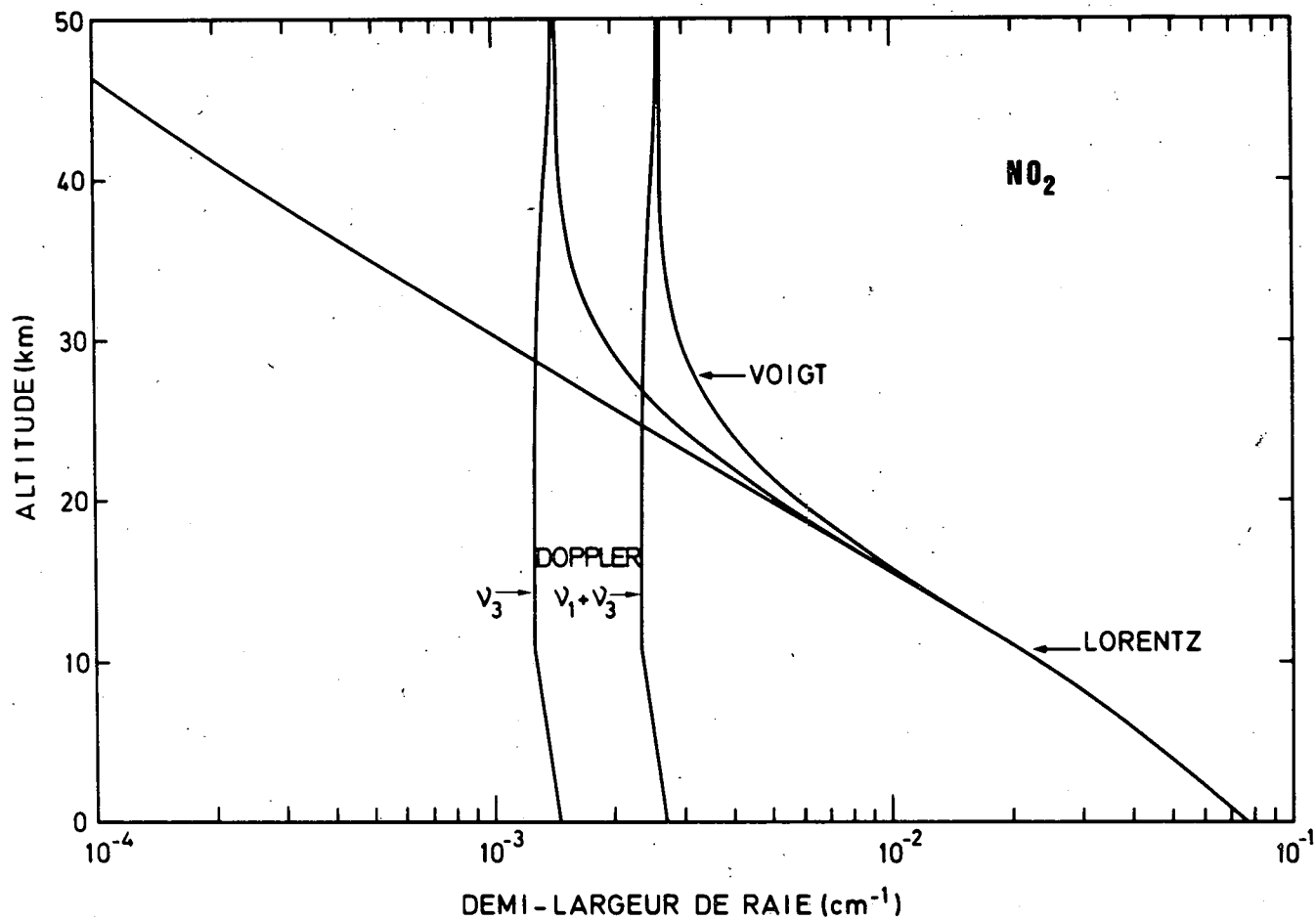


Figure 2 Calcul des demi-largeurs de raie en fonction de l'altitude pour la bande ν_3 (6,3 μm) et la bande ν_1 (3,5 μm) de NO_2 , on voit que dans la stratosphère supérieure la demi-largeur de raie à mi-hauteur est donnée par la raie de Doppler, cependant, les ailes Lorentz non saturées y sont encore la principale source de l'absorption.

saturation du centre rend l'absorption dépendante seulement des ailes (Drayson, 1966).

Le profil de Voigt s'exprime (Armstrong, 1967) :

où

$$P(x,y) = \frac{1}{\alpha_D} \left(\frac{\ln 2}{\pi} \right)^{1/2} K(x,y)$$

$$K(x,y) = \frac{y}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-t)}{y^2 + (x-t)^2} dt$$

$$y = \frac{\alpha_L}{\alpha_D} (\ln 2)^{1/2} \quad (\text{rapport des largeurs de Lorentz } \alpha_L \text{ et de Doppler } \alpha_D)$$

$$x = \frac{v - v_0}{\alpha_D} (\ln 2)^{1/2} \quad (\text{échelle de nombre d'ondes en unité de largeur Doppler } \alpha_D)$$

$$\alpha_D = v_0 \left(\frac{2kT \ln 2}{Mc^2} \right)^{1/2} \quad \begin{array}{l} v_0 : \text{ nombre d'ondes de la raie,} \\ M : \text{ masse moléculaire.} \end{array}$$

La normalisation de ce profil peut être aisément démontrée (Armstrong, 1967); d'ailleurs, ses limites sont les profils de Lorentz et de Doppler.

La fonction $K(x,y)$ constitue également la partie réelle de la fonction de probabilité complexe et, à ce titre trouve des applications dans divers domaines de la physique et en particulier en aéronomie mathématique (Lemaire and Scherer, 1971).

L'intégrale $K(x,y)$ n'est malheureusement pas analytique et doit être évaluée numériquement, ou approchée par une fonction; d'après les estimations de Drayson (1976), ce calcul occupe 75% des ressources informatiques affectées au calcul du transfert radiatif effectué raie par raie.

CALCUL APPROCHE APPLIQUE A LA SYNTHESE SPECTRALE

La synthèse des spectres d'absorption et d'émission date de l'introduction des ordinateurs de la deuxième génération et de leurs tables traçantes associées (Gates et al, 1963). Auparavant, les interprétations étaient exclusivement effectuées en utilisant des tabulations des largeurs équivalentes des raies pour différents types de profils (Goody, 1964; Jansson et Korb, 1968); très tôt, les premières tentatives furent limitées par les difficultés de calcul du profil de Voigt, la technique directe développée par Kyle (1969) pour le calcul d'un atlas stratosphérique devait rapidement apparaître comme irréaliste pour les nombreux calculs nécessités par l'inversion de données obtenues en ballon.

Diverses approches empiriques (revues par Olivero et Longbothum, 1977) furent établies à cette époque pour ramener le profil à une forme analytique. Après une analyse d'approximations basée sur la simplicité de programmation et la capacité de simuler les ailes lointaines par le profil plus simple de Lorentz, l'approximation analytique de Whiting (1967) fut finalement choisie pour les interprétations des premiers vols ballons et avions du spectromètre à grille "Girard" (Maignan et Muller, 1974).

Ce profil s'exprime par

$$\frac{I_v}{I_{v_0}} = \left(1 - \frac{w_L}{w_v}\right) \exp - \left[2.772 \left(\frac{v - v_0}{w_v} \right)^2 \right] + \left(\frac{w_L}{w_v} \right) \frac{1}{1 + 4 \left(\frac{v - v_0}{w_v} \right)^2} + 0,016 \left(1 - \frac{w_L}{w_v}\right) \left(\frac{w_L}{w_v} \right) \left\{ \exp \left[- 0.4 \left(\frac{v - v_0}{w_v} \right)^{2.25} \right] - \frac{10}{10 + \left(\frac{v - v_0}{w_v} \right)^{2.25}} \right\}$$

où $w_L = 2 \alpha_L$

$$w_v = \frac{w_L}{2} + \left(\frac{w_L^2}{4} + 4 \alpha_D^2 \right)^{0.5}$$

$$I_{v_0} = \frac{1}{w_v [1.065 + 0.447(w_L/w_v) + 0.058(w_L/w_v)^2]}$$

Avec son aspect compliqué, cette expression est valide pour toutes les valeurs des largeurs de Lorentz et de Doppler et devient, pour $\alpha_D = 0$, un profil de Lorentz ordinaire. Son désavantage principal réside dans l'usage d'exposants fractionnaires et de fonctions exponentielles qui ralentissent considérablement le calcul. L'approximation ultérieure de Kielkopf (1973), en principe, plus rapide au calcul se révèle malheureusement moins exacte que l'approximation de Whiting (Olivero et Longbothum, 1977).

L'approximation de Whiting resta donc le modèle de raie utilisé dans nos interprétations depuis 1973 jusqu'à maintenant. Elle fut même utilisée avec succès dans l'ultraviolet pour une réévaluation de la pénétration du rayonnement dans les bandes de Schumann-Runge de l'oxygène (Nicolet et Peetermans, 1980). Dans tous ces calculs, la cohérence interne des résultats a fourni une validation indirecte de la validité de l'approximation.

En décembre 1983, le spectromètre à grilles ES013 (IASB-ONERA), lors de la mission Spacelab 1, mesurait une grande quantité de spectres au dessus de l'altitude de 50 km (Vercheval et al, 1984; Lemaitre et al., 1984). La dérivation des distributions verticales de vapeur d'eau devait conduire à des désaccords entre les concentrations obtenues à

partir de raies de différentes forces dans la région $2,7 \mu\text{m}$. Ainsi, dans la mésosphère inférieure (60 km), la raie forte à $3816,092 \text{ cm}^{-1}$ conduisait à des valeurs d'environ 15 ppm qui ne peuvent être expliquées par aucun processus atmosphérique connu tandis que les raies les plus faibles indiquaient des fractions molaires voisines de 6 ppm , entièrement compatibles avec le budget de l'hydrogène mésosphérique (Lippens et al., 1984).

L'accord manifesté par toutes les raies dans la mésosphère supérieure (au dessus de 70 km), où H_2O montre une chute de concentration rapide et dans la stratosphère, où l'élargissement de pression devient important, conduit à soupçonner une erreur dans le modèle de raie mésosphérique, particulièrement au moment où le noyau dopplérien de la raie sature. Cette constatation devait amener à introduire un calcul exact du profil de Voigt dans la méthode d'interprétation.

COMPARAISON AVEC LE CALCUL EXACT

Plusieurs techniques d'intégration numériques ont été proposées depuis le travail de Young (1964), qui le premier a envisagé la synthèse spectrale. Le profil de Armstrong (1967) présente l'avantage d'une précision très documentée mais la longueur du code et sa complexité le rendent peu utilisable pour notre application. Pour satisfaire aux nécessités du transfert radiatif, deux programmes efficaces et brefs ont été publiés par Drayson (1976) et Humlicek (1982). Humlicek (1982) calcule la fonction de probabilité complexe en utilisant les ressources d'arithmétique complexe du langage FORTRAN. Cependant, le programme de Drayson (1976) limite son calcul aux parties réelles. Quatre méthodes différentes d'intégration y sont adoptées suivant les valeurs de x et de y et s'appliquent toutes aux conditions atmosphériques. Dans le cas mésosphérique ($\alpha_L/\alpha_D \ll 1$), seules trois de ces régions doivent être considérées, la plus lente à calculer ($y > 1$; $x + 1,39 < 5$) ne doit jamais entrer en ligne de compte. La simplicité du

code utilisé a conduit à utiliser cette approche pour comparer le résultat à celui du profil de Whiting.

La figure 3 montre l'erreur du profil de Whiting par rapport à celui de Drayson; on voit que celle-ci est proche de 0 au centre de la raie pour croître ensuite dans les ailes lointaines, après quelques oscillations au centre de raie. La normalisation a été également calculée et conduit à une différence de 14/10000 entre les deux profils.

En vue de déterminer l'incidence de l'oscillation centrale sur les résultats du vol Spacelab, un programme d'interprétation itérative a été modifié de manière à y introduire le profil exact dans le cas précis de la raie de H_2O à $3816,092 \text{ cm}^{-1}$ (Lippens et al, 1984). Les résultats obtenus, ne peuvent être distingués, à la limite de convergence près, de ceux obtenus en utilisant le profil de Whiting. Le temps de calcul déterminé en utilisant le profil exact est, dans ce cas (altitudes de 80 km à 30 km) environ deux fois plus court. Cela est dû en partie au nombre de termes réduit de la quadrature de Gauss-Hermite par rapport à ceux de l'approximation analytique; la zone où le profil exact est calculé par une série de Taylor étant très réduite.

Le calcul illustré à la figure 3 a été répété pour diverses valeurs de y couvrant toutes les conditions atmosphériques. L'amplitude de l'oscillation centrale atteint un maximum de 10% lorsque $\alpha_L > 2\alpha_D$, ce qui rendrait impérative l'utilisation du profil exact si un instrument à résolution très élevée ($< 0,001 \text{ cm}^{-1}$) et à intervalle spectral réduit était utilisé; mais, on peut toujours ne pas l'utiliser pour les calculs de transfert d'énergie.

CONCLUSION

L'analyse du profil effectuée dans cette note montre que les anomalies observées dans la détermination de la distribution verticale de

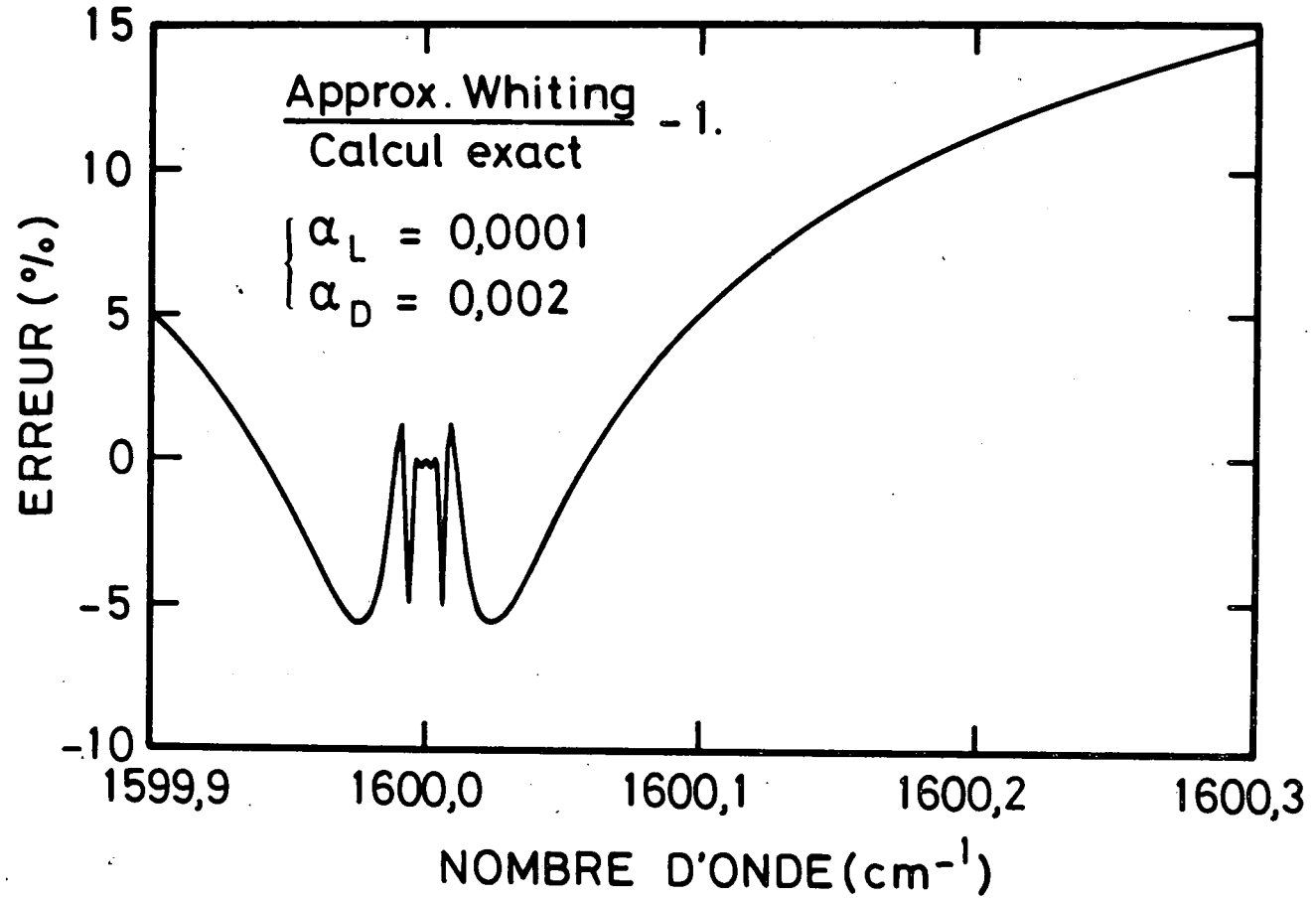


Figure 3 Erreur de l'approximation analytique de Whiting en section efficace par rapport au calcul exact pour un cas mésosphérique.

la vapeur d'eau à partir de raies intenses lors de la mission Spacelab I (Lippens et al., 1984) trouvent leur origine non dans un usage abusif d'une forme de profil approché, mais dans le mécanisme d'absorption lui-même. En attendant que des études théoriques et expérimentales puissent apporter une solution à ce problème, l'analyse doit être poursuivie en utilisant les raies les moins intenses. Pour le prochain vol du spectromètre à grilles, à la fin de 1985, au cours de la mission Spacelab : "Earth Observation Mission One", il a été prévu d'élargir le domaine de 2,7 μm de la vapeur d'eau et d'augmenter le rapport signal sur bruit dans la région de 6,3 μm dans le but de mesurer avec la plus grande précision tout un ensemble de raies faibles.

REMERCIEMENTS

Les premières indications que j'ai pu avoir sur une méthode pratique de calcul du profil de Voigt ont été obtenues en 1972 lors d'une recherche bibliographique systématique effectuée au "Centre National de Documentation Scientifique et Technique" de la bibliothèque royale Albert I. Je tiens à lui adresser tous nos remerciements.

Je remercie également toutes les personnes ayant participé aux programmes de spectromètres à grille Girard à l'ONERA, à l'IASB et à ETCA (Charleroi). En même temps, j'adresse mes vifs remerciements à Monsieur le Professeur Nicolet dont les travaux ont posé les questions auxquelles ces observations tentent d'apporter une réponse.

REFERENCES

- ARMSTRONG, B.H., Spectrum line profiles : the Voigt function, J.Q.S.R.T., 7, 61 (1967).
- BREENE, R.G., Jr., The shift and shape of spectral lines, Pergamon Press, Londres (1961).
- DRAYSON, S.R., Atmospheric transmission in the CO₂ bands between 12 and 18 μm, Appl. Opt., 5, 385 (1966).
- DRAYSON, S.R., Rapid computation of the Voigt profile, J.Q.S.R.T., 16, 611, (1976).
- GATES, D.M., CALFEE, R.F. et HANSEN, D.W., Computed transmission spectra for 2.7 micron H₂O band, Appl. Opt., 2, 1117 (1963).
- GOODY, R.M., Atmospheric radiation, theoretical basis, Oxford, Clarendon Press (1964).
- HUMLICEK, J., Optimized computation of the Voigt and complex probability functions, J.Q.S.R.T., 27, 437 (1982).
- JANSSON, P.A. et KORB, L., A table of the equivalent widths of isolated lines with combined Doppler and collision broadened profiles, J.Q.S.R.T., 8, 1399 (1968).
- KIELKOPF, J.F., New approximation to the Voigt function with applications to spectral-line profile analysis, J.O.S.A., 63, 987 (1973).
- KYLE, T.G., Calculation of atmospheric transmittance from 1.7 to 20 μm, J.Q.S.R.T., 9, 1477 (1969).
- LEMAIRE, J. et SCHERER, M., Simple model for an Ion-Exosphere in an open magnetic field, Phys. Fluids, 14, 1683 (1971).
- LEMAITRE, M.P., LAURENT, J., BESSON, J. GIRARD, A., LIPPENS, C., MULLER, C., VERCHEVAL, J., ACKERMAN, M., Sample performance of the grille spectrometer, Science, 225, 171 (1984).
- LIPPENS, C., MULLER, C., VERCHEVAL, J., ACKERMAN, M., LAURENT, J., LEMAITRE, M.P., BESSON, J. et GIRARD, A., Trace constituents measurements deduced from spectrometric observations on board Spacelab, Cospar Proceedings, Gratz (1984).

- MAIGNAN, M. et MULLER, C., Méthodes de calcul de spectres stratosphériques d'absorption infrarouge, Proceedings of the Meeting, COVOS-COMESA, Oxford (Angleterre) (1974).
- NICOLET, M. et PEETERMANS, W., Atmospheric absorption in the O₂ Schumann-Runge band spectral range and photodissociation rates in the stratosphere and mesosphere, Planet. Space Sci., 28, 85 (1980).
- OLIVERO, J.J. et LONGBOTHUM, R.R., Empirical fits to the Voigt line width : a brief review, J.Q.R.S.T., 17, 233 (1977).
- PENNER, S.S., Quantitative molecular spectroscopy and gas emissivities, Addison-Wesley, Reading (Mass.) (1959).
- VERCHEVAL, J., LIPPENS, C., MULLER, C., ACKERMAN, M., LEMAITRE, M.P., BESSON, J., GIRARD, A. et LAURENT, J., The ESO13 grille spectrometer : a first Space flight, Physicalia Mag., 6, 77 (1984).
- WHITING, E.E., An empirical approximation to the Voigt profile, J.Q.S.R.T., 8, 1379 (1968).
- YOUNG, C., Calculation of the absorption coefficient for lines with combined Doppler and Lorentz broadening, J.Q.S.R.T., 5, 549 (1965).