

大气气溶胶粒径分布的多波长激光雷达反演

李晓涛^{1,2}, 刘东^{1,2,3,4*}, 肖达¹, 张凯¹, 胡先哲¹, 李蔚泽¹, 毕磊⁵, 孙文波², 吴兰¹, 刘崇¹, 邓洁松¹¹浙江大学光电科学与工程学院极端光学技术与仪器全国重点实验室, 浙江 杭州 310027;²东海实验室, 浙江 舟山 316021;³浙江大学嘉兴研究院智能光电创新中心, 浙江 嘉兴 314000;⁴浙江大学杭州国际科创中心, 浙江 杭州 311200;⁵浙江大学地球科学学院浙江省地学大数据与地球深部资源重点实验室, 浙江 杭州 310027

摘要 提出一种基于正则化方法改进的气溶胶微物理特性反演算法,通过引入模式半径范围作为先验约束,并对差异最小值附近的解进行平均,以解决反演时存在的欠定问题。对 1500 组不同类型的气溶胶粒径分布进行仿真,测试了所提反演算法对气溶胶微物理特性参数的反演精度与稳定性。考虑在 20% 随机高斯噪声的影响下,90% 以上气溶胶的有效半径、体积浓度和表面积浓度反演相对误差可被控制在 $\pm 33\%$ 、 $\pm 45\%$ 和 $\pm 50\%$ 范围内。误差统计结果表明,所提算法基于多波长的气溶胶光学特性,可实现对气溶胶粒径分布的可靠反演。

关键词 大气光学; 多波长激光雷达; 正则化方法; 气溶胶粒径分布; 微物理特性

中图分类号 P407

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS231223

1 引言

大气气溶胶是由大气介质和混在其中的固态或液态微粒组成的体系^[1]。气溶胶可以通过直接效应影响地球-大气系统的辐射收支平衡,也可以通过改变云相态来间接影响区域天气和全球气候^[2-3]。然而,准确量化这些气溶胶效应是十分困难的。2021 年发布的联合国政府间气候变化专门委员会第六次气候变化评估报告显示,气溶胶对气候变化的影响强度还存在相当大的不确定性。为了准确评估气溶胶的辐射强度,可通过测量粒径分布(PSD)和复折射率等气溶胶微物理特性获得单次散射反照率(SSA)^[4],进而研究气溶胶对气候的具体影响。因此,对气溶胶的微物理特性进行观测是一项十分有必要、有价值的研究。

尽管目前地面原位观测和被动遥感仪器已经能够获得气溶胶的光学特性和质量浓度等信息^[1,5],但对于气溶胶垂直分布的认识仍然不足。研究气溶胶的垂直分布对于了解指定高度大气的污染水平、分析大气污染机制、厘清云与气溶胶相互作用的机理等方面有很大帮助^[6-10]。激光雷达是一种能有效观测气溶胶的主动遥感仪器,它能够以高时空分辨率探测气溶胶的垂直分布信息,并实现全天时连续观测,通过联合观测多

个不同波长通道还可进一步反演气溶胶的微物理特性^[11-15]。

使用多波长激光雷达反演气溶胶微物理特性的研究自 20 世纪末以来已经取得长足的进步。德国莱布尼兹对流层研究所从多波长 Raman-Mie 激光雷达观测数据中成功反演了气溶胶粒径分布和复折射率,该激光雷达能提供 6 个波长的后向散射系数和 2 个波长的消光系数^[11,16]。俄罗斯普通物理所 Veselovskii 等^[12,17]使用 2 个消光系数和 3 个后向散射系数对反演解进行了平均处理,提高了正则化反演算法的精度和稳定性。西安理工大学 Di 等^[18]采用正则化方法反演了不同垂直高度下的气溶胶微物理特性参数。除了被广泛应用的正则化方法^[11-12],还有多种反演算法被应用于这一领域,如主成分分析法^[19]、线性评估法^[20]、排列搜索平均法^[21]等。

由于激光雷达探测的消光和后向散射系数存在一定反演误差,且在反演气溶胶的微物理特性时,通常要求解的未知量个数大于光学特性的测量通道数,这属于典型的欠定问题,其反演结果在某些情况下表现出很大的不确定性,因此需要进一步的约束以提高其稳定性。本文提出一种改进的正则化反演方法,引入先验的模式半径分布范围作为约束,使得粒径分布的反

收稿日期: 2023-07-03; 修回日期: 2023-08-13; 录用日期: 2023-09-06; 网络首发日期: 2023-09-22

基金项目: 国家重点研发计划(2022YFB3901704, 2022YFC2203904, 2021YFC2202001)、国家自然科学基金(62205289)、浙江省自然科学基金(LQ23F050011)、中央引导地方科技发展资金项目(2022ZYYDSAA00273)

通信作者: *liudong@zju.edu.cn

演精度得到显著改善,能够准确地反演不同类型气溶胶的粒径分布参数。

2 反演方法

2.1 反演原理

355、532、1064 nm 的多波长激光雷达常被用于探测气溶胶并反演其光学特性与微物理特性,该系统能够提供 355、532、1064 nm 波长处的后向散射系数(β)以及 355、532 nm 处的消光系数(α),构成经典的 $3\beta + 2\alpha$ 数据组合。从激光雷达回波信号中反演气溶胶后向散射和消光系数已有成熟的算法^[22-24],在此不作讨论。

气溶胶光学特性通过第一类 Fredholm 积分方程组与气溶胶粒子的粒径分布相关,其关系为

$$g_p(\lambda) = \int_{\ln r_{\min}}^{\ln r_{\max}} K_p(m, r, \lambda) \frac{\partial V(r)}{\partial \ln r} d \ln r, \quad p = \alpha, \beta, \quad (1)$$

式中: $g_p(\lambda)$ 为测量波长 λ 下的光学数据,下标 p 表示气溶胶消光(α)和后向散射(β)系数; r 为气溶胶粒径, r_{\max} 和 r_{\min} 分别决定积分的上限和下限; $K_p(m, r, \lambda)$ 为消光和后向散射核函数; m 为复折射率; $\partial V(r)/\partial \ln r$ 为体积浓度分布。其中,消光和后向散射核函数可由 Mie 散射理论^[25](粒子为球形)或 T 矩阵方法^[26](粒子为非球形)计算。

为了求解 Fredholm 积分方程组,使用应用广泛的正则化方法^[11-12]。式(1)的解 $f(r)$ 可近似为几组基函数 $B_j(r)$ 的叠加,即

$$f(r) = \frac{\partial V(r)}{\partial \ln r} \approx \sum_j W_j B_j(r) dr, \quad (2)$$

式中: W_j 为权重系数;基函数 $B_j(r)$ 在执行反演的半径区间(也被称为反演窗口) $[r_{\min}, r_{\max}]$ 内的对数等间隔地呈现三角形,下标 j 为对应基函数的编号,通常可使用小于或等于光学特性输入通道数的基函数分组个数。因此,气溶胶光学特性可近似表示为

$$g_{\delta, i} = \sum_{j=1}^{N_0} A_{ij} W_j + \varepsilon, \quad (3)$$

式中: $g_{\delta, i}$ 表示各波长下的气溶胶后向散射和消光系数;下标 δ 表示此光学特性为估计值; ε 表示存在的近似误差; N_0 表示基函数分组的个数。权重矩阵的元素 A_{ij} 的计算公式为

$$A_{ij} = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} K_i(m, r, \lambda) B_j(r) dr. \quad (4)$$

若将权重系数 W_j 和近似光学特性 $g_{\delta, i}$ 分别以向量形式表示为 \mathbf{W} 和 \mathbf{g}_{δ} ,则权重系数矩阵 \mathbf{W} 可表示为

$$\mathbf{W} = (\mathbf{A}^T \mathbf{A} + \gamma \mathbf{H})^{-1} \mathbf{A}^T \mathbf{g}_{\delta}, \quad (5)$$

式中: \mathbf{A} 为权重矩阵; γ 为拉格朗日乘数; \mathbf{H} 为平滑矩阵;上标 T 为转置符号。拉格朗日乘数的大小决定了平滑矩阵的重要程度,文献[12]的方法中已经给出了

γ 的取值范围和选取方法,通过选择合适的 γ 值可以避免解出现过平滑或振荡的问题,从而获得较好的反演结果。解得权重系数矩阵 \mathbf{W} 后即可由式(2)重建气溶胶的粒径分布。

气溶胶的复折射率对光学特性影响显著,虽然正则化方法不能直接反演复折射率,但在不同复折射率和半径区间组成的查找表(LUT)内尝试多次反演粒径分布,然后在众多反演结果中选择最优解,从而确定复折射率。本研究通过比较输入光学特性参数 \mathbf{g}_{δ} 与从反演结果重构的光学特性参数之间的平均相对误差(MRE) ρ 进行选择, ρ 的计算公式为

$$\rho = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{\|g_{\delta, i} - \mathbf{A}_{i*} \mathbf{W}_{\text{abs}}\|}{g_{\delta, i}}, \quad (6)$$

式中: N 为输入光学特性参数的个数; \mathbf{A}_{i*} 表示权重矩阵 \mathbf{A} 的第 i 行元素构成的行向量。考虑到实际气溶胶粒径分布函数不具有负值,故对 \mathbf{W} 内各元素取绝对值得 \mathbf{W}_{abs} 。但是,与最小相对误差 ρ_{\min} 对应的单个解仍可能出现显著的振荡,从而产生反演误差。为了减少振荡,合理的做法是选择最小误差附近的一定误差区间 ρ_{ave} 内的解进行平均,将平均解 f_{mean} 作为最终反演结果。平均的过程可表示为

$$f_{\text{mean}}(r) = \frac{1}{N_{\text{sol}}} \sum_{i=1}^{N_{\text{sol}}} f_i(r), \quad (7)$$

式中: N_{sol} 为筛选后解的个数。

根据反演时采用的核函数类型,平均解 f_{mean} 可以是数浓度谱分布、表面积浓度谱分布和体积浓度谱分布等形式。下面以数浓度谱分布为例,数浓度 N_t 、表面积浓度 S_t 、体积浓度 V_t 、有效半径 r_{eff} 的计算公式分别为

$$N_t = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} f_{\text{mean}}(r) dr, \quad (8)$$

$$S_t = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} 4\pi r^2 f_{\text{mean}}(r) dr, \quad (9)$$

$$V_t = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \frac{4\pi r^3}{3} f_{\text{mean}}(r) dr, \quad (10)$$

$$r_{\text{eff}} = \frac{\int_{r_{\min}}^{r_{\max}} r^3 f_{\text{mean}}(r) dr}{\int_{r_{\min}}^{r_{\max}} r^2 f_{\text{mean}}(r) dr}. \quad (11)$$

2.2 模式半径约束

使用多波长激光雷达系统探测不同波段的气溶胶光学特性进而反演其微物理特性的前提是,发射激光对粒径尺寸与波长相当的气溶胶粒子具有较强的响应且表现出一定的波长依赖性。在当前激光雷达系统广泛使用的“ $3\beta + 2\alpha$ ”配置下,受限于 355、532、1064 nm 的探测波长,所获得的气溶胶消光和后向散射系数一般仅对 0.01 μm 到数微米粒径范围内的气溶胶较为敏感。粗模态的大气气溶胶粒径可达 10 μm 甚至数十微

米,在对这些尺寸大于波长的气溶胶进行反演时,反演精度明显下降。

尽管正则化方法无需对气溶胶的粒子谱分布形状进行假设即可反演气溶胶的微物理特性,但由于需要求解的未知量个数往往大于气溶胶光学特性的测量通道数,其求解过程仍存在欠定和对噪声敏感的问题。前文已经介绍了从所有备选解中选择部分合适的解进行平均以减少振荡的优化方法,但仅将重构光学特性参数和输入光学特性参数之间的相对误差作为筛选条件并不是总能获得令人满意的反演结果。

为了进一步提高双峰粒子谱分布的反演精度,可引入一些额外的先验信息作为约束。本文选择使用粗细模态的体积中值半径范围作为约束条件。根据 AERONET (Aerosol robotic network) 提供的全球各站点历史观测数据库^[18, 27]的数据,细模态气溶胶体积中值半径范围为 0.12~0.18 μm,而粗模态的体积中值半径则在 1.9~3.7 μm 范围内变化。基于这一先验知识,在经过光学特性相对误差筛选之后,可进一步对重构的粒径分布 PSD 进行筛选并取平均值,得到气溶胶的微物理特性反演结果,整个算法的流程如图 1 所示。

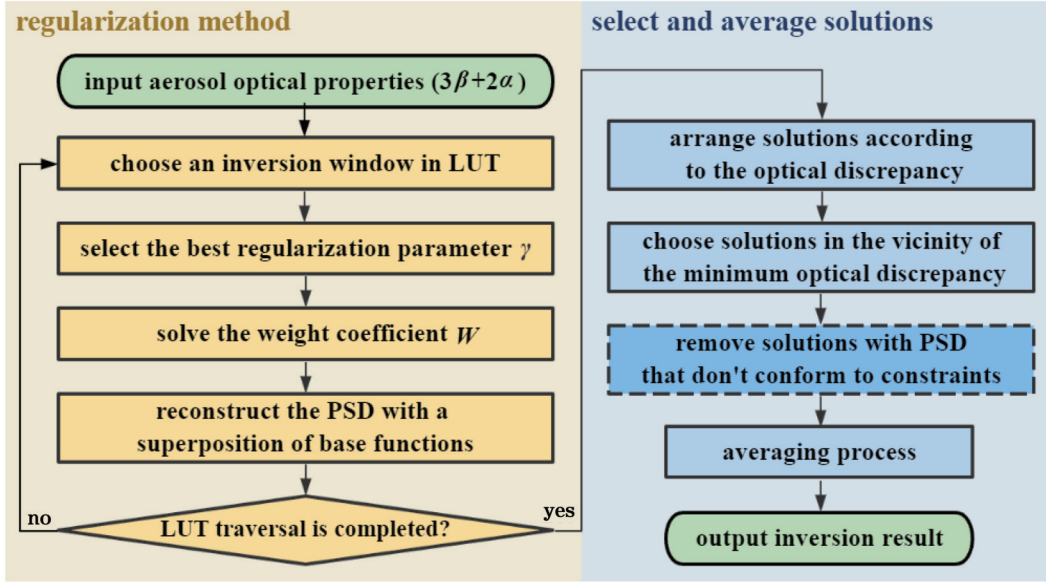


图 1 先验模式半径约束下的气溶胶微物理特性反演流程图

Fig. 1 Inversion flow chart of aerosol microphysical properties under *a priori* model radius constraints

3 结果与讨论

3.1 引入约束前后的反演结果对比

为检验先验模式半径约束对粒径分布反演精度的提升效果,仿真 4 种典型的对流层气溶胶:在人口稠密

的城市与工业区因燃烧化石燃料产生的城市气溶胶;因森林和草原火灾产生的烟尘气溶胶;在沙漠和干旱地区因风蚀和扬沙产生的沙尘气溶胶;因海浪飞溅释放的海盐等物质组成的海洋气溶胶。上述气溶胶参数来自全球 AERONET 站点的观测数据^[27],如表 1 所示。

表 1 双峰对数正态分布气溶胶的模拟参数

Table 1 Simulated parameters of bimodal log-normal aerosols

Aerosol type	$r_{v,f}/\mu\text{m}$	$r_{v,c}/\mu\text{m}$	σ_f	σ_c	$C_{v,f}/(\mu\text{m}^3 \cdot \text{cm}^{-3})$	$C_{v,c}/(\mu\text{m}^3 \cdot \text{cm}^{-3})$	Complex refractive index
Urban	0.14	2.88	0.43	0.79	0.64	0.36	1.40-0.009i
Smoke	0.15	3.70	0.40	0.79	0.70	0.30	1.48-0.017i
Marine	0.16	2.70	0.48	0.68	0.33	0.66	1.36-0.002i
Desert dust	0.14	2.50	0.54	0.60	0.07	0.93	1.52-0.002i

表 1 中各变量的下标 c、f 分别表示气溶胶的粗模态和细模态,并假设气溶胶的复折射率与波长和粒径无关,对粗细模态气溶胶的体积浓度进行归一化处理,由表 1 的参数可得到气溶胶的粒径分布,即

$$\frac{dV(r)}{d \ln r} = \sum_{k=c,f} \frac{C_{v,k}}{\sqrt{2\pi} \sigma_k} \exp\left[-\frac{(\ln r - \ln r_{v,k})^2}{2\sigma_k^2}\right], \quad (12)$$

式中: $C_{v,k}$ 表示气溶胶体积浓度; $r_{v,k}$ 表示模式半径; σ_k 表示标准差。根据粒径分布和复折射率能够计算气溶胶的光学特性并作为反演输入,随后进行仿真模拟。为了更接近实际反演时的情况,对正演的光学特性数据引入了 20% 的随机高斯噪声。图 2 所示为引入约束前后的重构粒子谱对比。

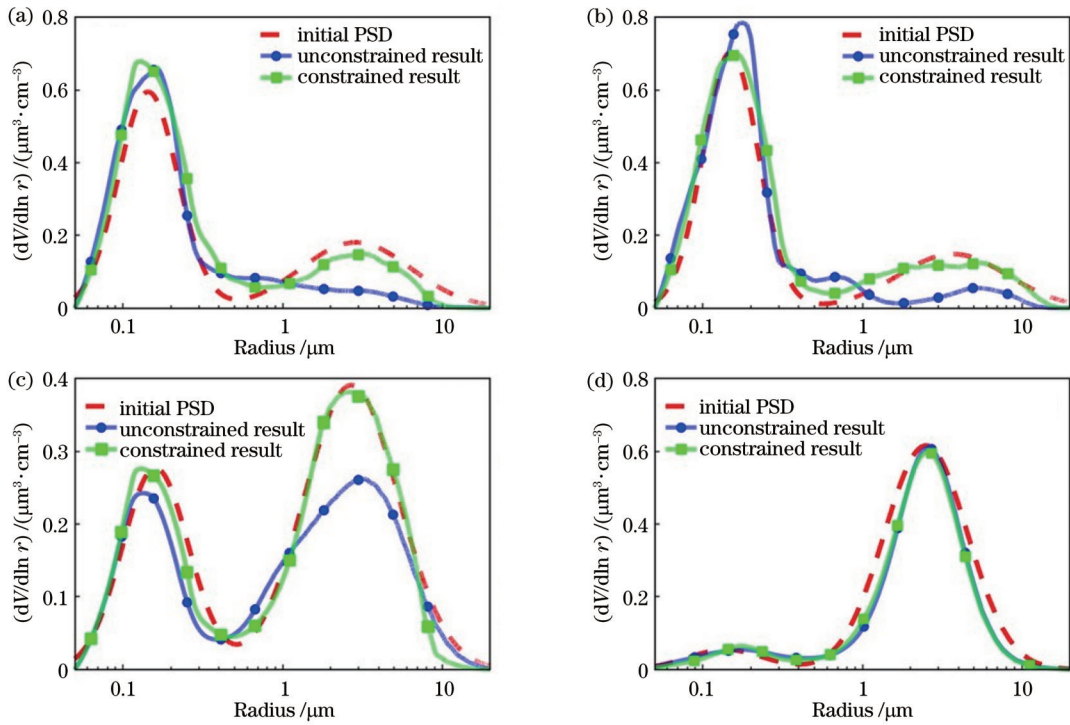


图 2 4 种气溶胶 PSD 的仿真反演结果。(a)城市气溶胶;(b)烟尘气溶胶;(c)海洋气溶胶;(d)沙尘气溶胶

Fig. 2 Retrieved aerosol PSD for four aerosols. (a) Urban aerosol; (b) smoke aerosol; (c) marine aerosol; (d) desert dust aerosol

为了量化对比引入先验模式半径约束前后重构谱分布与输入初始谱分布的相似程度,用平均相对误差

来衡量两种方法得到的不同类型气溶胶的反演误差,其结果见表 2。

表 2 两种方法求得的重构谱分布与初始谱分布之间的平均相对误差

Table 2 MRE between initial size distributions and reconstructed size distributions obtained by two methods

Condition	MRE of urban aerosol / %		MRE of smoke aerosol / %		MRE of marine aerosol / %		MRE of desert dust aerosol / %	
	Fine mode	Coarse mode	Fine mode	Coarse mode	Fine mode	Coarse mode	Fine mode	Coarse mode
Unconstrained	20.88	73.27	20.62	80.76	23.03	27.68	16.97	31.18
Constrained	25.99	30.97	17.74	24.31	14.88	7.68	16.46	23.14

从上述 PSD 反演结果可以看出,在未经模式半径先验约束的情况下,图 2(a)~(c)中仅细模态区间内的 PSD 与初始分布吻合得较好,反演相对误差均控制在 30% 以内,而在 $r > 1 \mu\text{m}$ 的粗模态区间内反演精度较低,在最坏的情况下相对误差甚至超过了 80%,与前文的误差分析结果相符。引入模式半径范围作为约束以后,对正则化算法提供的众多备选解进行筛选,根据模式半径先验数据排除了其中粒子谱形状较不合理的解,从而显著拓宽了 PSD 的反演范围,使得图 2(a)~(c)中的 PSD 反演结果均有了明显改善,尤其是粗模态区间内的粒子谱形状和初始谱分布的相似程度显著提高,相对误差可减小到 35% 以内,这证明引入的约束对反演结果有着显著的正向影响。表 2 中城市气溶胶细模态的反演误差在引入约束后反而略微增大,这可能是由于筛去了一些与细模态区间符合而粗模态区间不符的解。图 2(d)显示,引入约束前后 PSD 反演结果并没有出现明显差异,这是因为这一案例的模式半

径在未经约束的情况下已经反演得较为准确,其粗模态 PSD 的反演误差的产生主要是因为低估了对数正态分布的方差。

3.2 输入光学特性中的噪声对反演的影响

参考历史数据中给出的大气气溶胶微物理特性参数的分布范围^[18, 27],生成约 1500 组不同类型的双峰对数正态分布数据对算法进行测试。测试过程中选取的微物理特性参数范围如表 3 所示,所有测试数据中的气溶胶总体积浓度 V_t 均归一化为 $1 \mu\text{m}^3/\text{cm}^3$ 。在使用气溶胶粒径分布和复折射率正演计算其消光和后向散射系数时,假设城市气溶胶、烟尘气溶胶以及海洋气溶胶均为球形颗粒物,沙尘气溶胶则为非球形颗粒物^[17, 28-29]。

在多波长激光雷达的实际观测过程中,系统误差和探测回波信号的随机噪声是不可避免的,通常认为输入光学特性参数的反演误差可控制在 20% 以内^[12, 16]。为了更加准确和全面地评估算法的性能,在测试使用的光学特性输入数据集中引入高斯噪声作为

表 3 仿真测试中选用的双峰对数正态分布参数范围
Table 3 Parameter range of bimodal log-normal aerosols chosen in simulation tests

Aerosol parameter	Range
Real part of refractive index	1.40-1.56
Imaginary part of refractive index	0.001-0.020
$r_{v,i} / \mu\text{m}$	0.12-0.16
$r_{v,c} / \mu\text{m}$	2.0-3.2
σ_i	0.40-0.48
σ_c	0.60-0.80
V_i/V_c	0.1-2.5

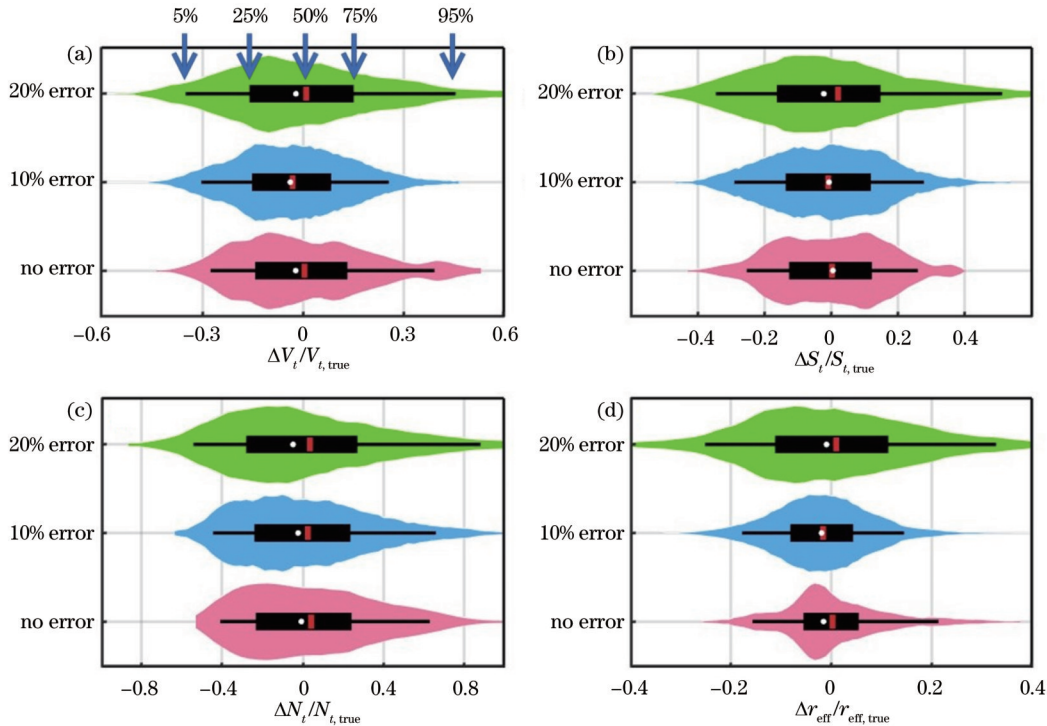


图 3 气溶胶微物理特性的反演误差统计结果。(a) 体积浓度 V_i ; (b) 表面积浓度 S_i ; (c) 数浓度 N_i ; (d) 有效半径 r_{eff}

Fig. 3 Statistical results of inversion errors of aerosol microphysical properties. (a) Volume concentration V_i ; (b) surface area concentration S_i ; (c) number concentration N_i ; (d) effective radius r_{eff}

从图 3 可以看出,反演误差的概率密度大致呈现近似纺锤形的正态分布,其中分别以圆点和箱图中竖线段表示的平均误差和中值误差均十分接近于 0。箱线图的第 5 和 95 个百分位数分别表示反演误差的下限和上限,而反演的不确定度则可以通过误差分布中第 25 和 75 个百分位数进行评估。在求解欠定问题时,由于解的不稳定性,初始输入数据的微小扰动就可能引起近似解与真值之间的较大偏差,从而导致误差边界广泛扩展。因此,在实际反演中更需要关注反演的不确定度,而不是误差的上下限。图 3 所示的结果表明,高斯噪声的引入增大了气溶胶微物理特性的反演误差。在 20% 噪声水平的影响下,反演的不确定度和误差边界均明显增大;10% 噪声水平下的反演结果与零误差情况下得到的反演结果相仿,这表明所提算法具有较好的稳定性,能够容许一定范围内的输入误差。

随机误差(不确定度为 10% 或 20%)^[12, 18, 30]。假设高斯噪声的不确定度为 x ,则所有输入光学特性参数的附加噪声遵循几何标准差 $\sigma = 100x/3$ 的正态分布。算法反演误差的频率分布表示为图 3 中的小提琴图,其中阴影区域从下往上依次对应为零误差、10% 随机误差和 20% 随机误差下的反演结果,即引入 0、10%、20% 的高斯噪声。图 3 中阴影区域表示反演误差的概率密度,体现了其分布规律。长方形箱线图从左到右分别显示了每个分布中数据的第 5、25、50(箱图中竖线段)、75 和 95 个百分位数,而箱图中的圆点则表示反演误差的均值。

在图 3(a)中, V_i 的反演误差在绝大多数情况下均可控制在 $\pm 50\%$ 以内,其反演不确定度在 0 和 10% 噪声水平下分别在 $-14.2\% \sim 13.3\%$ 范围内和 $-15.1\% \sim 8.4\%$ 范围内,在 20% 噪声水平下则略微增大至 $-15.5\% \sim 16.5\%$ 。图 3(b)所示的 S_i 反演误差分布情况与 V_i 接近,其反演不确定度在 0 和 10% 噪声水平下约为 $\pm 12\%$,在 20% 噪声水平下则为 $\pm 16\%$ 。图 3(c)所示的 N_i 在 4 个参数中反演误差最大,这与此前反复论证的结论^[16, 31-32]类似,即气溶胶数浓度谱的反演对噪声最为敏感,难以准确反演,但即使在 20% 的噪声水平影响下其不确定度仍可控制在 $\pm 30\%$ 以内。而图 3(d)则反映了所提算法在 r_{eff} 参数反演上的精确性,在 90% 以上的测试情境中, r_{eff} 的反演误差可被约束在 $\pm 20\%$ 以内,这体现了在正则化算法中引入模式半径约束,可使 r_{eff} 反演精度显著提升。

4 结 论

基于三波长激光雷达所能提供的 $3\beta + 2\alpha$ 光学特性数据组合,开发了用于反演气溶胶粒径分布的改进正则化算法。在传统 Tikhonov 正则化方法的基础上,额外引入模式半径先验约束,使得反演算法具有更强的稳定性和更高的精度,所获得的重构粒子谱分布和初始谱分布具有更好的相似性。通过对 1500 组不同类型的双峰对数正态分布数据进行仿真测试和误差统计,结果表明,所提算法可以实现 $3\beta + 2\alpha$ 组合下对气溶胶粒径分布的精确反演,当输入光学参数无误差时,90% 以上的有效半径相对误差可被控制在 $\pm 20\%$ 以内,90% 以上的体积浓度和表面积浓度相对误差可被控制在 $\pm 40\%$ 和 $\pm 30\%$ 以内。当考虑高斯随机噪声的影响时,在 10% 噪声水平下,所提算法反演误差并无明显变化;在 20% 噪声水平下,90% 以上的有效半径相对误差均被控制在 $\pm 33\%$ 以内,90% 以上的体积浓度和表面积浓度相对误差可被控制在 $\pm 45\%$ 和 $\pm 50\%$ 以内这与以往研究^[18]反演误差得到的结果相近。误差分析结果表明,改进正则化算法能够从三波长激光雷达数据中准确反演气溶胶的粒子谱分布情况,填补气溶胶观测数据库的相应空白,有助于科研人员进一步研究大气气溶胶对环境与气候的影响。

值得注意的是,所提出的改进正则化算法主要针对气溶胶粒子谱分布反演进行优化,旨在实现对大粒径范围内双峰气溶胶粒径分布的精确反演,其在复折射率的反演上仍存在一定误差,亟待进一步改进。

参 考 文 献

- [1] 毛节泰, 张军华, 王美华. 中国大气气溶胶研究综述[J]. 气象学报, 2002, 60(5): 625-634.
Mao J T, Zhang J H, Wang M H. Summary comment on research of atmospheric aerosol in China[J]. Acta Meteorologica Sinica, 2002, 60(5): 625-634.
- [2] Giorgi F, Bi X Q, Qian Y. Direct radiative forcing and regional climatic effects of anthropogenic aerosols over East Asia: a regional coupled climate-chemistry/aerosol model study[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2002, 107 (D20): AAC7-1.
- [3] 尚倩, 李子华, 杨军, 等. 南京冬季大气气溶胶粒子谱分布及其对能见度的影响[J]. 环境科学, 2011, 32(9): 2750-2760.
Shang Q, Li Z H, Yang J, et al. Size distributions of aerosol particles and the impact on visibility in winter of Nanjing[J]. Environmental Science, 2011, 32(9): 2750-2760.
- [4] 范学花, 陈洪滨, 夏祥鳌. 中国大气气溶胶辐射特性参数的观测与研究进展[J]. 大气科学, 2013, 37(2): 477-498.
Fan X H, Chen H B, Xia X A. Progress in observation studies of atmospheric aerosol radiative properties in China[J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 2013, 37(2): 477-498.
- [5] Che H Z, Gui K, Xia X G, et al. Large contribution of meteorological factors to inter-decadal changes in regional aerosol optical depth[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, 19(16): 10497-10523.
- [6] Zhu J, Zhu B, Huang Y, et al. $PM_{2.5}$ vertical variation during a fog episode in a rural area of the Yangtze River Delta, China[J]. Science of the Total Environment, 2019, 685: 555-563.
- [7] Liu C, Huang J P, Wang Y W, et al. Vertical distribution of $PM_{2.5}$ and interactions with the atmospheric boundary layer during the development stage of a heavy haze pollution event[J]. Science of the Total Environment, 2020, 704: 135329.
- [8] Ke J, Sun Y S, Dong C Z, et al. Development of China's first space-borne aerosol-cloud high-spectral-resolution lidar: retrieval algorithm and airborne demonstration[J]. Photonix, 2022, 3(1): 1-20.
- [9] Sun H Y, Wang S L, Hu X B, et al. Detection of surface defects and subsurface defects of polished optics with multisensor image fusion[J]. Photonix, 2022, 3(1): 1-14.
- [10] Huang Z T, Chang C Y, Chen K P, et al. Tunable lasing direction in one-dimensional suspended high-contrast grating using bound states in the continuum[J]. Advanced Photonics, 2022, 4(6): 066004.
- [11] Müller D, Wandinger U, Ansmann A. Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: theory[J]. Applied Optics, 1999, 38(12): 2346-2357.
- [12] Veselovskii I, Kolgotin A, Griaznov V, et al. Inversion with regularization for the retrieval of tropospheric aerosol parameters from multiwavelength lidar sounding[J]. Applied Optics, 2002, 41(18): 3685-3699.
- [13] 王玉峰, 高飞, 朱承炫, 等. 对流层高度大气温度、湿度和气溶胶的拉曼激光雷达系统[J]. 光学学报, 2015, 35(3): 0328004.
Wang Y F, Gao F, Zhu C X, et al. Raman lidar for atmospheric temperature, humidity and aerosols up to troposphere height[J]. Acta Optica Sinica, 2015, 35(3): 0328004.
- [14] Wang K Q, Zhang M M, Tang J, et al. Deep learning wavefront sensing and aberration correction in atmospheric turbulence[J]. Photonix, 2021, 2(1): 1-11.
- [15] Jiang B, Zhu S, Ren L H, et al. Simultaneous ultraviolet, visible, and near-infrared continuous-wave lasing in a rare-earth-doped microcavity[J]. Advanced Photonics, 2022, 4(4): 046003.
- [16] Müller D, Wandinger U, Ansmann A. Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: simulation[J]. Applied Optics, 1999, 38(12): 2358-2368.
- [17] Veselovskii I, Kolgotin A, Griaznov V, et al. Inversion of multiwavelength Raman lidar data for retrieval of bimodal aerosol size distribution[J]. Applied Optics, 2004, 43(5): 1180-1195.
- [18] Di H G, Wang Q Y, Hua H B, et al. Aerosol microphysical particle parameter inversion and error analysis based on remote sensing data[J]. Remote Sensing, 2018, 10(11): 1753.
- [19] Donovan D P, Carswell A I. Principal component analysis applied to multiwavelength lidar aerosol backscatter and extinction measurements[J]. Applied Optics, 1997, 36(36): 9406-9424.
- [20] Veselovskii I, Dubovik O, Kolgotin A, et al. Linear estimation of particle bulk parameters from multi-wavelength lidar measurements[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2012, 5(5): 1135-1145.
- [21] Chemyakin E, Müller D, Burton S, et al. Arrange and average algorithm for the retrieval of aerosol parameters from multiwavelength high-spectral-resolution lidar/Raman lidar data [J]. Applied Optics, 2014, 53(31): 7252-7266.
- [22] Ansmann A, Riebesell M, Wandinger U, et al. Combined Raman elastic-backscatter LIDAR for vertical profiling of moisture, aerosol extinction, backscatter, and LIDAR ratio[J]. Applied Physics B, 1992, 55(1): 18-28.
- [23] Liu D, Yang Y Y, Cheng Z T, et al. Retrieval and analysis of a polarized high-spectral-resolution lidar for profiling aerosol optical properties[J]. Optics Express, 2013, 21(11): 13084-13093.
- [24] Xiao D, Wang N C, Shen X E, et al. Development of ZJU high-spectral-resolution lidar for aerosol and cloud: extinction retrieval

- [J]. Remote Sensing, 2020, 12(18): 3047.
- [25] Bohren C F, Huffman D R. Absorption and scattering by a sphere[M]//Absorption and scattering of light by small particles. Singapore: John Wiley & Sons Inc, 1998: 82-129.
- [26] Mishchenko M I, Travis L D, Kahn R A, et al. Modeling phase functions for dustlike tropospheric aerosols using a shape mixture of randomly oriented polydisperse spheroids[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1997, 102(D14): 16831-16847.
- [27] Dubovik O, Holben B, Eck T F, et al. Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations[J]. Journal of the Atmospheric Sciences, 2002, 59(3): 590-608.
- [28] 卫晓东, 张华. 非球形沙尘气溶胶光学特性的分析[J]. 光学学报, 2011, 31(5): 0501002.
Wei X D, Zhang H. Analysis of optical properties of nonspherical dust aerosols[J]. Acta Optica Sinica, 2011, 31(5): 0501002.
- [29] 周妹, 常建华, 陈思成, 等. 一种基于朴素贝叶斯分类器的气溶胶类型识别模型[J]. 光学学报, 2022, 42(18): 1801006.
Zhou M, Chang J H, Chen S C, et al. Aerosol type recognition model based on naive Bayesian classifier[J]. Acta Optica Sinica, 2022, 42(18): 1801006.
- [30] Wang N C, Xiao D, Veselovskii I, et al. This is FAST: multivariate Full-permutation based Stochastic forest method: improving the retrieval of fine-mode aerosol microphysical properties with multi-wavelength lidar[J]. Remote Sensing of Environment, 2022, 280: 113226.
- [31] Böckmann C. Hybrid regularization method for the ill-posed inversion of multiwavelength lidar data in the retrieval of aerosol size distributions[J]. Applied Optics, 2001, 40(9): 1329-1342.
- [32] Müller D, Wagner F, Althausen D, et al. Physical properties of the Indian aerosol plume derived from six-wavelength lidar Observations on 25 March 1999 of the Indian Ocean Experiment [J]. Geophysical Research Letters, 2000, 27(9): 1403-1406.

Retrieval of Aerosol Particle Size Distribution from Multi-Wavelength Lidar

Li Xiaotao^{1,2}, Liu Dong^{1,2,3,4*}, Xiao Da¹, Zhang Kai¹, Hu Xianzhe¹, Li Weize¹, Bi Lei⁵,
Sun Wenbo², Wu Lan¹, Liu Chong¹, Deng Jiesong¹

¹State Key Laboratory of Extreme Photonics and Instrumentation, College of Optical Science and Engineering,
Zhejiang University, Hangzhou 310027, Zhejiang, China;

²Donghai Laboratory, Zhoushan 316021, Zhejiang, China;

³Intelligent Optics & Photonics Research Center, Jiaxing Research Institute, Zhejiang University, Jiaxing 314000,
Zhejiang, China;

⁴Hangzhou Global Scientific and Technological Innovation Center, Zhejiang University, Hangzhou 311200,
Zhejiang, China;

⁵Key Laboratory of Geoscience Big Data and Deep Resource of Zhejiang Province, School of Earth Sciences,
Zhejiang University, Hangzhou 310027, Zhejiang, China

Abstract

Objective Atmospheric aerosols play a crucial role in climate change and atmospheric pollution. Multi-wavelength Raman lidars and lidars with high spectral resolution can accurately measure aerosol extinction and backscatter coefficients for retrieving aerosol particle size distribution, volume concentration, effective radius, and other microphysical properties, which is significant for studying regional and global ecological environments. However, retrieval errors exist in the extinction and backscattering coefficients detected by lidars. When the aerosol microphysical properties are retrieved, the number of unknown parameters required to be solved is often greater than that of optical measurement channels, which is a typical ill-posed inverse problem. As the retrieved results show significant uncertainty in some cases, additional constraints should be introduced to improve the retrieval stability. We propose an advanced regularization retrieval algorithm that introduces *a priori* mode radius range as a constraint to improve the retrieval accuracy of particle size distribution parameters of different aerosol types.

Methods In our study, an advanced retrieval algorithm for aerosol microphysical properties based on the regularization method is developed. The entire algorithm process is shown in Fig. 1. Based on the Tikhonov regularization retrieval, the reliable retrieval of microphysical particle properties can be realized with a combined data set of particle backscattering coefficients at 355, 532, and 1064 nm and extinction coefficients at 355 nm and 532 nm. Generally, only those solutions for which the optical discrepancy term takes its minimum are selected in retrieval, but here all individual solutions that are within a certain range around this minimum solution are averaged. As a result, the retrieval stability can be improved. Additionally, referring to the aerosol models from the AERONET database, we obtain the volume mode radius ranges of

coarse and fine mode aerosols. By employing this as a *a priori* constraint, further selection is performed on the reconstructed particle size distribution to obtain the final retrieved results after averaging.

Results and Discussions To test the effectiveness of a *a priori* mode radius constraints on improving the retrieval accuracy of particle size distribution, we conduct the simulations of four typical tropospheric aerosol types: (i) urban aerosols, (ii) smoke aerosols, (iii) desert dust aerosols, and (iv) marine aerosols, with parameters derived from observation data from several AERONET stations. Fig. 2 compares the distribution changes of reconstructed particle sizes after introducing a *a priori* constraints. Meanwhile, Table 2 quantitatively compares the results in Fig. 2 by adopting mean relative errors as the evaluation index. The comparison results indicate that introducing mode radius constraints significantly improves the retrieval results of coarse mode aerosols. Referring to the range of aerosol microphysical parameters (Table 3) given in historical data, we generate 1500 sets of bimodal log-normal distribution data to test the algorithm. Considering the effect of 20% random Gaussian noise, the relative errors of the retrieved effective radius, volume concentration, and surface area concentration are controlled within the range of $\pm 33\%$, $\pm 45\%$, and $\pm 50\%$ respectively in the cases over 90%. This indicates that the algorithm has sound stability and can tolerate input error effects within a certain range.

Conclusions We propose an advanced retrieval algorithm for aerosol microphysical properties based on the regularization method, which significantly improves the stability and accuracy of retrieval and solves the problem of large retrieved errors in some cases. The proposed algorithm improves the remote detection technology of aerosols by multi-wavelength lidars. These measurements can provide accurate information about aerosol microphysical properties. The vertical profile of aerosol parameters obtained from lidar detection can be a great improvement of aerosol modeling, which will help study the influence of aerosols on climate and environment.

Key words atmospheric optics; multi-wavelength lidar; regularization method; aerosol particle size distribution; microphysical properties