

# 不同数值模式模拟黑碳气溶胶光学特性的差异分析

范哲源<sup>1,2</sup>, 王园园<sup>2\*</sup>, 李卫军<sup>2</sup>, 于明州<sup>1</sup>, 庞云尔<sup>2</sup>

<sup>1</sup>中国计量大学机电工程学院, 浙江 杭州 310018;

<sup>2</sup>浙江大学地球科学学院, 浙江 杭州 310027

**摘要** 大气黑碳气溶胶具有强吸光能力, 由于形状和混合结构十分复杂, 其光学特性具有较大不确定性。使用三维仿真建模工具 EMBS 建立不同分形维数( $D_f$  为 1.8 和 2.6) 和混合结构的黑碳单颗粒模型, 采用耦合离散偶极近似 (DDA) 方法计算光吸收强度 ( $E_{\text{abs}}$ )、单次散射反照率 (SSA) 和光吸收截面 ( $C_{\text{abs}}$ ), 并与多球 T 矩阵 (MSTM) 和 Mie 散射方法的计算结果进行对比。研究发现 MSTM 模型的  $E_{\text{abs}}$  结果对包裹程度  $F$  比较敏感, 而 DDA 模型的  $E_{\text{abs}}$  结果对黑碳包裹层厚度的敏感性更高。DDA 和 MSTM 模拟结果的差异主要来源于: 1) DDA 和 MSTM 方法中黑碳聚集体和包裹层形状的差异造成  $E_{\text{abs}}$  和  $C_{\text{abs}}$  的相对偏差分别为 20% 和 23%; 2) 黑碳包裹层的相对位置变化导致光学结果具有 2%~4% 的相对偏差。因此 DDA 和 MSTM 方法的模型形状和结构差异导致光学模拟结果可能出现较大差异。

**关键词** 大气光学; 黑碳气溶胶; 混合结构; 光吸收增强; 单次散射反照率; 光学模拟

中图分类号 X513

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS221291

## 1 引言

大气气溶胶是指悬浮在地球大气中的液态或固态粒子, 对气候变化及人类健康具有直接和间接的影响<sup>[1-2]</sup>。黑碳 (BC) 是大气气溶胶中的一种, 对太阳辐射具有强吸收能力, 能直接或间接影响区域和全球气候<sup>[3-5]</sup>。此外, 大气边界层上部的黑碳气溶胶还能通过加热大气产生穹顶效应, 加重城市灰霾污染<sup>[6]</sup>。研究黑碳气溶胶的辐射气候效应需要对其光学特性进行定量分析<sup>[7-8]</sup>。一些离线和在线的观测仪器能够测量黑碳气溶胶的散射和吸收特性<sup>[9]</sup>。例如, 单颗粒黑碳光度计 (SP2) 能够在线获取黑碳单颗粒的质量、粒径及混合状态。王利朋等<sup>[10]</sup>利用 SP2 分析南京北郊灰霾天和清洁天的气溶胶吸收和散射特性, 发现灰霾天气气溶胶吸收和散射系数的平均值分别为清洁天的 3.85 倍和 3.45 倍。Petzold 等<sup>[1, 11]</sup>利用黑碳仪获得了广州地区黑碳气溶胶在 370~950 nm 波段的光吸收强度  $E_{\text{abs}}$ , 发现黑碳的  $E_{\text{abs}}$  不仅受包裹层化学成分的影响, 还受黑碳本身化学成分的影响。徐政等<sup>[12]</sup>利用积分浊度计和黑碳仪分析发现济南市灰霾天黑碳气溶胶的散射系数和吸收系数分别是非灰霾天的 2.6 倍和 2.8 倍, 单次散射反照率 (SSA) 也高于非霾天气; 灰霾天大气二次气溶胶生成及黑碳气溶胶的形态变化是改变吸收系

数、散射系数的重要原因。

尽管仪器监测能够对黑碳气溶胶的光学特性进行研究, 但目前的监测仪器无法直接获取黑碳单颗粒的混合结构及其对黑碳光学特性的影响, 因此很多研究中使用数值模式模拟具有复杂混合结构的黑碳颗粒的光学特性。广泛应用的气溶胶光学数值模式主要有瑞利-甘散射 (RDG)、离散偶极子近似 (DDA) 法、多球 T 矩阵 (MSTM) 法和米氏 (Mie) 法<sup>[13]</sup>。DDA 能够对任意形状的黑碳颗粒进行光学模拟, 例如: Wang 等<sup>[14]</sup>利用 DDA 计算了多种混合结构的黑碳颗粒的  $E_{\text{abs}}$ , 发现黑碳单颗粒的混合结构是决定黑碳粒子群光吸收增强的重要因素。Liu 等<sup>[15]</sup>利用 MSTM 模拟发现具有非吸收性包裹层的黑碳颗粒的光吸收强度约可达到 2。尽管大量研究用数值模拟的方法分析气溶胶的光学特性, 但是这些研究中利用数值模式模拟建立的模型仍然与实际大气黑碳单颗粒的混合结构差异较大。另外, 以上研究大多使用单一数值模式进行模拟, 缺乏不同数值模拟方法之间的比较。

本研究使用三维仿真建模工具 EMBS<sup>[16]</sup>进行三维光学建模, 该方法可以构造任意形状和结构的颗粒物光学模型并利用 DDA 进行光学计算, 因此能够考虑大气黑碳颗粒的复杂形态和混合结构对光学特性的影响。同时, 利用 DDA 和 MSTM 计算了不同分形维数

收稿日期: 2022-06-10; 修回日期: 2022-07-23; 录用日期: 2022-08-01; 网络首发日期: 2022-08-11

基金项目: 国家自然科学基金 (42075096)、浙江省自然科学基金 (LZ19D050001)

通信作者: \*wangyy121@zju.edu.cn

( $D_i=1.8$  和  $D_i=2.6$ ) 和混合结构的黑碳单颗粒的光吸收强度  $E_{\text{abs}}$ 、单次散射反照率 (SSA) 和光吸收截面  $C_{\text{abs}}$ , 并使用 Mie 方法计算相应的核-壳结构黑碳颗粒的光学特性, 对不同方法获得的数值模拟结果进行比较, 分析造成不同数值模式结果差异的原因。

## 2 实验方法

利用 DDA、MSTM 和 Mie 法计算分形维数  $D_f=1.8$  和  $D_f=2.6$  且具有多种混合结构的黑碳单颗粒的光学特性, 具体实验方法流程如图 1 所示。

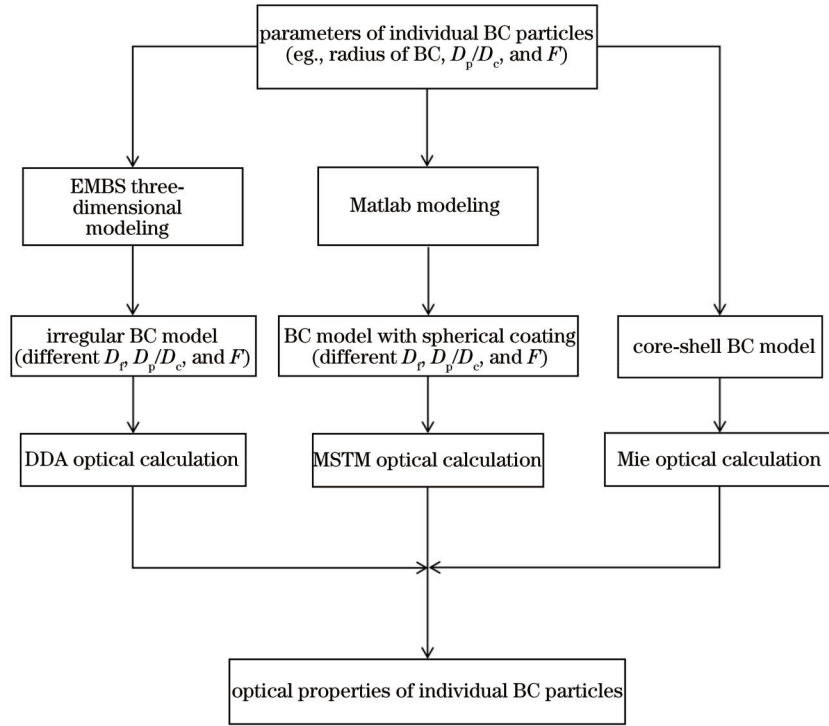


图 1 实验方法流程图

Fig. 1 Flow chart of experimental methods

DDA<sup>[17]</sup>是一种用于计算任意形状颗粒的光散射的方法, 对于给定的任意几何形状, DDA 都可以计算其散射和吸收特性。EMBS 基于透射电子显微镜获得的黑碳单颗粒图像进行三维混合结构建模, 可构建具有任意形状和混合结构的三维黑碳形状模型, 并将三维模型导入 DDA 进行计算<sup>[16]</sup>。本研究利用 EMBS 建模并用 DDA 的运行程序——DDSCAT (7.0 版本) 进行计算<sup>[17-18]</sup>。DDA 的计算原理是将整个粒子分成若干个小的等体积立方体, 小立方体被称为偶极子<sup>[19]</sup>。偶极子通常比入射波长和粒子长度尺度小得多, 为了更好地表示粒子的几何结构、获得精确度较高的计算结果, 偶极子之间的距离  $d$  需满足:

$$|m|kd < 1, \quad (1)$$

式中:  $m$  为目标几何体的折射率;  $k=2\pi/\lambda$ ,  $\lambda$  为入射光的波长。在 DDSCAT 中,  $a_{\text{eff}}$  为与目标几何体具有相同体积的等效球半径, 其表达式为

$$a_{\text{eff}} = [3V/(4\pi)]^{1/3}, \quad (2)$$

式中:  $V$  为目标几何体的体积。  $d$  与  $V$  的关系为

$$V = Nd^3, \quad (3)$$

式中:  $N$  为偶极子数量。假设颗粒物在大气中是随机定

向的, 对于每个颗粒物, 使用 1000 个人射角进行研究。DDA、MSTM 和 Mie 光学模拟中的入射光波长  $\lambda$  均为 550 nm, 黑碳的复折射率为  $m = 1.85 + 0.71i$ <sup>[20]</sup>, 黑碳混合物(包裹层)的复折射率为  $m = 1.53 + 0i$ <sup>[21]</sup>。

MSTM<sup>[22]</sup>方法可以高效计算无重叠情况下由球形单体组成的聚合体的光学特性, 其原理是在 T 矩阵的框架下, 利用矢量球谐函数的加法定理来解释系统之间的相互作用。该方法涉及多重球面边界域麦克斯韦方程的叠加解, 将单颗粒整体作为一个大球, 其散射场被分解为每个小球体的部分散射场, 到达第  $i$  个球面的场将由入射场加上其他小球的散射场组合而成, 从而由单个球的 T 矩阵获得多球的 T 矩阵, 并计算光吸收、散射和消光效率等信息。MSTM 是较为精确和快捷的一种算法, 唯一的限制是球体之间不能重叠。本研究所使用的代码是基于并行计算机集群的 MSTM FORTRN 3.0<sup>[23]</sup> 版本代码, 可以精确计算球形粒子集合的光散射特性。另外, 使用 BHCOAT 程序<sup>[4]</sup>计算颗粒物的光吸收、散射和消光效率。在给定黑碳粒径的情况下, 计算黑碳单颗粒的光吸收截面  $C_{\text{abs}}$ 、散射截面  $C_{\text{scat}}$  和消光截面  $C_{\text{ext}}$  的公式如下:

$$\begin{cases} C_{\text{abs}} = Q_{\text{abs}} \pi a_{\text{eff}}^2 \\ C_{\text{scat}} = Q_{\text{scat}} \pi a_{\text{eff}}^2 \\ C_{\text{ext}} = Q_{\text{ext}} \pi a_{\text{eff}}^2 \end{cases} \quad (4)$$

式中:  $Q_{\text{abs}}$ 、 $Q_{\text{scat}}$ 、 $Q_{\text{ext}}$  分别为光吸收效率、散射效率和消光效率。而 SSA 在数值上等于散射截面和消光截面的比值,即

$$SSA = C_{\text{scat}} / C_{\text{ext}} \quad (5)$$

$E_{\text{abs}}$  的公式为

$$E_{\text{abs}} = C_{\text{particle}} / C_{\text{bareBC}}, \quad (6)$$

式中:  $C_{\text{particle}}$  为被包裹的黑碳颗粒的光吸收截面;  $C_{\text{bareBC}}$

为裸露外混黑碳的光吸收截面。

### 3 分析与讨论

#### 3.1 形貌和混合结构对黑碳光吸收增强的影响

透射电子显微镜图像表明黑碳单颗粒的混合结构十分多样,且其包裹层的形状较复杂(图 2)。大气中的新鲜裸露外混[bare-like, 图 2(a1)、(b1)]黑碳在传输过程经历凝结、碰并和非均相反应等老化过程,与其他气溶胶混合,部分被其他气溶胶包裹[partly coated, 图 2(a2)、(b2)]或全部被其他气溶胶包裹[embedded, 图 2(a3)、(b3)]<sup>[24]</sup>。

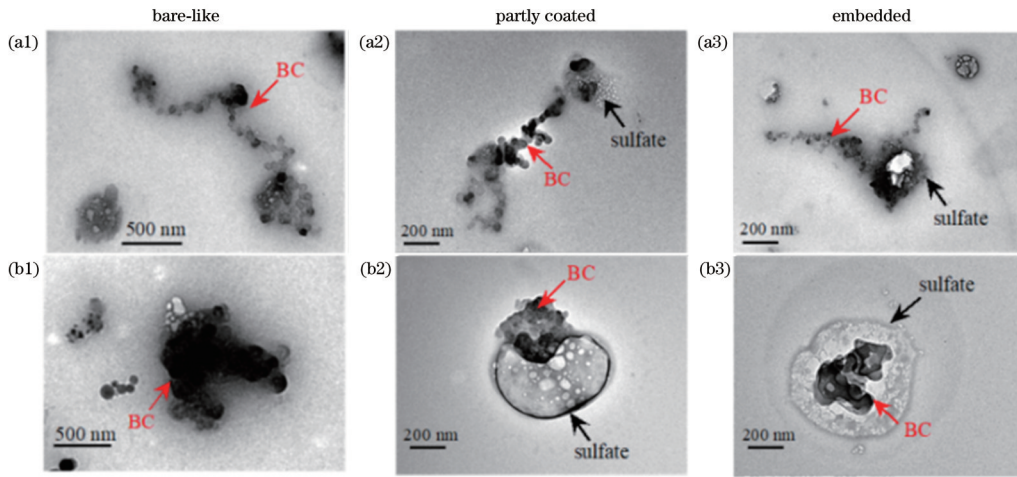


图 2 不同混合结构的松散和紧凑的黑碳单颗粒的透射电镜图像。(a1)~(a3)形态松散的黑碳;(b1)~(b3)形态紧凑的黑碳

Fig. 2 Transmission electron microscope images of loose and compact BC single particles with different mixing structures.

(a1)~(a3) Loose BC particles; (b1)~(b3) compact BC particles

内混黑碳颗粒的光学特性主要受混合结构、形态和粒径等因素的影响<sup>[25]</sup>。混合结构主要由包裹层厚度  $D_p/D_c$  (其中  $D_p$  是整个黑碳颗粒的体积当量直径,  $D_c$  是黑碳核的体积当量直径) 和黑碳嵌入包裹层程度(即包裹程度)  $F$  决定, 其中  $D_p/D_c$  为整个内混黑碳颗粒与黑碳核的体积当量直径的比值,  $D_p/D_c$  越大则黑碳颗粒的包裹层厚度越大。  $D_p/D_c$  一般大于 1, 且峰值在 2 以下<sup>[26]</sup>。黑碳包裹程度  $F$  是嵌入在包裹层内黑碳的体积与整个黑碳颗粒的体积的比值, 用来表征黑碳被包裹部分的比例<sup>[27]</sup>。部分包裹的黑碳颗粒的  $F$  通常为 0~1, 而外混和完全被包裹的黑碳颗粒的  $F$  分别为 0 和 1<sup>[14, 28]</sup>。分形维数  $D_f$  能够反映黑碳的紧实程度<sup>[14, 29]</sup>,  $D_f$  越大则黑碳聚集体的结构越紧实。外场观测和实验室模拟研究得到的黑碳颗粒的  $D_f$  值一般为 1.6~2.8<sup>[30-31]</sup>, 因此本研究选择了  $D_f$  为 1.8 和 2.6 的黑碳, 分别代表具有较松散和较紧实聚集体的两种黑碳颗粒。

不同于以往较规则的几何形状模型, 本研究利用 EMBS 为 DDA 光学计算提供了更加准确的混合结构和几何形状, 其模型如图 3 所示。DDA 和 MSTM 模型使用的黑碳聚集体的分形前因子  $k_0=1.2$ , 分形维数  $D_f$  为 1.8 和 2.6, 单体小球直径为 20 nm, 每个黑碳聚集

体由 100 个单体小球构成<sup>[32]</sup>。对于  $D_f=1.8$  [图 3(a)] 和  $D_f=2.6$  [图 3(b)] 的黑碳聚集体, 本研究分别建立了  $D_p/D_c$  为 1.5~2.7 和  $F$  为 0.10~1.00 的光学模型。

黑碳单颗粒的光吸收作用能够影响大气辐射平衡, 而不同混合结构则会影响黑碳的光吸收增强<sup>[33]</sup>。图 4 展示了 DDA、MSTM 和 Mie 三种算法在 5 种包裹程度 ( $F$  为 0.10、0.25、0.50、0.75、1.00) 和 4 种包裹层厚度 ( $D_p/D_c$  为 1.5、1.9、2.3、2.7) 以及 2 种分形维数 ( $D_f$  为 1.8、2.6) 下的  $E_{\text{abs}}$ 。当  $D_f=1.8$  时, MSTM 方法无法构造包裹程度较大 ( $F>0.5$ ) 的黑碳模型, 因此无法计算这种模型的光学特性。这是由于黑碳聚集体的形态较为松散, MSTM 模型无法将大部分黑碳包裹, 这一现象在 Zhang 等<sup>[29]</sup> 的研究中也有所体现。因此, MSTM 方法在建模方面本身存在不足, 这造成黑碳颗粒模型与真实大气黑碳颗粒存在差异。

如图 4(a) 所示, 对于  $D_f=1.8$  的黑碳模型, DDA 的  $E_{\text{abs}}$  始终大于 MSTM。当  $F=0.10$  时, 随着  $D_p/D_c$  从 1.5 增大到 2.7, MSTM 模型的  $E_{\text{abs}}$  从 1.09 增大到 1.29, 该结果与 Zhang 等<sup>[29]</sup> 采用的 MSTM 模拟所得到的结果 (0.95~1.40) 近似, 而 DDA 模型的  $E_{\text{abs}}$  则从 1.18 增大到 2.09 [图 4(a)]。  $F=0.10$  时 DDA 模型的

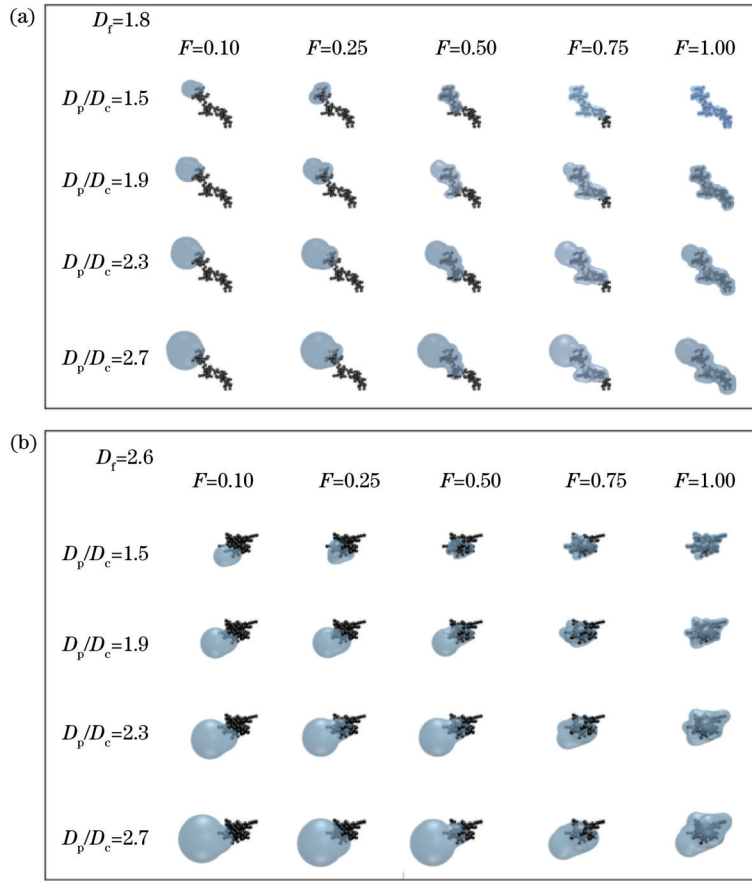


图 3 不同包裹层厚度和包裹程度的 EMBS 构造的黑碳单颗粒模型。(a)  $D_f=1.8$  的黑碳单颗粒模型; (b)  $D_f=2.6$  的黑碳单颗粒模型  
Fig. 3 BC single particle models constructed by EMBS with different coating thickness and coating degree. (a) BC single particle models with  $D_f=1.8$ ; (b) BC single particle models with  $D_f=2.6$

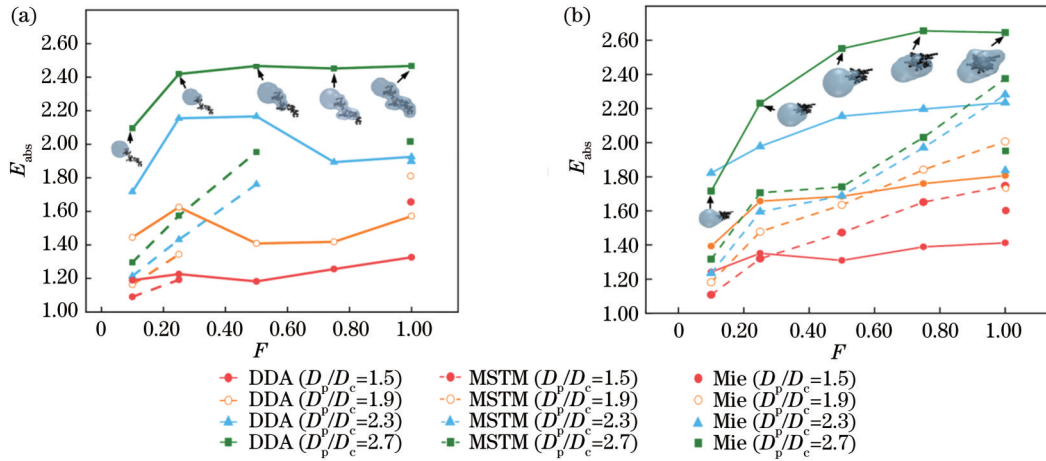


图 4 DDA、MSTM 和 Mie 法计算的不同混合结构的黑碳单颗粒的  $E_{abs}$ 。(a)  $D_f=1.8$  时 DDA、MSTM 和 Mie 法的  $E_{abs}$  值; (b)  $D_f=2.6$  时 DDA、MSTM 和 Mie 法的  $E_{abs}$  值  
Fig. 4  $E_{abs}$  of BC single particles with different mixing structures calculated by DDA, MSTM, and Mie methods. (a)  $E_{abs}$  obtained by DDA, MSTM, and Mie methods when  $D_f=1.8$ ; (b)  $E_{abs}$  obtained by DDA, MSTM, and Mie methods when  $D_f=2.6$

$E_{abs}$  比 MSTM 大, DDA 模型的  $E_{abs}$  随  $D_p/D_c$  的增加增大了 43%, 高于 MSTM 模型的 27%, 并且当  $F=0.25$  时仍然遵循以上规律[图 4(a)]。因此, 对于形态比较松散的黑碳颗粒, DDA 模型的  $E_{abs}$  对黑碳包裹层厚度的敏感性比 MSTM 模型高。当  $D_p/D_c$  为 2.3 和 2.7 时,

随着  $F$  从 0.10 增大到 0.50, MSTM 模型的  $E_{abs}$  分别从 1.21 和 1.29 增大到 1.76 和 1.95, 增幅分别约为 45% 和 51%; DDA 模型的  $E_{abs}$  分别从 1.71 和 2.10 增大到 2.16 和 2.46, 增幅分别约为 26% 和 17% [图 4(a)]。以上结果表明, 对于结构较松散的黑碳颗粒, MSTM

模型的光吸收对包裹程度的变化比 DDA 模型更加敏感。

对于  $D_i=2.6$  的黑碳模型:当  $D_p/D_c$  为 1.5 和 1.9 时,DDA 模型的  $E_{\text{abs}}$  在  $F$  较小时比 MSTM 模型的结果大,而在  $F$  较大时情况相反;当  $D_p/D_c$  为 2.3 和 2.7 时,DDA 模型的  $E_{\text{abs}}$  大部分大于 MSTM 模型的结果[图 4(b)].在  $F$  不变的情况下,随着  $D_p/D_c$  的增大,DDA 模型的  $E_{\text{abs}}$  增大了 38%~87%;而 MSTM 模型的  $E_{\text{abs}}$  增大了 18%~36%[图 4(b)].因此,对于形态较紧实的黑碳颗粒( $D_i=2.6$ ),DDA 模型对包裹层厚度的敏感性较高,而 MSTM 模型对包裹层厚度的敏感性则较低。当  $D_p/D_c$  保持不变时,随着  $F$  的增大,DDA 模型的  $E_{\text{abs}}$  增大了 14%~54%,MSTM 模型的  $E_{\text{abs}}$  增大了 58%~81%。因此,对于形态较紧实的黑碳颗粒( $D_i=2.6$ ),DDA 模型计算的  $E_{\text{abs}}$  对黑碳包裹层厚度的敏感性较高,而 MSTM 模型对包裹程度  $F$  的敏感性较高。另外,在  $F$  和  $D_p/D_c$  相同的情况下,三种算法的计算结果几乎均显示  $D_i=2.6$  时的  $E_{\text{abs}}$  比  $D_i=1.8$  时更大(图 4),因此,紧实度更高的黑碳颗粒吸光增强效应更为显著。这可能是由于黑碳较紧实时,包裹层对黑碳集体的透镜效应更加显著<sup>[34]</sup>。

当  $D_i=2.6$  且  $F=1.00$  时,随着  $D_p/D_c$  的增大,DDA、MSTM、Mie 三种模型的  $E_{\text{abs}}$  分别从 1.41、1.74 和 1.60 增大到 2.64、2.37 和 1.95,增长幅度分别约为 87%、36% 和 22%。当  $D_p/D_c=1.5$  时,DDA 模型的计算结果最小,MSTM 的计算结果最大;但随着  $D_p/D_c$  的增大,DDA 模型的  $E_{\text{abs}}$  快速增大,当  $D_p/D_c=2.3$  时,DDA 模型的  $E_{\text{abs}}$  值已经超过 MSTM 和 Mie 模型的计算结果。由此可见,即使包裹程度和包裹层厚度一致,不同方法的光学模拟结果也具有差异。在经历大气老化过程后,黑碳颗粒的包裹层厚度和包裹程度会发生很大变化<sup>[35]</sup>,这可能造成光学模拟具有较大误差。而

造成图 4 中 DDA 和 MSTM 的结果差异较大的主要原因可能是 MSTM 和 DDA 方法的本身差异、MSTM 和 DDA 方法中黑碳单颗粒的包裹层形状不同以及包裹层的相对位置差异等因素的累加。这些差异将在第 3.3 节进行详细讨论。

### 3.2 黑碳形貌和混合结构对散射特性的影响

SSA 能够体现气溶胶的散射能力<sup>[36]</sup>。图 5 描述了 DDA、MSTM 和 Mie 三种算法在 5 种包裹程度( $F$  为 0.10、0.25、0.50、0.75、1.00)、4 种包裹层厚度( $D_p/D_c$  为 1.5、1.9、2.3、2.7)以及 2 种分形维数( $D_i$  为 1.8、2.6)下的 SSA。如图 5(a) 所示,对于  $D_i=1.8$  的黑碳颗粒,包裹层厚度较小( $D_p/D_c$  为 1.5、1.9)时,MSTM 只能计算包裹程度( $F<0.25$ )较小的黑碳单颗粒的 SSA。对于  $D_i=1.8$ [图 5(a)]和  $D_i=2.6$ [图 5(b)]的黑碳颗粒,DDA 和 MSTM 模型的 SSA 都随着包裹层厚度的增大不断增大,但 DDA 模型的 SSA 小于 MSTM 模型的计算结果。例如,对于  $D_i=1.8$  的黑碳颗粒:当  $D_p/D_c=1.5$  和  $F\leq 0.5$  时,DDA 模型和 MSTM 模型的 SSA 约为 0.49 和 0.55;当  $D_p/D_c=2.7$  时,随着  $F$  的增大,DDA 模型和 MSTM 模型的 SSA 分别为 0.85~0.88 和 0.90~0.93[图 5(a)]。另外,随着  $F$  增大,DDA 和 MSTM 模型的 SSA 具有减小的趋势(图 5)。对于  $D_i=1.8$  的黑碳颗粒,随着  $F$  的增大( $F\leq 0.5$ ),DDA 模型的 SSA 最多减小了 3.3%,MSTM 模型的 SSA 最多减小了 5.5%。对于  $D_i=2.6$  的黑碳颗粒,随着  $F$  的增大,DDA 模型的 SSA 减小了 5.8%~10.5%,MSTM 模型的 SSA 减小了 3.5%~14.8%。这与冯雪<sup>[37]</sup>计算的黑碳 SSA 值随着包裹程度的增大从 0.65 降低到 0.56(最大降低 13.8%)的结果较为一致。随着包裹程度的增大,MSTM 模型的 SSA 下降趋势比 DDA 模型更加明显,但两种模型的 SSA 值对于包裹程度的敏感度均较低。对比松散结

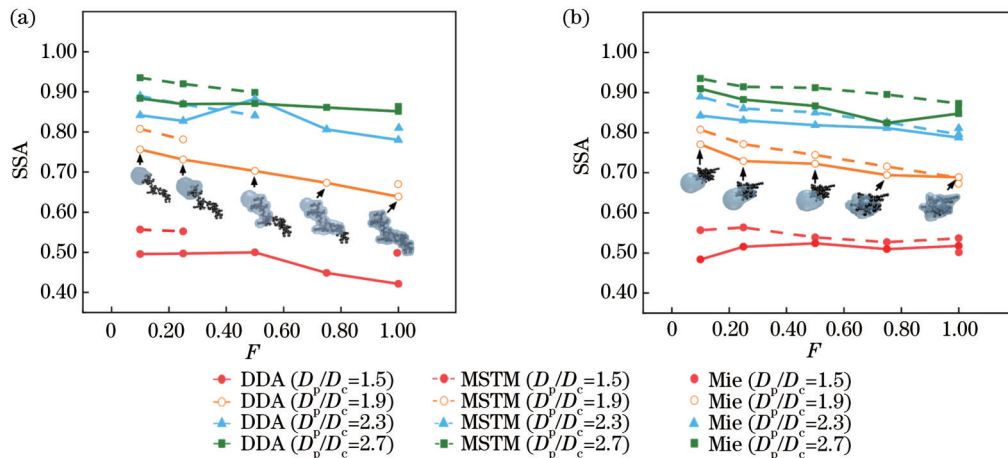


图 5 DDA、MSTM 和 Mie 法计算的不同混合结构的黑碳单颗粒的 SSA。(a)  $D_i=1.8$  时 DDA、MSTM 和 Mie 法的 SSA 值;(b)  $D_i=2.6$  时 DDA、MSTM 和 Mie 法的 SSA 值

Fig. 5 SSA of BC single particles with different mixing structures calculated by DDA, MSTM, and Mie methods. (a) SSA of DDA, MSTM, and Mie methods when  $D_i=1.8$ ; (b) SSA of DDA, MSTM, and Mie methods when  $D_i=2.6$

构[图 5(a)]与紧实结构[图 5(b)]的黑碳颗粒,在  $D_p/D_c$  从 1.5 增加到 2.7 的过程中,DDA 模型的 SSA 平均值范围分别为 0.47~0.86 和 0.51~0.87, MSTM 模型的 SSA 平均值范围分别为 0.55~0.92 和 0.54~0.90, 二者结果相近。因此,SSA 的值对于分形维数的变化并不敏感。

当黑碳被完全包裹( $F=1.00$ )时:对于较松散的黑碳颗粒( $D_f=1.8$ ),DDA 和 Mie 模型的 SSA 在  $D_p/D_c$  为 1.5~2.7 范围内的差异为 1%~16%;对于较紧实的黑碳颗粒( $D_f=2.6$ ),DDA、MSTM 和 Mie 模型的 SSA 在  $D_p/D_c$  为 1.5~2.7 范围内的差异为 2.6%~3.0%。因此,对于完全包裹的黑碳颗粒来说,DDA、MSTM 和 Mie 模型的单次散射反照率的差异较小。黑碳颗粒在老化过程中与其他气溶胶颗粒物混合,形成包裹层,同时黑碳颗粒的散射特性发生改变<sup>[38]</sup>。DDA 和 MSTM 模型真实还原了大气中混合结构黑碳的老化过程及散射特性的差异。包裹程度、包裹层厚度和分形维数是影响黑碳散射特性的因素,但对于以上因素敏感度较低。

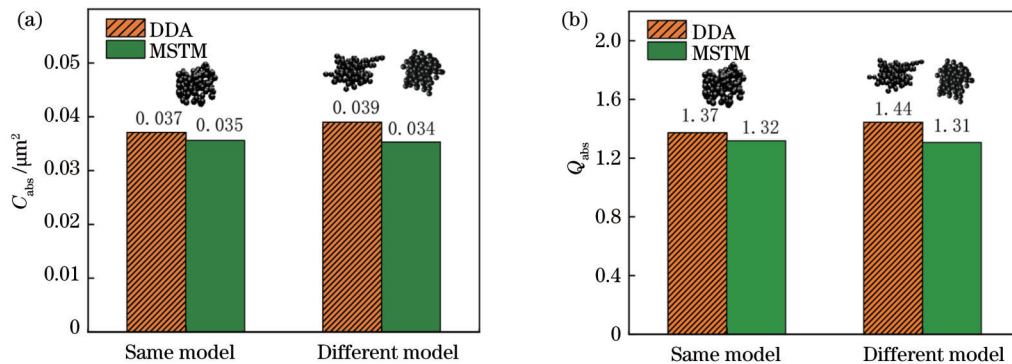


图 6  $D_f=2.6$  时无包裹层的黑碳单颗粒的光吸收截面  $C_{abs}$  和光吸收效率  $Q_{abs}$ 。(a) 黑碳光吸收截面  $C_{abs}$ ; (b) 黑碳光吸收效率  $Q_{abs}$ 。  
Fig. 6 Absorption cross section  $C_{abs}$  and absorption efficiency  $Q_{abs}$  of BC single particles without coating ( $D_f=2.6$ ). (a) Absorption cross section  $C_{abs}$  of BC; (b) absorption efficiency  $Q_{abs}$  of BC

当黑碳聚集体被完全包裹时,由于数值模拟方法本身的特点,DDA 模型可设置球形包裹层或不规则形状的包裹层,而 MSTM 模型只能设置球形包裹层。如图 7 所示,本研究以  $D_f=2.6$ 、 $D_p/D_c=2.3$  且  $F=1.00$  的黑碳颗粒为例,使用 DDA 和 MSTM 算法计算了两种情况下黑碳单颗粒的  $E_{abs}$ 、 $C_{abs}$  和 SSA: 1)  $D_f$ 、 $D_p/D_c$  和  $F$  设置完全一致,DDA 和 MSTM 方法的黑碳模型均为同一个具有球形包裹层的黑碳颗粒模型; 2)  $D_f$ 、 $D_p/D_c$  和  $F$  设置完全一致,但 DDA 方法的包裹层为不规则形, MSTM 方法的包裹层为球形。对于完全相同的黑碳模型,DDA 和 MSTM 的  $E_{abs}$ 、SSA 和  $C_{abs}$  的相对偏差分别为 2% [图 7(a)]、1% [图 7(b)] 和 6% [图 7(c)]。

由此可见,在使用完全相同的黑碳模型时,DDA 和 MSTM 算法的相对偏差较小。当 DDA 模型设置不规则的包裹层、MSTM 模型设置球形包裹层时,两种

### 3.3 不同数值模式模拟的光学特性差异的原因

DDA、MSTM 和 Mie 方法对于全包裹的黑碳的光吸收增强和单次散射反照率模拟结果较为接近。对于部分包裹的黑碳颗粒,在包裹层厚度、黑碳包裹程度和分形维数等参数一致的情况下,DDA 和 MSTM 计算的光学特性仍存在较大的差异。本节分别从模型差异、包裹层形状和位置方面进行分析。

#### 3.3.1 模型差异的影响

即使黑碳聚集体的单体小球数量、单体小球粒径和分形维数等参数均相同,由 DDA 和 MSTM 相关程序随机生成的黑碳颗粒形状也可能不同,因此本研究使用 DDA 和 MSTM 分别计算了形状完全相同和形状不同的黑碳聚集体的黑碳单颗粒的光吸收截面  $C_{abs}$  和吸收效率  $Q_{abs}$ , 计算结果如图 6 所示。对于完全相同的黑碳聚集体模型,DDA 和 MSTM 方法获得的  $C_{abs}$  和  $Q_{abs}$  的相对偏差为 5% 和 4%, 这可能是由两个计算方法本身的计算原理差异导致的。当黑碳聚集体的模型形状不同时,DDA 与 MSTM 获得的  $C_{abs}$  和  $Q_{abs}$  的相对偏差增大到 13% 和 9%, 这可能是模型形状差异和计算方法差异的叠加共同导致的偏差。

不同模型的  $E_{abs}$ 、SSA 和  $C_{abs}$  的相对偏差较大,分别为 20% [图 7(a)]、7% [图 7(b)] 和 23% [图 7(c)], 其中  $C_{abs}$  和  $E_{abs}$  的偏差较未添加包裹层(图 6)时增大了一倍左右。因此,黑碳颗粒模型的包裹层形状是造成 DDA 和 MSTM 两种方法计算结果不一致的重要原因。大气中的黑碳颗粒形态复杂,一些电子显微镜观测表明,很多全包裹类型的黑碳颗粒也会具有不规则形状的包裹层<sup>[30, 39]</sup>, 使用 MSTM 方法进行黑碳光学模拟时只能假设包裹层为球形,因此容易造成较大误差。

综上所述,模型差异对黑碳光学特性的影响主要体现在两方面:对于没有包裹层的黑碳模型,黑碳聚集体形状不同所产生的计算偏差较大;对于全包裹的黑碳模型,包裹层形状不同所产生的偏差可高达 23%。

#### 3.3.2 包裹层位置的影响

利用 EMBS 构造了包裹层形状和相对包裹位置

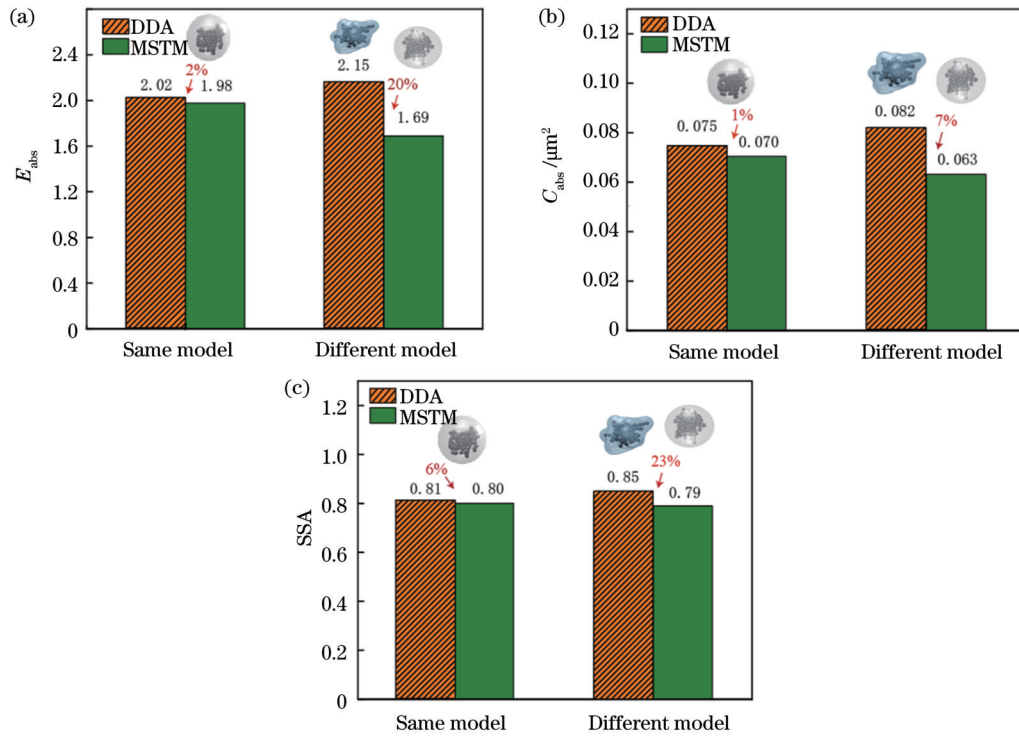


图 7  $D_f=2.6$ 、 $D_p/D_c=2.3$  且  $F=1.00$  时黑碳单颗粒的  $E_{\text{abs}}$ 、 $C_{\text{abs}}$  和 SSA。(a)  $E_{\text{abs}}$ ；(b)  $C_{\text{abs}}$ ；(c) SSA

Fig. 7  $E_{\text{abs}}$ ,  $C_{\text{abs}}$ , and SSA of BC single particles ( $D_f=2.6$ ,  $D_p/D_c=2.3$ , and  $F=1.00$ ). (a)  $E_{\text{abs}}$ ; (b)  $C_{\text{abs}}$ ; (c) SSA

不同的黑碳单颗粒模型。如图 8 所示,以  $D_f=2.6$ 、 $D_p/D_c=2.3$  且  $F=0.50$  的黑碳模型为例:模型一的包裹层形状为球形,且包裹层位置在黑碳右侧;模型二的包裹层形状不规则,且包裹层位置在黑碳的左侧;模型三的包裹层形状为球形,包裹层位置在黑碳的左侧。当黑碳模型的包裹层位置不同时(如模型 1、模型 3), $E_{\text{abs}}$  分别为 2.3 和 2.2, $C_{\text{abs}}$  分别为 0.089 和 0.087,SSA 分别为 0.78 和 0.85,因此,包裹层位置不同造成的光吸收特性的相对偏差为 2%~4%。当黑碳模型的包裹层形状不同时(如模型 2、模型 3), $E_{\text{abs}}$  分别为 2.1 和 2.2, $C_{\text{abs}}$  分别为 0.084 和 0.087,SSA 分别为 0.82 和 0.85,因此,包裹层形状不同造成的光吸收特性的相对偏差为 3%~5%。当包裹层位置和形状均不相同(如模型 1、模型 2), $E_{\text{abs}}$  分别为 2.3 和 2.1, $C_{\text{abs}}$  分别为 0.089 和 0.084,SSA 分别为 0.78 和 0.82,两个模型的相对偏差约为 5%~10%,这与 Wang 等<sup>[16]</sup>发现的球形与不规则模型黑碳的  $E_{\text{abs}}$  相对偏差为 3.4%~12.4% 的结果近似。以上结果表明,黑碳包裹层的形状及包裹层和黑碳的相对位置也会对光学特性产生影响。

MSTM 方法的模型相对单一,其模拟结果与 DDA 的差异性较大。在大气老化过程中,黑碳颗粒物的包裹层形状十分复杂,考虑到 DDA 的模型结构和形状与大气真实黑碳更加相似,而 MSTM 的模型做了更多简化,因此 MSTM 在进行黑碳模拟时会产生较大误差。

## 4 结 论

本研究根据大气黑碳颗粒的复杂形态和混合结构使用 EMBS 进行三维建模,创建了不同分形维数( $D_f=1.8$  和  $D_f=2.6$ )、包裹层厚度和包裹程度的黑碳光学模型并利用 DDA 进行光学计算,同时利用 MSTM 和 Mie 法计算黑碳单颗粒的  $E_{\text{abs}}$  和 SSA。随后本研究对 MSTM 和 DDA 方法参数设置相同但计算结果具有差异的情况进行了分析,发现:

1) 对于结构较松散( $D_f=1.8$ )和较紧实( $D_f=2.6$ )的黑碳颗粒,MSTM 模型的  $E_{\text{abs}}$  对包裹程度比较敏感,而 DDA 模型的  $E_{\text{abs}}$  对黑碳包裹层厚度的敏感性更高。

2) DDA 和 MSTM 模型的 SSA 随包裹层厚度的增大而增加,且 DDA 的 SSA 值小于 MSTM。此外,DDA 和 MSTM 模型的 SSA 值随着包裹程度的增大而减小,但二者对于包裹程度的敏感度均不高。

3) DDA 和 MSTM 两种方法进行光学特性模拟时存在差异,DDA 方法的模型形状和包裹程度变化更加灵活,MSTM 可适用的模型必须以球形为基础单元,本身具有局限性。

4) 在包裹层厚度、黑碳包裹程度、分形维数等参数一致的情况下,DDA 和 MSTM 计算的光学特性仍存在差异,其原因主要存在于两方面。一方面是形状差异的影响:对于没有包裹层的裸露黑碳模型,黑碳聚集形状不同所产生的计算偏差较大, $C_{\text{abs}}$  和  $Q_{\text{abs}}$  的相

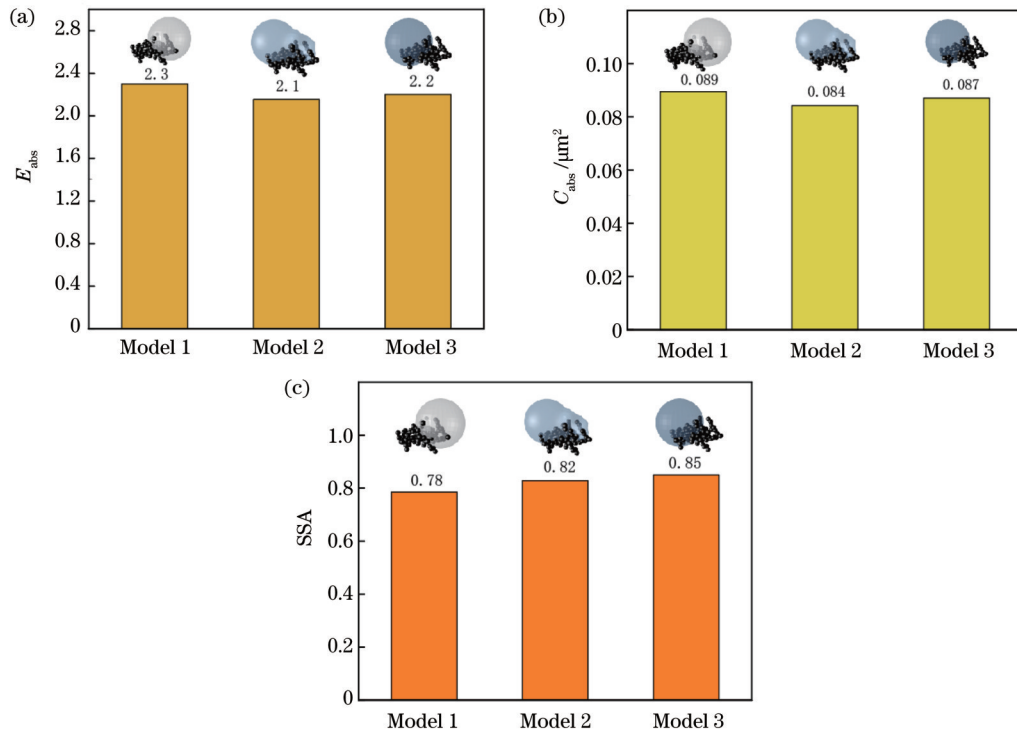


图 8  $D_i=2.6$ 、 $D_p/D_c=2.3$ 且 $F=0.50$ 时 $E_{abs}$ 、 $C_{abs}$ 和 $SSA$ 。(a)  $E_{abs}$ ; (b)  $C_{abs}$ ; (c)  $SSA$

Fig. 8  $E_{abs}$ ,  $C_{abs}$ , and  $SSA$  when  $D_i=2.6$ ,  $D_p/D_c=2.3$ , and  $F=0.50$ . (a)  $E_{abs}$ ; (b)  $C_{abs}$ ; (c)  $SSA$

对偏差为 13% 和 9%; 对于全包裹的黑碳模型, 包裹层形状不同所产生的偏差较大,  $E_{abs}$ 、 $SSA$  和  $C_{abs}$  的相对偏差分别达到了 20%、7% 和 23%。另一方面是包裹层的相对位置导致的相对偏差为 2%~4%。MSTM 方法使用的模型与真实大气黑碳颗粒差异更大, 模拟时产生的误差可能比 DDA 更大。

参 考 文 献

[1] Petzold A, Ogren J A, Fiebig M, et al. Recommendations for reporting “black carbon” measurements[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, 13(16): 8365-8379.

[2] 秦世广, 汤洁, 温玉璞. 黑碳气溶胶及其在气候变化研究中的意义[J]. 气象, 2001, 27(11): 3-7.

Qin S G, Tang J, Wen Y P. Black carbon and its importance in climate change studies[J]. Meteorological Monthly, 2001, 27(11): 3-7.

[3] Zhang H, Wang Z L. Advances in the study of black carbon effects on climate[J]. Advances in Climate Change Research, 2011, 2(1): 23-30.

[4] Panicker A S, Pandithurai G, Safai P D, et al. On the contribution of black carbon to the composite aerosol radiative forcing over an urban environment[J]. Atmospheric Environment, 2010, 44(25): 3066-3070.

[5] 张华, 王志立. 黑碳气溶胶气候效应的研究进展[J]. 气候变化研究进展, 2009, 5(6): 311-317.

Zhang H, Wang Z L. Advances in studies of black carbon effects on climate[J]. Advances in Climate Change Research, 2009, 5(6): 311-317.

[6] Ding A J, Huang X, Nie W, et al. Enhanced haze pollution by black carbon in megacities in China[J]. Geophysical Research Letters, 2016, 43(6): 2873-2879.

[7] 张靖, 银燕. 黑碳气溶胶对我国区域气候影响的数值模拟[J]. 南京气象学院学报, 2008, 31(6): 852-859.

Zhang J, Yin Y. Numerical simulations of effect of black carbon aerosol on regional climate in China[J]. Journal of Nanjing Institute of Meteorology, 2008, 31(6): 852-859.

[8] 朱首正, 卜令兵, 刘继桥, 等. 机载高光谱分辨率激光雷达探测大气气溶胶光学特性及污染研究[J]. 中国激光, 2021, 48(17): 1710003.

Zhu S Z, Bu L B, Liu J Q, et al. Study on airborne high spectral resolution lidar detecting optical properties and pollution of atmospheric aerosol[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(17): 1710003.

[9] 先久坤, 崔世杰, 张运江, 等. 亚洲地区黑碳气溶胶外场在线观测研究进展[J]. 大气与环境光学学报, 2022, 17(1): 104-124.

Xian J K, Cui S J, Zhang Y J, et al. Field measurements of atmospheric black carbon aerosols in Asia: a review[J]. Journal of Atmospheric and Environmental Optics, 2022, 17(1): 104-124.

[10] 王利朋, 马嫣, 郑军, 等. 2013 年 1 月南京北郊霾天气气溶胶的光学特性[J]. 环境科学, 2016, 37(3): 816-824.

Wang L P, Ma Y, Zheng J, et al. Aerosol optical properties in the northern suburb of Nanjing during haze days in January 2013 [J]. Environmental Science, 2016, 37(3): 816-824.

[11] Fu Y Z, Peng X C, Guo Z Y, et al. Filter-based absorption enhancement measurement for internally mixed black carbon particles over Southern China[J]. Science of the Total Environment, 2021, 762: 144194.

[12] 徐政, 李卫军, 于阳春, 等. 济南秋季霾与非霾天气下气溶胶光学性质的观测[J]. 中国环境科学, 2011, 31(4): 546-552.

Xu Z, Li W J, Yu Y C, et al. Characteristics of aerosol optical properties at haze and non-haze weather during autumn at Jinan City[J]. China Environmental Science, 2011, 31(4): 546-552.

[13] 王颖, 刘东. 非球形粒子光散射计算、测量及其应用[J]. 量子电子学报, 2020, 37(5): 601-614.

Wang Y, Liu D. Light scattering calculation and measurement of non-spherical particles and its application[J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2020, 37(5): 601-614.

[14] Wang Y Y, Li W J, Huang J, et al. Nonlinear enhancement of



- radiative absorption by black carbon in response to particle mixing structure[J]. *Geophysical Research Letters*, 2021, 48(24): e2021GL096437.
- [15] Liu C, Li J, Yin Y, et al. Optical properties of black carbon aggregates with non-absorptive coating[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2017, 187: 443-452.
- [16] Wang Y Y, Pang Y E, Huang J, et al. Constructing shapes and mixing structures of black carbon particles with applications to optical calculations[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2021, 126(10): e2021JD034620.
- [17] Draine B T, Flatau P J. Discrete-dipole approximation for scattering calculations[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 1994, 11(4): 1491-1499.
- [18] Draine B T, Goodman J. Beyond Clausius-Mossotti-Wave propagation on a polarizable point lattice and the discrete dipole approximation[J]. *The Astrophysical Journal Letters*, 1993, 405: 685-697.
- [19] Skorupski K. Using the DDA (discrete dipole approximation) method in determining the extinction cross section of black carbon[J]. *Metrology and Measurement Systems*, 2015, 22(1): 153-164.
- [20] Bond T C, Bergstrom R W. Light absorption by carbonaceous particles: an investigative review[J]. *Aerosol Science and Technology*, 2006, 40(1): 27-67.
- [21] Worringen A, Ebert M, Trautmann T, et al. Optical properties of internally mixed ammonium sulfate and soot particles: a study of individual aerosol particles and ambient aerosol populations[J]. *Applied Optics*, 2008, 47(21): 3835-3845.
- [22] Mackowski D W, Mishchenko M I. A multiple sphere *T*-matrix Fortran code for use on parallel computer clusters[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2011, 112(13): 2182-2192.
- [23] Chýlek P, Zhan J. Absorption and scattering of light by small particles: the interference structure[J]. *Applied Optics*, 1990, 29(28): 3984.
- [24] Wang Y Y, Liu F S, He C L, et al. Fractal dimensions and mixing structures of soot particles during atmospheric processing [J]. *Environmental Science & Technology Letters*, 2017, 4(11): 487-493.
- [25] 孙天乐, 何凌燕, 黄晓锋, 等. 深圳市冬季黑碳气溶胶的粒径分布和混合态特征[J]. *科学通报*, 2011, 56(21): 1703-1710.  
Sun T L, He L Y, Huang X F, et al. Characteristics of the size distribution and mixing state of black carbon aerosol in Shenzhen in winter[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2011, 56(21): 1703-1710.
- [26] Liu D T, Allan J D, Young D E, et al. Size distribution, mixing state and source apportionment of black carbon aerosol in London during wintertime[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14: 10061-10084.
- [27] 周晨, 张华, 王志立. 黑碳与非吸收性气溶胶的不同混合方式对其光学性质的影响[J]. *光学学报*, 2013, 33(8): 0829001.  
Zhou C, Zhang H, Wang Z L. Impact of different mixing ways of black carbon and non-absorbing aerosols on the optical properties[J]. *Acta Optica Sinica*, 2013, 33(8): 0829001.
- [28] Zhang Y X, Zhang Q, Cheng Y F, et al. Measuring the morphology and density of internally mixed black carbon with SP2 and VTDMA: new insight into the absorption enhancement of black carbon in the atmosphere[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, 9(4): 1833-1843.
- [29] Zhang X L, Mao M, Yin Y, et al. Numerical investigation on absorption enhancement of black carbon aerosols partially coated with nonabsorbing organics[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2018, 123(2): 1297-1308.
- [30] 王园园. 黑碳单颗粒的分形维数数学建模及光学特性计算[D]. 济南: 山东大学, 2019.  
Wang Y Y. Fractal dimension mathematical modeling and optical property calculation of soot particles[D]. Jinan: Shandong University, 2019.
- [31] Ehrburger-Dolle F, Tence M. Determination of the fractal dimension of carbon black aggregates[J]. *Carbon*, 1990, 28(2/3): 448-452.
- [32] 徐澍, 白连红, 范萌, 等. 黑碳团簇及具有包覆水层混合态粒子的光学特性[J]. *光学学报*, 2017, 37(2): 0201002.  
Xu S, Bai L H, Fan M, et al. Optical properties of soot aggregates and mixture particles with water coatings[J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, 37(2): 0201002.
- [33] 孙嘉胤, 吴晟, 吴兑, 等. 广州城区黑碳气溶胶吸光增强特性研究[J]. *中国环境科学*, 2020, 40(10): 4177-4189.  
Sun J Y, Wu S, Wu D, et al. The light absorption enhancement characteristics of black carbon aerosols in urban Guangzhou[J]. *China Environmental Science*, 2020, 40(10): 4177-4189.
- [34] 曾晨. 黑碳混合-吸湿对其光学和辐射特性的影响[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2019.  
Zeng C. Effects on optical and radiative properties of black carbon during mixing and hygroscopic growth[D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science & Technology, 2019.
- [35] Oshima N, Koike M, Zhang Y, et al. Aging of black carbon in outflow from anthropogenic sources using a mixing state resolved model: model development and evaluation[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2009, 114(D6): D06210.
- [36] 赵圆圆. 徐州地区气溶胶散射吸收特性研究[D]. 徐州: 中国矿业大学, 2019.  
Zhao Y Y. Research on aerosol scattering and absorption characteristics in Xuzhou[D]. Xuzhou: China University of Mining and Technology, 2019.
- [37] 冯雪. 复杂混合状态对黑碳气溶胶吸收特性影响的数值研究[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2021.  
Feng X. Numerical investigation on the effects of complex mixing state on the black carbon absorption properties[D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science & Technology, 2021.
- [38] 谭天怡, 郭松, 吴志军, 等. 老化过程对大气黑碳颗粒物性质及其气候效应的影响[J]. *科学通报*, 2020, 65(36): 4235-4250.  
Tan T Y, Guo S, Wu Z J, et al. Impact of aging process on atmospheric black carbon aerosol properties and climate effects [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2020, 65(36): 4235-4250.
- [39] Li G L, Sun L, Ho K F, et al. Implication of light absorption enhancement and mixing state of black carbon (BC) by coatings in Hong Kong[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2018, 18(11): 2753-2763.

# Difference in Optical Properties of Black Carbon Aerosols Simulated by Different Numerical Models

Fan Zheyuan<sup>1,2</sup>, Wang Yuanyuan<sup>2\*</sup>, Li Weijun<sup>2</sup>, Yu Mingzhou<sup>1</sup>, Pang Yun'er<sup>2</sup>

<sup>1</sup>College of Mechanical and Electrical Engineering, China Jiliang University, Hangzhou 310018, Zhejiang, China;

<sup>2</sup>School of Earth Sciences, Zhejiang University, Hangzhou 310027, Zhejiang, China

## Abstract

**Objective** Black carbon (BC) aerosols strongly absorb solar radiation in the atmosphere and directly or indirectly influence regional and global climate. However, the shape and mixing structures of BC particles are complex, and their optical properties are largely unquantified. Previous studies have used several numerical simulation tools to analyze the optical properties of BC particles, while the mixing structures of BC models in these studies are still quite different from those of the real individual BC particles in the atmosphere. In addition, most studies use only one numerical simulation tool to calculate the optical properties of BC particles. Therefore, the differences in optical results from different numerical simulation tools are still uncertain. In this study, a novel three-dimensional (3D) modeling tool, namely, Electron-Microscope-to-BC-simulation (EMBS), is applied to construct realistic 3D BC models. The EMBS can construct optical models of particles with arbitrary shapes and structures and can be applied in discrete dipole approximation (DDA). Then the influence of complex shapes and mixing structures of atmospheric BC particles on optical characteristics can be estimated. The absorption intensity  $E_{\text{abs}}$ , single scattering albedo (SSA), and absorption cross section  $C_{\text{abs}}$  of individual BC particles with different fractal dimensions ( $D_f=1.8$  and  $D_f=2.6$ ) and mixing structures are calculated by three numerical simulation methods, including DDA, multi-sphere T-matrix (MSTM), and Mie theory. The numerical simulation results obtained by different methods are compared, and the reasons for the difference in the results of different numerical simulation tools are analyzed.

**Methods** In this study, the EMBS is used to construct BC particle models with different fractal dimensions ( $D_f=1.8$  and  $D_f=2.6$ ) and mixing structures. The BC models from the EMBS are applied by the DDA. The  $E_{\text{abs}}$ , SSA, and  $C_{\text{abs}}$  of BC particles constructed by the EMBS are calculated by the DDA method and then compared with the results from MSTM and Mie methods (Fig. 1). The parameters of individual BC particles (e. g., the radius of BC,  $D_p/D_c$ ,  $F$ , etc.) are identical for the three methods. Each BC aggregate consists of 100 monomers with a radius of 20 nm. The coating thickness  $D_p/D_c$  and embedded fraction  $F$  are in the range of 1.5–2.7 and 0.10–1.00, respectively. The wavelength of incident light  $\lambda$  is 550 nm. The complex refractive index of BC is  $m=1.85+0.71i$ , and that of the BC coating is  $m=1.53+0i$ . This study assumes that particles are randomly oriented in the atmosphere, and 1000 incident light directions are used for each particle. The Mie method corresponds to the core-shell BC model and is conducted by the BHCOAT program.

**Results and Discussions** For BC particles with loose structures ( $D_f=1.8$ ) and compact structures ( $D_f=2.6$ ), the  $E_{\text{abs}}$  of MSTM model is more sensitive to embedded fraction, while that of DDA model is more sensitive to the coating thickness (Fig. 4). The SSA of DDA and MSTM methods increases with the increase in the coating thickness, and that of DDA method is smaller than that of MSTM method (Fig. 5). In addition, the SSA of DDA and MSTM methods decreases with the increase in  $F$ , but the sensitivity of both models to  $F$  is not high (Fig. 5). The optical properties calculated by DDA and MSTM methods are still different when the parameters (such as  $D_p/D_c$ ,  $F$ , and fractal dimension) are consistent. The results of this study prove that there are indeed obvious differences between DDA and MSTM in the simulation of optical properties of individual BC particles. The model shape and mixing structures of BC models for DDA method are more flexible, while MSTM has limitations in constructing models. On the one hand, there is the influence of the shape of BC models. For the bare BC model without coating, the relative deviation caused by different shapes of BC aggregates is large. The relative deviations of  $C_{\text{abs}}$  and  $Q_{\text{abs}}$  are 13% and 9%, respectively (Fig. 6). For the fully embedded BC model, the relative deviations of  $E_{\text{abs}}$ , SSA, and  $C_{\text{abs}}$  reach 20%, 7%, and 23%, respectively (Fig. 7). On the other hand, the relative position of BC aggregate and coating results in a relative deviation of 2%–4% (Fig. 8). The BC models used by the MSTM method are quite different from the real atmospheric BC particles, so the deviation generated by the simulation may be larger than that of the DDA.

**Conclusions** It is found that the  $E_{\text{abs}}$  results of MSTM method are more sensitive to the embedded fraction, while those of DDA method are more sensitive to the coating thickness. The difference between the two methods mainly results from:

1) differences in the shape of BC aggregates and coating in DDA and MSTM methods lead to the relative deviation of  $E_{\text{abs}}$  and  $C_{\text{abs}}$  up to 20% and 23%, respectively; 2) relative position and shape of the coating can produce relative deviation in 2%-4%. Due to the differences in BC model shapes and structures between DDA and MSTM methods, the optical simulation results may differ greatly.

**Key words** atmospheric optics; black carbon aerosols; mixing structures; light absorption enhancement; single scattering albedo; optical simulation