

VU Research Portal

Rotational Raman scattering in the Earth's atmosphere

van Deelen, R.

2007

document version

Publisher's PDF, also known as Version of record

[Link to publication in VU Research Portal](#)

citation for published version (APA)

van Deelen, R. (2007). *Rotational Raman scattering in the Earth's atmosphere: Modeling and application to satellite measurements of backscattered sunlight*.

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal ?

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

E-mail address:

vuresearchportal.ub@vu.nl

Samenvatting

Rotationale Raman-verstrooiing in de aardatmosfeer

Modellering en toepassing op satellietmetingen van weerkaatst
zonlicht

Het door de aardatmosfeer en het aardoppervlak terugverstrooide en gereflecteerde zonlicht bevat een schat aan informatie over de samenstelling van de atmosfeer en over de eigenschappen van het oppervlak. Zo kan men bijvoorbeeld de concentratie van een belangrijk gas als ozon bepalen uit een gemeten Aarde-radiantiespectrum. Verscheidene satellietinstrumenten zijn gelanceerd om Aarde-radiantiespectra nauwkeurig te meten: het Global Ozone Monitoring Experiment en zijn opvolger (GOME en GOME-2), de Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Characterization (SCIAMACHY), en het Ozone Monitoring Instrument (OMI). Bij de analyse van de metingen is het gebruikelijk om het gemeten Aarde-radiantiespectrum te delen door een zonne-irradiantiespectrum. Deze ratio, die het reflectiespectrum wordt genoemd, toont hoe inkomend zonlicht verandert door weerkaatsing aan het aardoppervlak en door zijn reis door de aardatmosfeer. Een voordeel van deze ratio is dat calibratiefouten die zowel in de Aarde- als in de zonnemeting zitten wegdelven.

Wanneer de reflectie als functie van golflengte nauwkeurig bekeken wordt ziet men fijne spectrale structuren die veroorzaakt worden door het Ring effect. Dit effect, dat in 1962 ontdekt werd door Grainger en Ring, is te zien bij golflengten waar het zonnenspectrum lijnen van lage intensiteit vertoont – de zogenaamde Fraunhoferlijnen. Het Ring effect wordt veroorzaakt door rotationale Raman-verstrooiing door stikstof- en zuurstofmoleculen in lucht. Dit inelastische lichtverstrooiingsproces maakt de Fraunhoferlijnen in een Aarde-radiantiespectrum minder diep dan in een zonnenspectrum dat buiten de aardatmosfeer is gemeten. Hierdoor delen de Fraunhoferlijnen niet weg in de ratio van deze metingen en veroorzaakt het Ring

effect effectief een opvulling van de Fraunhofer lijnen in het gemeten reflectiespectrum. Het Ring effect is het meest prominent in het ultraviolette golflengtebereik waar zich veel sterke Fraunhoferlijnen bevinden en waar moleculaire verstrooiing belangrijk is. Vaak wordt het Ring effect beschouwd als een stoorzender in de analyse van verstrooid zonlicht. De Ring-structuren interfereren namelijk met de veelal zwakkere absorptiestructuren die gebruikt worden om concentraties van de gassen zoals ozon, stikstofdioxide, etc. te bepalen. Het Ring effect kan echter ook beschouwd worden als een bron van informatie. Zo is het Ring effect gevoelig voor de aanwezigheid van wolken in de satellietwaarneming. Dit komt doordat de verhouding van inelastisch verstrooid licht ten opzichte van elastisch verstrooid licht afhankelijk is van de aanwezigheid van wolken. Met de informatie over wolken die in het Ring effect verstopt zit, zoals bijvoorbeeld wolkentophoogte, kan het bepalen van concentraties van diverse gassen uit verstrooid zonlicht verbeterd worden in het geval van bewolkte waarnemingen. Bij de aanvang van dit project waren er verschillende stralingstransportmodellen beschikbaar die het Ring effect tot op zekere hoogte meenemen. Echter, twee aspecten waren nog niet in voldoende detail bestudeerd: (1) het belang van meervoudige Raman-verstrooiing en (2) het belang van de polarisatie-eigenschappen van het meervoudig verstrooide licht in het geval dat inelastische Raman-verstrooiing wordt meegenomen. De benadering waarin de polarisatie-eigenschappen van licht worden verwaarloosd heet de scalaire benadering. Hierbij wordt slechts de intensiteit I gemodelleerd in plaats van de volledige intensiteitsvector $\mathbf{I} = [I, Q, U, V]^T$, waarbij Q en U lineaire polarisatie van het licht beschrijven en V circulaire polarisatie beschrijft.

Het werk dat beschreven wordt in dit proefschrift begon met het ontwikkelen van een scalair stralingstransportmodel dat in staat is om meervoudige verstrooiing in de aardatmosfeer te berekenen en ook meervoudige Raman-verstrooiing meeneemt. Dit model wordt beschreven in hoofdstuk 2 en is gebaseerd op de doubling-adding-methode. Om inelastische verstrooiing mee te nemen was het nodig om de doubling-adding-formules aan te passen. Eén van de vragen waar we met name in geïnteresseerd waren was tot in welke mate hogere ordes van Raman-verstrooiing belangrijk zijn voor het modelleren van de reflectie in het ultraviolette en zichtbare golflengtebereik. Met behulp van een versimpelde modelatmosfeer en uitgaande van een instrument met een vergelijkbare spectrale resolutie als GOME vonden we dat de totale opvulling door enkelvoudige Raman-verstrooiing $\sim 22\%$ kan zijn bij de Ca II K- en H-lijnen rond 393 nm en 397 nm. Hiervan wordt slechts 0,6% door meervoudige Raman verstrooiing veroorzaakt. Nabij 325 nm is moleculaire ver-

strooiing sterker, maar zijn de Fraunhoferlijnen minder sterk dan de Ca II-lijnen. Hier is de totale opvulling 4%, waarvan 0,2% veroorzaakt wordt door meervoudige Raman verstrooiing. Hieruit hebben we geconcludeerd dat het voor metingen waarbij de spectrale resolutie vergelijkbaar is als die van GOME volstaat om één orde inelastische Raman verstrooiing mee te nemen voor de meeste toepassingen.

In hoofdstuk 3 hebben we de polarisatie-aspecten van terugverstrooid zonlicht bestudeerd. Het gevolg van het verwaarlozen van polarisatie werd onderzocht met een nieuw ontwikkeld vector-stralingstransportmodel. Dit model maakt gebruik van de stralingstransportstoringstheorie waarbij inelastische Raman-verstrooiing behandeld wordt als een verstoring van het elastische Rayleigh-verstrooiingsprobleem. Deze aanpak levert een storingsreeksontwikkeling op van de intensiteitsvector, waarbij iedere term het effect van één extra orde Raman-verstrooiing beschrijft. Dit model is in detail uitgewerkt voor de eerste orde. De berekening van de eerste orde Raman-verstrooiingscorrectie kon significant versneld worden door gebruik te maken van de terugwaartse formulering van stralingstransporttheorie. We hebben numerieke simulaties voor het ultraviolette golflengtebereik gedaan om het effect van Raman-verstrooiing op I , Q en U van het weerkaatste zonlicht te bestuderen. We vonden dat de Ring-structuren in een spectrum van de graad van lineaire polarisatie ($\sqrt{Q^2 + U^2}/I$) voornamelijk het gevolg zijn van Ring-structuren in het spectrum van I . De Ring-structuren in spectra van Q en U zijn minder belangrijk. Twee veelgebruikte benaderingen om de Ring-structuren in metingen door instrumenten zoals GOME te simuleren werden nader onderzocht: de enkelvoudige verstrooiingsbenadering en de scalaire benadering. We vonden dat de enkelvoudige verstrooiingsoplossing niet de juiste amplitude van de Ring-structuren kan simuleren. De opvulling van de Ca II-lijnen werd bijvoorbeeld onderschat met een factor 2. Dit betekent dat het cruciaal is om meervoudige Rayleigh-verstrooiing mee te nemen voor zowel het continuüm als voor de berekening van de opvulling van de Fraunhoferlijnen. Vervolgens bestudeerden we de benadering waarin de Ring-structuren worden gesimuleerd met een scalair model, maar waarin het continuüm berekend wordt met een vector-model. We vonden dat deze benadering gerechtvaardigd is voor de meeste toepassingen, omdat de geïntroduceerde afwijkingen over het algemeen één orde kleiner zijn dan de ruis van het satellietinstrument. Alleen in het geval van de sterke Ca II-Fraunhoferlijnen dienen de Ring-structuren op zowel I als Q en U meegenomen te worden.

Voor de berekening van de Ring-structuren in metingen van instrumenten zoals GOME is het zeer belangrijk dat er een nauwkeurig zonnenspectrum gebruikt wordt.

Behalve de Ring-structuren bevat de reflectie ook hoog-frequente spectrale structuren die geïntroduceerd worden door een Doppler-verschuiving tussen de zonnen en de Aarde-metingen. Deze structuren ontstaan doordat het zonne-irradiatiespectrum geïnterpoleerd wordt op het Aarde-radiantie-golflengtegrid om zo de reflectie te kunnen bepalen. In hoofdstuk 4 introduceren wij een nieuwe aanpak die zowel het vereiste zonnenspectrum levert als mede het ontstaan van interpolatiefouten voorkomt. Om dit te bereiken wordt een zonnenspectrum afgeleid op een golflengtegrid dat veel fijner is dan het GOME-golflengtegrid. Echter, wanneer dit zonnenspectrum gebruikt wordt en interpolatiefouten vermeden worden houdt men uiteindelijk toch fouten van ongeveer 0.5% over in de gesimuleerde Aarde-radiantie-spectra. Deze fouten zijn het gevolg van undersampling door GOME. GOME heeft namelijk te weinig sample-punten om alle hoog-frequente spectrale structuren te "vangen", waardoor de reconstructie van het gemeten zonnenspectrum op een fijner grid dan dat van GOME niet helemaal volledig is. We hebben verder laten zien dat de undersampling-fouten effectief verwijderd kunnen worden wanneer het zonne-spectrum wordt afgeleid uit de GOME zonnemeting en één GOME Aarde-meting. Met deze aanpak kunnen de gemiddelde verschillen tussen gesimuleerde en gemeten Aarde-radiantie-spectra teruggebracht worden tot het ruisniveau van het instrument. Dit toont aan dat het Ring effect op adequate wijze gemodelleerd kan worden.

Zoals eerder genoemd bevat het Ring effect informatie over wolken. Deze informatie kan gebruikt worden voor het beter bepalen van concentraties van gassen in het geval van bewolkte waarnemingen. In het laatste hoofdstuk, hoofdstuk 5, onderzoeken we de mogelijkheid om wolkenparameters te af te leiden uit nabij-ultraviolette metingen waar zich prominente Ring-structuren bevinden. We vergelijken deze aanpak met een andere, meer gebruikelijke aanpak waarbij absorptiebanden van zuurstof en het botsingscomplex van zuurstof worden gebruikt. We waren met name geïnteresseerd welke spectrale band of welke combinatie van banden het meest geschikt is voor het bepalen van wolkenparameters voor huidige en toekomstige GOME-achtige satellietinstrumenten. Om de bepaling van wolken-tophoogte, wolkenfractie en optische dikte van de wolk uit gesimuleerde reflectiemetingen te bestuderen hebben we drie spectrale gebieden geselecteerd: 350–400 nm met significante Ring-structuren, 460–490 nm met een absorptieband van het botsingscomplex van zuurstof (O_2-O_2) en 755–775 nm met een absorptieband van zuurstof, de zogenaamde O_2 A band. Het bepalen van de wolkenparameters is uitgevoerd voor ruis-scenarios die representatief zijn voor hedendaagse ruimte-

spectrometers. Zowel de spectrale band 350–400 nm als de O₂ A band leveren apart meer informatie op over de wolkenparameters dan de 460–490 nm band. De beste resultaten worden verkregen door de combinatie van de banden bij 350–400 nm en 755–775 nm. In dit geval kunnen alle drie de wolkenparameters onafhankelijk bepaald worden en is de bepaling beter bestand tegen ruis. We vonden echter dat in deze combinatie van spectrale banden het Ring effect niet significant bijdraagt aan de wolkeninformatie. De extra informatie over wolkenfractie en wolkenophoogte komt in deze combinatie uit de O₂ A band in plaats van uit het Ring effect en levert op deze manier een meer robuuste en meer nauwkeurige wolkenparameterbepaling op. Voor instrumenten die geen O₂ A absorptieband meten zoals het OMI-instrument, moeten zowel het Ring effect als het continuüm in het nabij-ultraviolet meegenomen worden voor het nauwkeurig bepalen van de wolkenparameters.

De belangrijkste conclusies van dit proefschrift zijn:

1. We hebben twee nieuwe modellen ontwikkeld die rotationele Raman-verstrooiing in de aardatmosfeer meenemen. Met deze modellen konden we bepalen hoe belangrijk polarisatie en meervoudige Raman-verstrooiing zijn voor de simulatie van het Ring effect in Aarde reflectiemetingen, uitgevoerd door satellietinstrumenten zoals GOME. We vonden dat het Ring effect in deze metingen het beste gesimuleerd kan worden door het stralingstransportprobleem voor een elastisch Rayleigh-verstrooiende atmosfeer op te lossen en deze basisoplossing te corrigeren voor één orde Raman-verstrooiing. Dit wordt bereikt door gebruik te maken van storingstheorie.
2. De hoge graad van nauwkeurigheid die bereikt kan worden in het simuleren van GOME reflectiemetingen laat zien dat we atmosferische rotationele Raman-verstrooiing in weerkaatst zonlicht nauwkeurig kunnen modelleren. Hiervoor volstaat het om ons stralingstransportmodel en het uit GOME afgeleide zonnenspectrum te gebruiken. Interpolatiefouten en undersamplingfouten kunnen voorkomen worden en de gemiddelde residuen kunnen tot het ruisniveau van het meetinstrument teruggebracht worden.
3. Nauwkeurige wolkenparameters kunnen afgeleid worden uit een combinatie van O₂ A-absorptie-bandmetingen en metingen van het continuüm in het nabij-ultraviolet (350–400 nm). Het Ring effect voegt geen significante informatie toe aan de bepaling van de wolkenparameters in deze combinatie. Echter, wanneer O₂ A absorptiebandmetingen niet beschikbaar zijn, dient het Ring

effect gebruikt te worden om wolkenparameters zo nauwkeurig mogelijk te bepalen.