

中国科学技术大学

研究生学位论文开题报告

论文题目 林火混合含烟颗粒形态及
辐射效应数值研究

学生姓名 罗杰

学生学号 BA18232032

指导教师 张永明

所在院系 火灾科学国家重点实验室

学科专业 安全科学与工程

研究方向 烟颗粒辐射

填表日期 2020 年 1 月 11 日

中国科学技术大学研究生院培养办公室

二零零四年五月制表

说 明

1. 抓好研究生学位论文开题报告工作是保证学位论文质量的一个重要环节。为加强对研究生培养的过程管理，规范研究生学位论文的开题报告，特印发此表。
2. 研究生一般应在课程学习结束之后的第一个学期内主动与导师协商，完成学位论文的开题报告。
3. 研究生需在学科点内报告，听取意见，进行论文开题论证。
4. 研究生论文开题论证通过后，在本表末签名后将此表交所在学院教学办公室备查。

一. 选题依据

1. 阐述该选题的研究意义, 分析该研究课题国内外研究的概况和发展趋势。

1.1 选题意义

森林火灾作为最常见的灾害之一, 使人类财产、健康安全遭受重大损失的同时, 同样给环境、气候带来严重危害。一方面, 林火发生时, 会向大气当中排放大量细小颗粒物, 严重增加空气中 PM2.5 含量, 给人类呼吸系统带来重大危害。结合大气化学模型及统计分析, Crippa [1]等发现 2015 年秋季亚洲赤道地区林火可将 PM2.5 浓度由约 $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 提升至 $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上, 造成 11,880 人的超额死亡率。通过对南亚研 23 个城市数值究, [2]等发现有 10 座城市林火排放颗粒为 PM2.5 的主要来源, 严重影响了人们的生命安全, 因此对林火排放颗粒实时监测具有重要意义。光学遥感作为大气颗粒物监测的重要手段, 由于其实时、覆盖面广等特点近年来在林火颗粒物监测中逐渐得到了应用。现主流颗粒物光学遥感方法通常基于一系列颗粒粒径分布、折射率等基本微观物理特性及地球表面反照率等信息, 采用颗粒物辐射模型及辐射传输模型计算辐射通量查找表。通过寻找计算辐射通量与测量辐射通量的最佳匹配反演颗粒物微观物理特征。**颗粒物辐射特性作为颗粒物光学遥感的基本组成部分, 在颗粒实时监测中扮演着必不可少的角色。**

另一方面, 林火烟颗粒通过散射和吸收太阳辐射改变大气辐射强迫效应, 严重影响区域及全球气候。[3]将林火排放添加至气候区域模型后发现林火含碳颗粒严重改变了温度及湿度的垂直分布。现全球气候变暖进一步促进了大型林火的发生, 2019 年亚马逊持续几个月的森林大火让人类正丧失着抵御气候变化的最后一道防线, **对林火颗粒物气候效应研究刻不容缓。**颗粒物辐射模块作为气候模型的重要子模块, 对于风场、温度、降雨等准确表征十分重要。优秀的气候模型必然考虑颗粒物的辐射反馈效应。基本思路及流程为: 对于每个网格, 基于颗粒物浓度、混合特性、粒径及折射率等信息, 采用颗粒物辐射模型计算辐射特性, 并将其反馈于大气风场、降雨等模拟中。因此烟颗粒辐射特性研究对于林火气候预测具有重要意义。但由于林火烟颗粒形态、混合状态、粒径等特征准确模拟十分困难, **林火烟颗粒辐射特性的准确计算仍然有待于进一步研究。**

林火含碳烟颗粒作为林火颗粒物的重要成分, 近年来其辐射特性研究逐渐成为大气环境及遥感领域研究的热点。林火含碳烟颗粒作为大气中主要的吸收性颗粒物, 主要成分为黑碳 (BC) 及有机碳 (OC)。黑碳在紫外到近红外波段均具有较强的吸收性, 现在研究认为**黑碳已超过甲烷成为全球第二大暖化物质。**近年来, 黑碳辐射已成为全球气候研究的热点。黑碳气溶胶辐射特性严重受到粒径、形态及混合特性的影响, 黑碳辐射特性的准确模拟预测对全球气候研究具有重要意义。20 世纪到 21 世纪初, 有机碳通常被认为是散射物质, 主要起大气冷却作用。但近年来研究表明, 有机碳在紫外波段具有较强的吸收性, 在某些区域其大气暖化作用甚至与黑碳相当。相比与黑碳气溶胶, 有机碳辐射特性更为复杂, 其在紫外到近红外波段具有较强的光谱依耐性。因此对有机碳辐射特性表征已成为全球气候研究的另一热点。林火发生时, 林火烟颗粒中黑碳及有机碳通常相互混合, 其辐射特性极其复杂。**研究林火混合含碳烟颗粒不同成分辐射耦合效应对于林火气候预测具有十分重要的意义。**

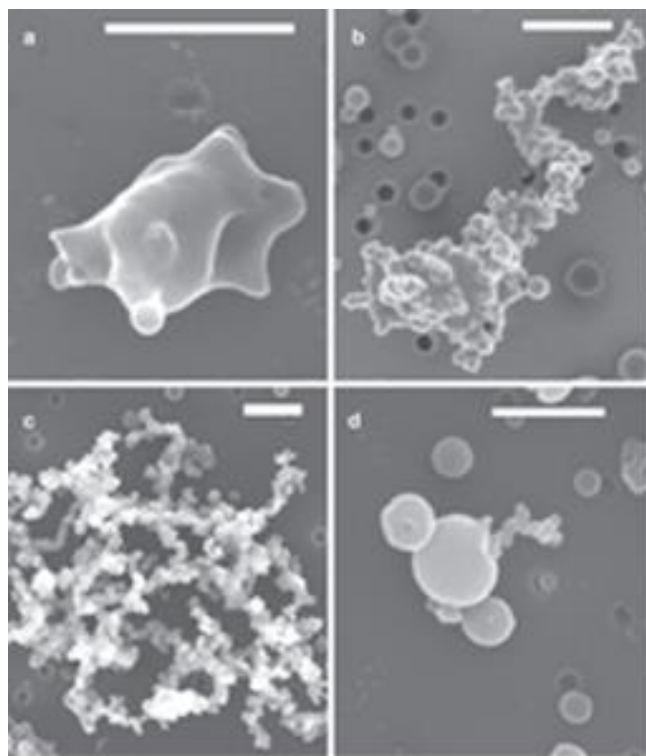


图 1 林火烟颗粒电镜采样图像

在现主流林火气候模型及遥感模型中，均假设颗粒物形态为球型，以便采用 Mie 散射理论快速计算其辐射特性。但通过现场采样分析，大多数学者[4]发现林火烟颗粒并非球型，而呈现完全不规则的形状，如图 1 所示。众多实验及模拟研究表明，遥感及气候模型中对烟颗粒形态的过度简化会造成辐射特性的巨大误差，一个比 Mie 理论更精确的辐射模型尤为重要。近年来，非球辐射模型研究逐步得到发展。基本思路是基于透射及扫描电镜图像，分析颗粒物形态特征，重建颗粒物真实形态，并采用 T 矩阵、离散偶极子（DDA）等数值方法计算颗粒物辐射特性。此方法广泛应用至粉尘、冰晶等颗粒物辐射特性研究中。但极少有研究人员针对形态更为复杂的林火混合烟颗粒，如何构建林火混合烟颗粒辐射非球模型仍然有待于进一步研究。构建林火混合烟颗粒辐射模型难度在于：（1）林火混合烟颗粒形态多样，难以用一种模型表征。尽管裸露黑碳颗粒可近似成分形结构，有机碳颗粒通常可认为球型，但两者混合呈现出极为复杂的形态。一些研究提出基于烟颗粒透射多角度采样图像，采用计算机三维重建的方法构建烟颗粒非球模型，但林火烟颗粒形态复杂多样，对大气中所有烟颗粒采样并重建其真实形状不太现实，因此基于计算机模拟重建的方法近年来得到了发展。但（2）林火混合烟颗粒复杂形态产生物理、化学过程仍然不清楚，从而造成计算机模拟机制不确定。因此有必要分析林火混合烟颗粒复杂形态生成的物理化学过程，为烟颗粒非球辐射模型构建提供理论依据。（3）尽管裸露黑碳颗粒呈现分形结构，但与有机碳混合后呈现十分复杂的形态。现对混合烟颗粒采样及图像处理方法将混合烟颗粒仍然当成分形结构处理，且应用分形结构的结论处理混合烟颗粒图像。但有机碳与黑碳内混后如何影响分形准则则仍然不清晰，研究不同混合形态对林火混合烟颗粒分形准则的影响有助于混合烟颗粒实验采样分析。

烟颗粒作为大气中主要吸收性颗粒物，遥感观测气溶胶吸收特性常用于推断烟颗粒含量。但黑碳及有机碳吸收所占比例严重影响烟颗粒遥感反演。黑碳通常被认为是大气中的主流吸收性颗粒物，但学者逐渐发现某些有机碳在紫外到可见光波段也具有较强的吸收性。有机碳的吸收特性十分复杂，具有较强的光谱依赖性，因此有机碳吸收特性的准确评估十分困难。近年来，研究人员针对有机碳的强光谱依赖及黑碳的弱光谱依赖，提出采用多波长遥感来量化有机碳的吸收。主

要思路为：首先认为近红外波段所有吸收均来自于黑碳，假设黑碳吸收埃氏指数(AAE)为 1，基于近红外波段吸收推断黑碳在紫外波段的吸收，用紫外波段总吸收减去黑碳吸收即为有机碳在紫外波段的吸收。虽然黑碳颗粒 AAE 为 1 常被采用，但严重受到形态、粒径等特征的影响。尽管有研究人员采用 Mie 理论限制粒径的影响，但形态及混合特性产生的不确定性不可消除。因此，有必要评估林火混合烟颗粒形态及混合特性对有机碳吸收遥感推断的影响。

除此之外，由于 Mie 理论计算结果会造成烟颗粒辐射特性的巨大误差，有必要将林火混合烟颗粒模型应用于烟颗粒遥感及林火气候模型中。然而，林火烟颗粒非球辐射模型在遥感、气候等大型模型的应用严重受到计算资源的限制。常规简单非球颗粒（如粉尘、冰晶等）辐射模型应用通常采用先构建查找表，再插值的方法。但主流的辐射计算数值方法均是形态越复杂，计算量越大。对于形态极为复杂的林火混合烟颗粒，构建完整、准确的辐射特性查找表计算资源需求巨大。随着机器学习等统计学方法的发展，逐渐有学者开始对烟颗粒辐射特性参数化进行研究。但现存在的参数化方案严重受到颗粒物粒径、形态、折射率的限制。一个有效且适用性广的参数化方案对于烟颗粒非球模型在遥感、气候等大型模型的应用尤为重要，因此有必要进一步优化林火烟颗粒辐射特性参数化方案。

开展林火混合含碳烟颗粒形态及辐射特性数值研究，将结合林火混合含碳烟颗粒形貌分析、辐射特性数值计算方法，构建林火混合含碳烟颗粒辐射模型，研究混合含碳烟颗粒不同成分辐射耦合机制及对烟颗粒遥感推断的影响，优化林火烟颗粒辐射特性参数化方案，高效耦合烟颗粒非球辐射模型及气候模型，本课题将有助于林火烟颗粒遥感及林火烟颗粒气候效应研究。

1.2 国内外研究现状

1.2.1 混合烟颗粒形貌

裸露黑碳烟颗粒的形貌是由数十、数百、数千个基本碳粒子组成，呈链状、团状、枝状和簇状等结构形式。研究人员普遍认为分形结构可高度反映烟颗粒形貌特征，数学上可由分形准则表示[4]：

$$N_s = k_0 \left(\frac{R_g}{R} \right)^{D_f} \quad (1)$$

$$R_g^2 = \frac{1}{N_s} \sum_{i=1}^{N_s} l_i^2 \quad (2)$$

其中 N_s 为烟颗粒主粒子数目， R 为主粒子半径， k_0 及 D_f 分别表示分形前置因子及分形维数， l_i 代表第 i 个主粒子到颗粒物质量中心的距离。通过扩散受限簇-簇算法(DLCA)，假设主粒子间完美点接触，大多数学者发现模拟黑碳颗粒分形维数约 1.8，分形前置因子约 1.34 [5] [6]。虽然分形维数测量值与 DLCA 模拟值基本一致，但实验测量前置因子通常严重偏离 1.34 [7]。原因主要在于以下几方面：首先主粒子粒径不固定，通常在同一黑碳凝聚体中观察到大小不一的基本黑碳主粒子，且主粒子粒径可影响烟颗粒分形参数。除此之外，在碳烟形成主要过程为碳烟成核；碳烟生长与氧化。在碳烟成核后，经常呈现液态状。不同碳烟核可凝并成较大的碳烟凝聚体。但在凝并过程中，碳烟核并不是完美接触，而是呈现紧缩、重叠等现象，从而造成碳烟颗粒（光学上通常称为黑碳）形貌偏离完美的分形结构。

绝大多数裸露有机碳呈现球型，但不同条件下有机碳微观特征上存在较大差异。通过电镜观察发现，新产生的有机碳通常呈现油状，在大气环境中有机碳却经常呈现稳定的球型结构，这类球型有机碳通常被称为焦油球(tar ball)。虽然现在对焦油球仍然没有一个明确的定义，大多数学者认为是大气老化的产物。其中一个证据是，[8]等通过对现场林火颗粒物采样分析，发现焦油球的比例在火场附近小于 1%，但在风场下游却增至约 31-45%。尽管如此，在现多数研究中，均假设裸露有机碳为球型。但当黑碳与有机碳混合时，呈现出极为复杂的形态。有机碳油状物与稳定的

焦油球均可与黑碳混合,严重影响黑碳分形特性[9]。现对林火混合烟颗粒形态研究极其有限,但林火中烟颗粒经常呈现内混状态,只有约4%的黑碳与有机碳外混[10],因此有必要分形林火混合烟颗粒形态特征,构建林火烟颗粒非球辐射模型。

1.2.2 混合烟颗粒分形特征

分形分析通常被用于分析裸露黑碳烟颗粒形貌特征。对于混合烟颗粒,由于黑碳结构比较稳定,有机碳结构不固定结构容易变化,在对混合烟颗粒形态分形分析时,通常将黑碳看作主体框架,有机碳覆盖在黑碳外围。因此,逐渐有研究应用分形结构理论基于透镜图像分析大气混合含碳颗粒形态特征[11][12]。然而极少有研究验证分形特征分析方法在混合烟颗粒形貌分析中的适用性。尽管[6]等通过对混合烟颗粒分形特征分析发现,混合后分形维数基本不变化,前置因子增大。但在他们的研究中,假设其它成分均匀分布在黑碳外部, R_g 可近似不变。但实际林火烟颗粒混合形态多样,因此有必要分析各类混合形态对混合烟颗粒分形特征的影响。

1.2.3 混合烟颗粒非球辐射模型

Mie 理论通常应用于遥感及气候模型中,但大量实验及模拟研究表明,过度的形态简化会造成巨大的计算误差。因此近年来,非球辐射模型得到了发展。烟颗粒作为形态高度复杂的颗粒物,其非球特征尤为受到关注。[10]等将火场中混合后黑碳颗粒分为四类:(1)裸露黑碳,图1c,代表外部混合状态;(2)嵌入结构,图1a;(3)部分覆盖,图1b;(4)内部包含,图1d)。如上所述,裸露黑碳烟颗粒通常可用分形结构近似,但大气中黑碳通常与其它物质混合。

对于嵌入结构,研究人员通常认为有机碳分布在黑碳颗粒外部。其中最为简单的模型为 closed-cell 模型。该模型将混合后的烟颗粒仍然假设为主粒子为点接触的分形结构。不同于裸露黑碳颗粒, closed-cell 模型[13]假设每一个主粒子均假设由黑碳核与有机碳壳组成。这种模型可近似模拟薄覆盖嵌入结构,计算速率较快。但该模型假设黑碳核位于有机碳壳中心,实际大气中有机碳随机分布,因此有必要研究主粒子覆盖方式对辐射混合烟颗粒辐射特性的影响。除此之外,当黑碳混合比例较小时,分形结构严重简化了颗粒形态,可造成计算烟颗粒辐射特性巨大误差。另一种模型假设黑碳核心为分形结构,其它成分等厚度覆盖在黑碳表面。这种模型无法控制各类成分的混合比例,造成辐射特性的巨大不确定性[14][15]。[15]提出一种等体积分数的模型,改模型假设黑碳核心为分形结构,在黑碳边缘等概率添加覆盖层,直到体积分数达到要求为止。[16]等提出了一种类似的结构。这类结构假设其他成分覆盖在黑碳边缘,且近似于均匀覆盖。难以模拟林火场景有机碳与黑碳随机覆盖的特征。

对于部分覆盖,可认为与嵌入结构具有类似的特征。但不同的是,部分覆盖结构中有机碳通常集中分布在黑碳的部分区域。对于这种结构,常假设有机碳成分为球型,黑碳颗粒为分形结构,两者直接混合。但这种假设严重简化了覆盖层的机构,也会对辐射特性计算造成较大误差。因此逐渐有人考虑到覆盖层结构对烟颗粒辐射的影响,但仍然缺乏实验验证,且均是根据形态假设形态,缺乏物理过程。因此,比较精确的辐射模型仍然有待于进一步研究。对于内部包含结构,可认为有机碳成分较多时,将黑碳大部分吞没。对于这类结构大部分研究假设有机碳为球型,黑碳为分形结构,两者内部混合。

尽管大量研究已提出各类混合烟颗粒辐射模型,但绝大多数模型均针对某一具体形态。大气环境中,烟颗粒混合形态多样,我们无法采用某一特定形态代替所有混合烟颗粒。因此,有必要研究混合烟颗粒覆盖规则,生成具有不同覆盖结构的混合烟颗粒模型,研究覆盖方式对混合烟颗粒辐射特性的影响机制,为气候、遥感模型中混合烟颗粒辐射特性参数化提供模型基础。

1.2.4 林火混合含碳烟颗粒吸收特性

黑碳颗粒通常被认为主要的吸收性气溶胶,但其它非吸收性成分覆盖在黑碳表面时总体吸收也会增强,大部分学者将这种现象称为“透镜效应 (lensing effect)”[17]。大量学者研究不同环境下非吸收物质对黑碳吸收强化的影响。例如,[18]对日本城市地区颗粒物测量发现黑碳吸收强化约1.1-1.4;而[19]发现新排放的烟颗粒吸收强化约 1.4 ± 0.3 ,但当对于老化的颗粒吸收强化可约达3。

总之，不同环境下吸收强化的测量值存在较大差异。

学者通常认为不同研究测量值得差异来自于颗粒物不同混合状态、形态及粒径等的影响。数值模拟作为揭示复杂辐射特性机制的有力工具，被广泛应用于含碳烟颗粒吸收模拟研究中。基于 Mie 理论，[20]等发现当黑碳被非吸收性物质覆盖时，其吸收可被放大约 3 倍；[21]等采用叠加 T 矩阵方法，研究了形态、粒径、折射率对吸收强化的影响；[22]等通过假设黑碳老化形态变化过程，发现其吸收强化被限制在 3.5 以下。在上述的研究中，除黑碳意外其它成分假设为非吸收性物质，因此黑碳吸收增强均来自于“透镜效应”。因此，大部分学者将“透镜效应”与黑碳吸收强化混淆。在文献[17]中，将透镜效应定义为黑碳覆盖其他物质后吸收的增强。对于林火混合含碳烟颗粒，这一定义不明确。这是由于林火颗粒中有机碳在紫外至可见光波段具有较强吸收，黑碳吸收强化只是来自于透镜效应与有机碳吸收的综合作用。因此，有必要阐明林火混合烟颗粒不同成分吸收耦合机制。

由于大气中含碳烟颗粒作为气溶胶吸收的主要来源，遥感测量的气溶胶吸收特性常用来推断大气中含碳烟颗粒含量。但有机碳及黑碳的混合加大了这一工作的难度。因此，研究人员尝试推断各成分对总体吸收的贡献率。这一目的的实现通常利用黑碳有机碳不同光谱依赖性。在近红外波段，有机碳可认为不具吸收性，此时所有的吸收均来自于黑碳。黑碳在紫外波段的吸收经常通过埃氏指数(AAE)推断：

$$AAE_{\lambda_1-\lambda_2} = \frac{\ln(abs_{\lambda_1}) - \ln(abs_{\lambda_2})}{\ln(\lambda_1) - \ln(\lambda_2)} \quad (3)$$

式中 λ_1 ， λ_2 表示两个波长， abs_{λ_1} ， abs_{λ_2} 表示对应波长的吸收。在近红外波段黑碳的吸收被测量后，若已知 AAE，则可推断黑碳在紫外波段的吸收。用紫外波段总吸收减去黑碳吸收即为有机碳的吸收。

这一方法严重依赖于黑碳 AAE 的选取。尽管黑碳颗粒经常被认为 AAE 为 1，但测量表明黑碳 AAE 具有较大不确定性，通常在 0.6-1.3 范围波动[23] [24]，形态、粒径及折射率均会对黑碳 AAE 造成巨大的影响[25]。更为重要的是，在林火中黑碳经常与有机碳内部混合，吸收特性极为复杂，因此采用 AAE 推断有机碳吸收方法的适用性有待于进一步评估。

1.2.5 烟颗粒辐射模型与气候模型耦合

气候模型中，辐射特性通常采用 Mie 理论计算，严重简化了烟颗粒形态。虽然大量研究人员提出了一系列烟颗粒非球模型，但很少有人将其与气候模型耦合。虽然[26]将新产生的烟颗粒非球模型与大气化学传输模型耦合，但未考虑老化的颗粒。除此之外，他只考虑了烟颗粒形态城市地区强迫效应的影响，对于林火气候效应，现在仍然缺乏研究。因此有必要针对林火区域，将新产生及老化林火烟颗粒非球辐射模型耦合至气候模型，评估形态简化对林火气候的影响机制。

1.2.6 非球烟颗粒辐射特性参数化

对于非球烟颗粒辐射特，从物理角度，辐射特性数值方法可从电磁理论出发揭示颗粒物辐射机制。但在实际应用中，一个直接的形态-辐射特性参数化关系更为高效方便。因此，一些研究人员尝试用简单的经验公式代替复杂的数值计算过程。[27]采用三阶多项式拟合黑碳光学特性与等体积粒径之间的关系，尽管吸收截面拟合较好，但散射、非对称参数拟合性能较差。[28]采用更复杂的含对数项公式拟合裸露黑碳烟颗粒光学特性与主粒子个数的关系，但其主粒子粒径固定在 50nm，此关系在其他条件是否适用有待验证。因此有必要研究适用性更广的烟颗粒参数化方法。

综上所述，虽然研究人员开展了一系列大气含碳烟颗粒辐射特性测量及模拟工作，但对于林火混合含碳烟颗粒不同成分辐射耦合机制揭示不完全，形态物理变化机制不清晰，混合烟颗粒非球辐射模型仍有待优化，非球烟颗粒辐射模型在气候遥感应用鲜见，非球烟颗粒辐射参数化方案仍有待完善。

2. 国内外主要参考文献（列出作者、论文名称、期刊名称、出版年月）。

- [1] P. Crippa, S. Castruccio, S. Archer-Nicholls, G. Lebron, M. Kuwata, A. Thota, S. Sumin, E. Butt, C. Wiedinmyer, D.J.S.r. Spracklen, Population exposure to hazardous air quality due to the 2015 fires in Equatorial Asia, 6 (2016) 37074.
- [2] K.L. SHRESTHA, MODELING THE CONTRIBUTION OF WILDFIRE EMISSIONS TO AIR POLLUTION IN KATHMANDU VALLEY.
- [3] G. Grell, S. Freitas, M. Stuefer, J.J.A.C. Fast, Physics, Inclusion of biomass burning in WRF-Chem: impact of wildfires on weather forecasts, 11 (2011).
- [4] M.I. Mishchenko, L.D. Travis, A.A. Lacis, Scattering, absorption, and emission of light by small particles, Cambridge university press 2002.
- [5] R. Dhaubhadel, F. Pierce, A. Chakrabarti, C.J.P.R.E. Sorensen, Hybrid superaggregate morphology as a result of aggregation in a cluster-dense aerosol, 73 (2006) 011404.
- [6] W.R. Heinson, P. Liu, R.K. Chakrabarty, Fractal scaling of coated soot aggregates, Aerosol Sci Tech 51 (2017) 12-19.
- [7] H.M. Amin, A. Bennett, W.L.J.P.o.t.C.I. Roberts, Determining fractal properties of soot aggregates and primary particle size distribution in counterflow flames up to 10 atm, 37 (2019) 1161-1168.
- [8] A.J. Sedlacek III, P.R. Buseck, K. Adachi, T.B. Onasch, S.R. Springston, L.J.A.C. Kleinman, Physics, Formation and evolution of tar balls from northwestern US wildfires, 18 (2018) 11289-11301.
- [9] S. China, B. Scarnato, R.C. Owen, B. Zhang, M.T. Ampadu, S. Kumar, K. Dzepina, M.P. Dziobak, P. Fialho, J.A. Perlinger, J. Hueber, D. Helmig, L.R. Mazzoleni, C. Mazzoleni, Morphology and mixing state of aged soot particles at a remote marine free troposphere site: Implications for optical properties, Geophys Res Lett 42 (2015) 1243-1250.
- [10] S. China, C. Mazzoleni, K. Gorkowski, A.C. Aiken, M.K. Dubey, Morphology and mixing state of individual freshly emitted wildfire carbonaceous particles, Nat Commun 4 (2013).
- [11] K. Adachi, S.H. Chung, P.R. Buseck, Shapes of soot aerosol particles and implications for their effects on climate, J Geophys Res-Atmos 115 (2010).
- [12] Y.Y. Wang, F.S. Liu, C.L. He, L. Bi, T.H. Cheng, Z.L. Wang, H. Zhang, X.Y. Zhang, Z.B. Shi, W.J. Li, Fractal Dimensions and Mixing Structures of Soot Particles during Atmospheric Processing, Environ Sci Tech Let 4 (2017) 487-493.
- [13] Y. Wu, T.H. Cheng, X.F. Gu, L.J. Zheng, H. Chen, H. Xu, The single scattering properties of soot aggregates with concentric core-shell spherical monomers, J Quant Spectrosc Ra 135 (2014) 9-19.
- [14] A. Soewono, S.N. Rogak, Morphology and Optical Properties of Numerically Simulated Soot Aggregates, Aerosol Sci Tech 47 (2013) 267-274.
- [15] Y. Wu, T.H. Cheng, L.J. Zheng, H. Chen, Models for the optical simulations of fractal aggregated soot particles thinly coated with non-absorbing aerosols, J Quant Spectrosc Ra 182 (2016) 1-11.
- [16] M. Kahnert, Optical properties of black carbon aerosols encapsulated in a shell of sulfate: comparison of the closed cell model with a coated aggregate model, Opt Express 25 (2017) 24579-24593.
- [17] D.T. Liu, J. Whitehead, M.R. Alfarra, E. Reyes-Villegas, D.V. Spracklen, C.L. Reddington, S.F. Kong, P.I. Williams, Y.C. Ting, S. Haslett, J.W. Taylor, M.J. Flynn, W.T. Morgan, G. McFiggans, H. Coe, J.D. Allan, Black-carbon absorption enhancement in the atmosphere determined by particle mixing state, Nat Geosci 10 (2017) 184-U132.
- [18] H. Naoe, S. Hasegawa, J. Heintzenberg, K. Okada, A. Uchiyama, Y. Zaizen, E. Kobayashi, A. Yamazaki, State of mixture of atmospheric submicrometer black carbon particles and its effect on particulate light absorption, Atmos Environ 43 (2009) 1296-1301.

- [19] X.J. Cui, X.F. Wang, L.X. Yang, B. Chen, J.M. Chen, A. Andersson, O. Gustafsson, Radiative absorption enhancement from coatings on black carbon aerosols, *Sci Total Environ* 551 (2016) 51-56.
- [20] T.C. Bond, G. Habib, R.W. Bergstrom, Limitations in the enhancement of visible light absorption due to mixing state, *J Geophys Res-Atmos* 111 (2006).
- [21] X.L. Zhang, M. Mao, Y. Yin, B. Wang, Numerical Investigation on Absorption Enhancement of Black Carbon Aerosols Partially Coated With Nonabsorbing Organics, *J Geophys Res-Atmos* 123 (2018) 1297-1308.
- [22] Y. Wu, T.H. Cheng, D.T. Liu, J.D. Allan, L.J. Zheng, H. Chen, Light Absorption Enhancement of Black Carbon Aerosol Constrained by Particle Morphology, *Environ Sci Technol* 52 (2018) 6912-6919.
- [23] M. Schnaiter, H. Horvath, O. Mohler, K.H. Naumann, H. Saathoff, O.W. Schock, UV-VIS-NIR spectral optical properties of soot and soot-containing aerosols, *J Aerosol Sci* 34 (2003) 1421-1444.
- [24] T.W. Kirchstetter, T. Novakov, P.V. Hobbs, Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon, *J Geophys Res-Atmos* 109 (2004).
- [25] C. Liu, C.E. Chung, Y. Yin, M. Schnaiter, The absorption Angstrom exponent of black carbon: from numerical aspects, *Atmos Chem Phys* 18 (2018) 6259-6273.
- [26] M. Kahnert, Modelling the optical and radiative properties of freshly emitted light absorbing carbon within an atmospheric chemical transport model, *Atmos Chem Phys* 10 (2010) 1403-1416.
- [27] M. Kahnert, Numerically exact computation of the optical properties of light absorbing carbon aggregates for wavelength of 200 nm-12.2 μ m, *Atmos Chem Phys* 10 (2010) 8319-8329.
- [28] A.J.A. Smith, R.G. Grainger, Simplifying the calculation of light scattering properties for black carbon fractal aggregates, *Atmos Chem Phys* 14 (2014) 7825-7836.

二. 已取得的与论文研究内容相关的成果

已发表或被接收发表的文章目录或其它相关研究成果。

1. Luo, J., Y. M. Zhang, and Q. X. Zhang (2018a), A model study of aggregates composed of spherical soot monomers with an acentric carbon shell, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 205, 184-195.
2. Luo, J., Y. M. Zhang, Q. X. Zhang, F. Wang, J. Liu, and J. J. Wang (2018c), Sensitivity analysis of morphology on radiative properties of soot aerosols, *Optics Express*, 26(10), A420-A432.
3. Luo, J., Y. Zhang, F. Wang, J. Wang, and Q. Zhang (2018d), Applying machine learning to estimate the optical properties of black carbon fractal aggregates, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 215, 1-8.
4. Luo, J., Zhang, Y., Wang, F., and Zhang, Q.: Effects of brown coatings on the absorption enhancement of black carbon: a numerical investigation, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 16897-16914, 10.5194/acp-18-16897-2018, 2018.
5. Luo, J., Zhang, Q., Luo, J., Liu, J., Huo, Y., & Zhang, Y. (n.d.). Optical modeling of black carbon with different coating materials: The effect of coating configurations. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, n/a(n/a) (已接收, published online)
6. Zhang, Q., Liu, J., Luo, J., Wang, F., Wang, J., Zhang, Y. (2020). Characterization of Typical Fire and Non-fire Aerosols by Polarized Light Scattering for Reliable Optical Smoke Detection, Springer Singapore, Singapore, 791-801.
7. Wang, W.; Zhang, Q.; Luo, J.; Zhao, R.; Zhang, Y (2020), Estimation of Forest Fire Emissions in Southwest China from 2013 to 2017. *Atmosphere*, 11, 15.

三. 研究内容和研究方法

主要研究内容及预期成果，拟采用的研究方法、技术路线、实验方案的可行性分析。

(一) 研究目标

针对现有模型对林火复杂混合烟颗粒辐射特性预测不准确以及对林火混合烟颗粒辐射耦合效应理解不完全的问题，基于林火烟颗粒透镜图像，结合 DDA 及 T 矩阵等辐射特性数值计算方法，建立林火烟颗粒非球辐射模型；计算不同形态、混合状态的烟颗粒辐射特性，揭示林火混合烟颗粒形态、混合状态及其辐射的耦合机制，并评估林火烟颗粒辐射对林火气候、遥感的影响；优化复杂烟颗粒参数化方法，为林火烟颗粒非球辐射模型在大型林火气候、遥感等模型应用提供技术支撑。

(二) 研究内容

1. 林火混合烟颗粒形态特征以及非球辐射模型

基于林火烟颗粒扫描及透射电镜采样图像，结合分形理论研究混合烟颗粒形态特征，并建立林火混合烟颗粒非球辐射模型。

2. 林火混合烟颗粒不同成分的吸收耦合效应

基于典型烟颗粒辐射模型，建立有机碳、黑碳颗粒吸收计算模型，研究有机碳对黑碳烟颗粒吸收的耦合机制。

3. 林火混合烟颗粒形态对有机碳吸收遥感推断的影响

基于建立的非球混合烟颗粒模型计算多波长混合烟颗粒吸收特性，采用 AAE 方法推断紫外波段有机碳吸收，并与有机碳“真实”吸收对照，评估形态对有机碳吸收遥感推断的影响。

4. 林火烟颗粒形态对气候辐射强迫效应的影响

通过将林火烟颗粒非球辐射模型耦合至气候模型及辐射传输计算模型，研究烟颗粒形态对气候辐射强迫效应的影响。

5. 基于机器学习林火烟颗粒参数化方案

基于烟颗粒非球模型计算辐射特性，采用机器学习等统计学方法找寻最优的烟颗粒形态-辐射特性参数化关系。

(三) 技术路线

```
graph TD; A[林火混合烟颗粒透镜图像] --> B[分析林火混合烟颗粒形态特征]; B --> C[林火混合烟颗粒非球辐射模型]; C --> D[基于机器学习的辐射特性参数化]; C --> E[林火混合烟颗粒不同成分辐射耦合]; C --> F[林火混合烟颗粒形态对烟颗粒遥感影响]; C --> G[林火混合烟颗粒形态对林火气候影响];
```

图 2 技术路线

本文主要关键技术难点

1. 林火混合烟颗粒复杂形态形成机制：现在林火混合烟颗粒复杂形态形成物理化学过程不清晰，导致计算计算机重建林火混合烟颗粒三维结构困难。

2. 林火烟颗粒非球辐射模型与林火气候模型耦合：需构建大型林火烟颗粒辐射特性查找表，修改气候模型，耦合辐射传输模型，有一定的难度及工作量。

（四）实施方案

1. 林火混合烟颗粒形态特征以及非球辐射模型

拟基于林火混合烟颗粒复杂形态形成的物理过程，采用计算机程序重建林火混合烟颗粒三维特征，并与林火混合烟颗粒采样图像对照，验证林火混合烟颗粒重建算法可行性，并结合分形理论研究黑碳烟颗粒与有机碳混合后分形准则的变化规律。结合 T 矩阵，离散偶极子(DDA)等电磁散射数值计算方法，构建林火混合烟颗粒非球辐射模型，研究林火混合烟颗粒形态对其单散射特性的影响。

2. 林火混合烟颗粒不同成分的吸收耦合效应

针对林火混合烟颗粒透镜效应、有机碳吸收等耦合机制阐明不清的问题，拟构建不同组成部分烟颗粒吸收模型。针对薄覆盖及厚覆盖的林火混合烟颗粒，拟采用如图 3 的非球辐射模型：

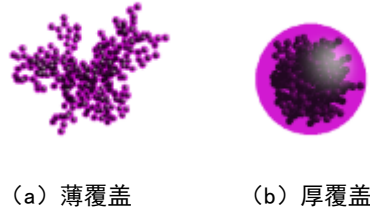


图 3 混合烟颗粒常用非球辐射模型

为计算混合烟颗粒有机碳吸收，拟采用与覆盖后混合烟颗粒形态一样的有机碳颗粒的吸收减去与黑碳核形态一样的有机碳颗粒的吸收，如图 4 所示：

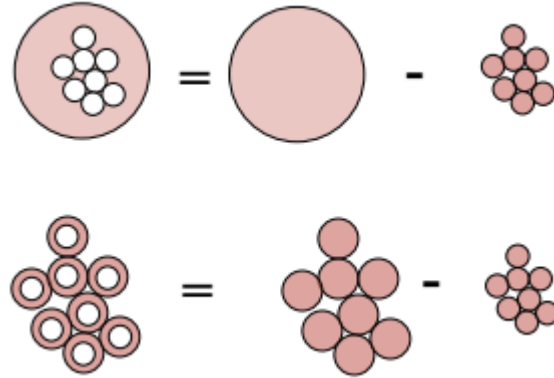


图 4 混合烟颗粒棕碳吸收计算方法

为评估林火混合烟颗粒覆盖后吸收耦合机制，拟定义参数 $E_{abs_internal}$ 代表烟颗粒内混与外混的比值：

$$E_{abs_internal} = \frac{C_{abs_coated}}{C_{abs_bare} + C_{abs_oc}} \quad (4)$$

此处 C_{abs_coated} ， C_{abs_bare} 及 C_{abs_oc} 分别表示林火混合烟颗粒、黑碳核以及 OC 覆盖层的吸收。当 $E_{abs_internal}$ 大于 1 则证明内混吸收大于外混吸收，这可以由透镜效应的吸收强化作用解释。但若 $E_{abs_internal}$ 小于 1，则必然存在另一种效应减弱总体吸收。本次设计有利于加深对林火混合烟颗粒辐射耦合效应的理解。

3. 林火混合烟颗粒形态对有机碳吸收遥感推断的影响

现部分学者采用多波长遥感测量，基于黑碳 AAE 推断有机碳吸收，但无法评估混合状态及形态的影响。针对这一问题，拟设计如图 5 的数值实验。采用林火混合烟颗粒非球辐射模型，分别计算紫外及近红外吸收的“伪测量”数据。基于近外“伪测量”，采用式 3 计算紫外波段黑碳的吸收，用紫外总体“伪测量”减去黑碳的推断吸收即为有机碳的吸收。真实有机碳吸收定义为混合吸收性有机碳烟颗粒吸收减去混合无吸收性材料烟颗粒吸收。对照推断有机碳及真实有机碳吸收的差异，评估形态及混合状态对林火混合烟颗粒吸收推断的影响。

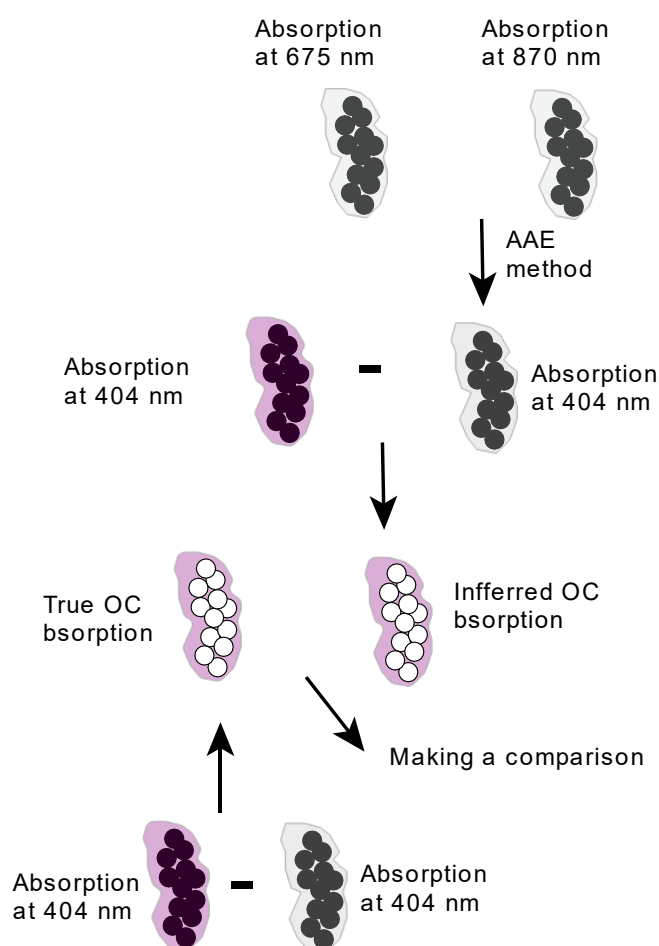


图 5 形态对有机碳吸收推断影响数值设计方案

4. 林火烟颗粒形态对气候辐射强迫效应的影响

拟针对美国某林火频发区域，如图 6，设计数值实验。拟先采用区域气候模型(WRF-chem),模拟美国某林火发生时的林火烟颗粒浓度分布。基于林火烟颗粒非球辐射模型，构建林火烟颗粒辐射特性查找表。修改光学计算模块(FlexAOD)以耦合林火非球烟颗粒辐射特性查找表，逐网格计算林火场景下烟颗粒光学特性。耦合辐射传输计算软件(LibRadtran),逐网格计算林火烟颗粒辐射通量，对比球形假设计算值，评估林火烟颗粒形态对林火区域气候辐射强迫效应的影响。

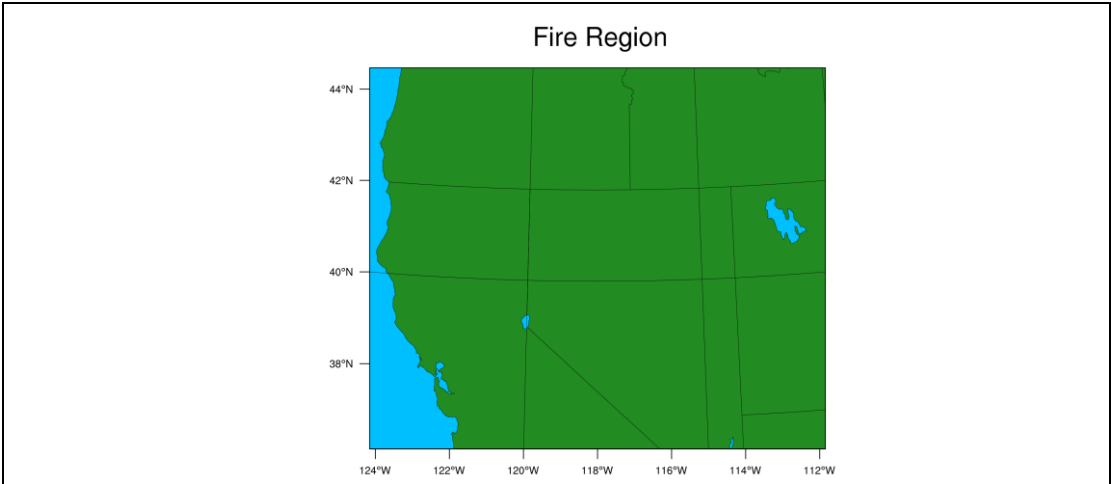


图 6 拟模拟的林火区域

5. 基于机器学习的辐射特性参数化方案

拟针对烟颗粒辐射特性数值计算量巨大且现有烟颗粒辐射特性参数化方案适用性受限的问题，拟采用支持向量机(SVM)等统计学习方法，寻找最优的形态-辐射特性参数化方案，以少量的数据集训练机器学习模型，以达到简化计算的目的。具体数值设计方案如图 7。首先采用 DDA、T 矩阵等数值方法，基于形态参数及林火烟颗粒非球辐射模型，计算林火烟颗粒辐射特性，构建林火烟颗粒形态-辐射特性数据集，采用支撑向量机等机器学习方法训练烟颗粒形态-辐射参数化模型，并与数值计算结果对比，评估机器学习在林火烟颗粒辐射特性参数化应用的可行性。

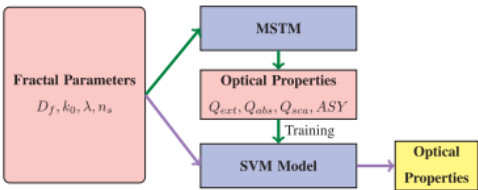


图 7 基于机器学习的辐射特性参数化数值设计方案

(五) 可行性分析

本课题的选题和设计方案切实可行，主要有以下几点：

1. 研究目标及内容明确，技术路线设计合理，实施方案详细具体、切实可行；
2. 中国科学技术大学超级中心为本课题提供了硬件基础；
3. DDA 开源软件 DDSCAT、T 矩阵开源软件 MSTM，开源林火气候模型 WRF-chem, 基于开源光学模块 FlexAOD 改进后的非球烟颗粒辐射计算版本以及开源辐射传输计算软件(LibRadtran)为本课题提供了软件基础；
4. 本人自主学习了大气辐射导论、统计学、大气物理与化学、大气模式及应用，大气统计学、机器学习、Python/C++/Matlab/NCL/Fortran 等编程语言，为本课题的实施提供了理论基础；
5. 本人硕博阶段一直从事相关方向的研究，并取得的一定的成果；
6. 研究主要花费是中国科学技术大学超算中心的机时费用，导师的国家自然科学基金面上项目可为本课题提供资金支持。

四. 课题研究的创新之处

研究内容、拟采用的研究方法、技术路线等方面有哪些创新之处。

本课题的创新点

1. 建立林火混合含碳烟颗粒非球辐射模型

基于林火烟颗粒采样图像，研究烟颗粒复杂形态形成机制，建立混合烟颗粒真实形态非球辐射模型，并评估混合烟颗粒形态对林火颗粒遥感及气候效应影响，为林火烟颗粒非球遥感及林火气候研究提供模型及理论支持；

2. 阐明混合烟颗粒黑碳及有机碳之间的辐射耦合效应

通过建立林火混合烟颗粒不同组分的非球辐射计算模型，阐明林火混合烟颗粒黑碳及有机碳之间的辐射耦合机制。

3. 林火非球辐射模型与大型林火气候模型耦合

通过构建林火烟颗粒辐射特性查找表，耦合气候模式、辐射传输模式、改进光学计算模型，将林火烟颗粒非球辐射模型耦合至大气候模型中。

4. 基于机器学习的复杂烟颗粒辐射特性参数化方法

利用机器学习在非线性拟合的优点，拟合烟颗粒形态及辐射特性间参数化关系，为烟颗粒复杂辐射模型的高效率应用提供理论支撑。

五. 研究工作进度安排

进度安排如下：

- 2018.9~2019.1 博士一年级上学期，进行充分调研，选题，并设计数值实验，这部分已经完成；
- 2019.2~2019.7 博士一年级下学期，基于机器学习，研究烟颗粒辐射特性参数化方法，这部分已完成部分工作；
- 2019.8~2019.12 博士二年级上学期，基于林火混合烟颗粒透镜图像，建立含碳烟颗粒非球模型，编程，进行数值模拟；该部分已完成；
- 2019.8~2019.12 博士二年级上学期，基于典型林火混合含碳烟颗粒非球模型，阐明混合含碳烟颗粒不同成分吸收耦合机制，这部分已完成；
- 2020.1~2020.7 博士二年级下学期及博士三年级上学期，采用所建立的烟颗粒非球辐射模型，评估烟颗粒形态对林火遥感监测的影响，该部分正在进行中；
- 2020.2~2020.8 博士二年级下学期及博士三年级上学期，同时进行将非球烟颗粒模型耦合至大气模型的工作，评估非球烟颗粒辐射对林火气候效应的影响；
- 2020.9-2021.6 继续深入研究混合烟颗粒混合物理机制及分形特性，完成博士论文撰写，准备答辩事宜，并完成答辩。

研究生本人签名： 罗杰

2020 年 01 月 11 日