大气污染的最优调控与污染源反演问题III: 双重订正迭代反演求排放源法

曾庆存, 吴琳*

中国科学院大气物理研究所, 北京 100029

* 通讯作者, E-mail: wulin@mail.iap.ac.cn

收稿日期: 2020-12-22; 收修改稿日期: 2021-10-20; 接受日期: 2021-10-26; 网络版发表日期: 2021-12-14

国家自然科学基金项目(批准号: 4160530、41877316)、中国科学院前沿科学重点研究计划项目(编号: QYZDY-SSW-DQC002)和中国科学院青年创新促进会项目(编号: 2019079)资助

摘要 文 I 提出用非完整伴随算子的方法, 可由大气污染监测网得到的污染物浓度 ρ_{ob} , 求得总排放源 S , 文章研究由这样求得的 S 反演人为排放源 S_a 的问题. 假定自然源 S_n 已知, 注意到化学反应生成源 S_c 是污染物浓度的函数, 故如化学反应方程是完整的, 且 S_c 的公式较准确, 则 S_c 可直接由 ρ_{ob} 求出, 从而由 S 就可反演得 S_a . 但如 S_c 公式中的化学反应参数(记作 γ)不够准确, 还要对 γ 和 S_c 进行订正. 文章建议一种“双重订正迭代反演法”, 可同时求出 S_a 和订正 γ , 并证明这种迭代法收敛.

关键词 大气污染, 人为排放源, 化学反应生成源, 污染源反演, 非完整伴随算子, 双重订正迭代反演法

1 已知污染物浓度的时空变化而反演污染源的数学问题

理想情况下, 污染物的监测网可以提供全体污染物浓度的时空分布资料, 这既是大气污染监测、预报、调控和治理所必须的, 从中还可反演出污染源的时空变化, 甚至还可以率定或订正与大气污染有关的化学反应过程的参数. 为此, 同样要用到大气污染物的传输扩散方程(动力学方程组和初边值条件), 即

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho}{\partial t} = A(\rho) + (S_n + S_a + S_c(\rho)), \\ \Lambda(\rho)|_{\partial\Omega} = 0, \\ \rho|_{t=0} = \rho_{00}, \end{cases} \quad (1)$$

式中, ρ 为污染物, 若有 n 种污染物, 则 ρ 是 n 维空间的向量, (S_n, S_a, S_c) 分别记为自然排放源、人为排放源和大气内部由化学反应而生成的源. 所研究的空间及其边界分别记作 Ω 及 $\partial\Omega$, 时间 $t \in [0, T]$, A 是表示平流扩散和沉降的算子, Λ 是表示边界条件的算子, ρ_{00} 为初始污染物在 Ω 的分布.

文 I (曾庆存和吴琳, 2018) 中已指出, 尽管大气污染扩散传输方程是非线性的, 但在重污染情况下, 可将解写成两部分之和: 其一是非零初值条件 ($\rho_{00} \neq 0$)、有齐次边界条件、且 Λ 为线性的; 其二是非齐次边界条件、而 $\rho_{00} = 0$. 问题式(1)即为取齐次边界条件的前者. 将全空间 Ω 和全时段 $t \in [0, T]$ 组成的时空四维空间记

中文引用格式: 曾庆存, 吴琳. 2022. 大气污染的最优调控与污染源反演问题III: 双重订正迭代反演求排放源法. 中国科学: 地球科学, 52(2): 253–255, doi: 10.1360/SSTe-2020-0363

英文引用格式: Zeng Q, Wu L. 2022. Optimal reduction of anthropogenic emissions for air pollution control and the retrieval of emission source from observed pollutants III: Emission source inversion using a double correction iterative method. Science China Earth Sciences, 65(3): 553–555, <https://doi.org/10.1007/s11430-020-9860-7>

作 Ωt , 而由监测网提供的 ρ 视为 ρ_{ob} (已知量). 本文的任务是研究在已知 ρ_{ob} 情况下反演人为排放源 S_a .

已知 ρ_{ob} 情况下反演出相应的 S_a , 为此定义目标函数 $J(\rho, \rho_{ob})$,

$$J(\rho, \rho_{ob}) \equiv \int_0^T \iiint_{\Omega} \|\rho - \rho_{ob}\|^2 d\Omega dt, \quad (2)$$

于是反演问题就是找到源 S_a , 使得 $J(\rho, \rho_{ob})$ 最小.

参照文 I (曾庆存和吴琳, 2018)中方法, 构造由 ρ_{ob} 反演 S 的伴随算子问题如式(3),

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho^*}{\partial t} = -A^*(\rho^*) - a\rho_{ob}, \\ \Lambda^*(\rho^*)|_{\partial\Omega} = 0, \\ \rho^*|_{t=T} = 0, \end{cases} \quad (3)$$

其中 A^* 和 Λ^* 为与 A 和 Λ 相伴随的算子, a 是为使式(3)两边量纲相同的常数. 式(3)与文 I (曾庆存和吴琳, 2018)和文 II (曾庆存等, 2020)中伴随算子问题的形式相同, 不同之处在于非齐次项, 本文式(3)中是 $a\rho_{ob}$, 而文 I 和文 II 中非齐次项为 aW , 且常数 a 的取值不同.

在已知 ρ_{ob} 情况下, 求解式(3)可得到 ρ^* , 于是用文 I 的方法即可由此 ρ^* 求出满足式(2)的 S . 接下来的任务是在已知 ρ_{ob} 和 S 情况下, 如何反演出 S_a .

2 人为源 S_a 的反演和化学反应速率常数的订正

假定自然源 S_n 已知, 记 $S' \equiv S - S_n$. 因 S_c 是 ρ 的函数, 从而 S_c 本可由已知的 $\rho = \rho_{ob}$ 直接求出, 于是由本文上节求得的 S 就可求得 S_a , 即 $S_a = S' - S_c$. 问题是与 S_c 相关的化学反应方程有可能不准确, 例如其中包含许多关于化学反应速率的常数 γ , 而 γ 大多为由实验室的条件定出, 但实际环境条件不同于实验室, 从而 γ 可能不准确. 如对 γ 不加以订正, 则按 ρ_{ob} 算得的 S_c 就不准确, 从而影响反演 S_a 的准确性. 为此, 我们建议一种同时订正 γ 和求出 S_a 的方法, 称之为“双重订正迭代反演法”, 如下:

将原化学公式的 γ 记作 $\gamma^{(0)}$, 由 $\gamma^{(0)}$ 和 ρ_{ob} (记作 $\rho^{(0)}$)算得的 S_c 记作 $S_c^{(0)}$, 于是有 $S_a^{(0)} = S' - S_c^{(0)}$. 将 $S_a^{(0)}$ 作为 S_a 代入带有原化学反应方程(即用原常数 $\gamma^{(0)}$)的大气污染动力学方程和初边值条件, 一起算出 ρ 和 S_c , 分别记作 $\rho^{(1)}$ 和 $S_c^{(1)}$.

如果 $\|\rho^{(1)} - \rho_{ob}\|$ 很小, 可推出 $\|\rho^{(1)}\|$ 与 $\|\rho_{ob}\|$ 也相差很小, 说明 $\gamma^{(0)}$ 较准确, $S_{cc}^{(1)}$ 与 $S_c^{(0)}$ 应相差不大, 从而 $S_a^{(0)}$ 与实际的 S_a 相差不大, 即取 $S_a = S_a^{(0)}$ 可靠. 如果 $\|\rho^{(1)} - \rho_{ob}\|$ 和 $\|\rho^{(1)}\| - \|\rho_{ob}\|$ 在可允许范围之外, 则 $\gamma^{(0)}$, $S_c^{(0)}$ 以及 $S_a^{(0)}$ 都不可靠, 需要进行订正.

假设 S_a 不是人为清除剂, 则一般污染物浓度 ρ 的总值 $\|\rho\|$ 和化学反应生成源 S_c 的总值 $\{S_c\}$ 均随人为排放源 S_a 的总值 $\{S_a\}$ 增大而增大, 其中 $\{S_a\}$ 和 $\{S_c\}$ 定义为

$$\{S_a\} = \int_0^T \iiint_{\Omega} S_a d\Omega dt, \quad (4)$$

$$\{S_c\} = \int_0^T \iiint_{\Omega} S_c d\Omega dt. \quad (5)$$

假设这种情况为规律A, 此文即针对这个情况来讨论. 记,

$$\|\rho^{(v)}\| = (1 + \lambda^{(v)})\|\rho_{ob}\|, \quad (6)$$

取 γ 的修正方案如下,

$$\gamma^{(v)} = (1 + \beta^{(v)}w)\gamma^{(0)}, \quad (7)$$

于是

$$\|\gamma^{(v)}\| = \|\gamma^{(0)}\| + \beta^{(v)} \cdot (w, \gamma^{(0)}), \quad (8)$$

其中 $\beta^{(v)}$ 是订正系数, w 是反映各化学反应过程反应速率重要性(对污染物产生率的贡献大小)的权重, 其各分量 $w \geq 0$. 并取 $\lambda^{(0)} = 0$ 和 $\beta^{(0)} = 0$, 从而当 $v=0$ 时, 式(6)和式(7)是自洽的. 在有多种污染物时, γ 和 w 都是向量, 可用化学反应方程本身以及按污染物浓度对该化学反应过程的敏感程度确定 w , 后者与研究大气污染物浓度对污染源的敏感性分析方法类似(刘峰等, 2007; 刘峰和黄顺祥, 2011). 在实用上, 对于那些不大重要的化学反应过程, 可取 w 为零, 而记最敏感者即 w 最大者为 w_M .

将 S_c 看作 γ 和 ρ 的函数, 记作 $S_c(\gamma, \rho)$; 又记

$$S_c^{(v)} \equiv S_c(\gamma^{(v)}, \rho_{ob}), \quad (9)$$

$$S_a^{(v)} \equiv S' - S_c^{(v)}. \quad (10)$$

迭代过程中, 若有一次迭代, 使 $\lambda^{(v)} < 0$, 即 $\|\rho^{(v)}\| < \|\rho_{ob}\|$, 按规律A推理, 有: $\{S_a^{(v-1)}\}$ 过小, 而 $\{S_c^{(v-1)}\}$ 过大, 从而 $\gamma^{(v-1)}$ 过大, 应取 $\beta^{(v)} < \beta^{(v-1)}$, 从而

使 $\{\mathbf{S}_a^{(v)}\} > \{\mathbf{S}_a^{(v-1)}\}$; 若 $\lambda^{(v)} > 0$, 则知 $\{\mathbf{S}_a^{(v-1)}\}$ 过大, 而 $\{\mathbf{S}_c^{(v-1)}\}$ 过小, 即 $\gamma^{(v-1)}$ 过小, 应取 $\beta^{(v)} > \beta^{(v-1)}$.

由此可知, 应取 $\beta^{(1)}$ 如下:

$$\begin{cases} -1/w_M < \beta^{(1)} < \beta^{(0)} = 0, & \text{若 } \lambda^{(1)} < 0, \\ 0 = \beta^{(0)} < \beta^{(1)}, & \text{若 } \lambda^{(1)} > 0. \end{cases} \quad (11)$$

故若 $\lambda^{(1)} < 0$, 由 $v=1$ 起, 取式(11)中 $\beta^{(v)} < \beta^{(v-1)}$, 由式(7)得到 $\gamma^{(v)}$, 代入式(9)和式(10), 得到 $\mathbf{S}_a^{(v)}$ 再计算得 $\mathbf{p}^{(v)}$, 判定 $\lambda^{(v)}$ 符号, 总有一个 $v (v \geq 2)$, 使得 $\lambda^{(v)} > 0$, 于是从此 v 起, 就应取 $\beta^{(v+1)} > \beta^{(v)}$, 即

$$\begin{aligned} \beta^{(v)} < \beta^{(v+1)} < \beta^{(v-1)} \\ (\text{当 } \lambda^{(v-1)} < 0, \lambda^{(v)} > 0 \text{ 时}). \end{aligned} \quad (12)$$

而若 $\lambda^{(1)} > 0$, 由 $v=1$ 起, 应取 $\beta^{(v)} > \beta^{(v-1)}$, 由式(7)得到 $\gamma^{(v)}$, 代入式(9)和式(10), 得到 $\mathbf{S}_a^{(v)}$ 再计算得 $\mathbf{p}^{(v)}$, 判定 $\lambda^{(v)}$ 符号, 总有一个 $v (v \geq 2)$, 使得 $\lambda^{(v)} < 0$, 于是从此 v 起, 就应取 $\beta^{(v+1)} < \beta^{(v)}$, 即

$$\begin{aligned} \beta^{(v-1)} < \beta^{(v+1)} < \beta^{(v)} \\ (\text{当 } \lambda^{(v-1)} > 0, \lambda^{(v)} < 0 \text{ 时}). \end{aligned} \quad (13)$$

如此迭代下去, 将使区间 $(\beta^{(v)}, \beta^{(v+1)})$ 的长度和 $|\lambda^{(v)}|$ 的值愈来愈小, 直到 $\|\mathbf{p}^{(v \rightarrow \infty)} - \mathbf{p}_{\text{ob}}\| < \varepsilon$, ε 为一任意小的正数. 于是 $v \rightarrow \infty$ 时 $\mathbf{S}_a^{(v)}$ 就是所求, 同时也给出了化学反应方程中参数的订正, $\gamma^{(\infty)} = (1 + \beta^{(\infty)} \mathbf{w}) \gamma^{(0)}$.

3 结语和问题讨论

在第2节中我们反演得源排放, 可提供一份较好的动态排放源分布和变化, 同时订正了方程中的一些参数. 如果可全面获得各污染物浓度, 且监测网较密、精度较高的话, 此方法是一举两得. 不过, 这里采取的参数订正办法, 和数值模拟中进行参数调整的方法是类似的, 其缺点是有可能只找到一些适用参数, 治标不治本. 真正要解决化学反应问题, 必须研究化学反应过程动力学问题. 如果难以获得足够稠密、完整和精确的 $\mathbf{p}_{\text{ob}}$, 要反演 $\mathbf{S}_a$, 就要补加关于 $\mathbf{S}_a$ 的一些监测资料, 同时使用第2节求得的源排放, 用资料同化方法, 可见朱江和汪萍(2006)的工作.

参考文献

- 曾庆存, 吴琳. 2018. 大气污染的最优调控与污染源反演问题 I: 离线模式非完整伴随算子的应用. 中国科学: 地球科学, 48: 1110–1115
- 曾庆存, 吴琳, 费可测. 2020. 大气污染的最优调控与污染源反演问题 II: 正负区分判定迭代求优法. 中国科学: 地球科学, 50: 688–692
- 刘峰, 黄顺祥. 2011. 大气环境风险控制的优化理论与应用. 北京: 气象出版社. 84–85
- 刘峰, 张远航, 苏杭, 胡建林. 2007. 大气化学传输模式 CAMx 的伴随模式: 构建及应用. 北京大学学报(自然科学版), 43: 764–770
- 朱江, 汪萍. 2006. 集合卡尔曼平滑和集合卡尔曼滤波在污染源反演中的应用. 大气科学, 30: 871–882

(责任编辑: 张强)