

变分伴随方法应用于大气化学初值和参数反演研究

方涵先^{1,2}, 王廷芳³, 黄思训², 杜华栋²

(1 南京信息工程大学 江苏省气象灾害重点实验室, 江苏 南京 210044

2 解放军理工大学 气象学院, 江苏 南京 211101; 3 成都军区空军气象中心, 四川 成都 610041)

摘要: 将结合正则化思想的变分伴随方法应用于大气平流层中臭氧破坏催化反应过程的浓度初始值和反应速率参数的反演问题, 推导了在整体资料和末端时刻局部资料反演的伴随模式和泛函梯度, 并进行了一组理想数值试验。试验结果表明了变分伴随方法运用于大气化学过程的反演研究的有效性, 特别是局部资料联合反演中可以运用正则化思想克服反演的不适定性。

关键词: 大气化学 参数反演; 变分伴随方法; 正则化思想

中图分类号: P42 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-2022(2007)02-0216-08

Retrieval of the Initial Values and Parameters in Atmospheric Chemistry by the Variational Adjoint Method

FANG Han-xian^{1,2}, WANG Ting-fang³, HUANG Si-xun², DU Hua-dong²

(1. Jiangsu Key Laboratory of Meteorological Disaster, NUIST, Nanjing 210044, China

2. Institute of Meteorology, PLA University of Science and Technology, Nanjing 211101, China

3. Chengdu Meteorological Center of Air Force, Chengdu 610041, China)

Abstract The variational adjoint method in combination with Tikhonov regularization principle is applied to retrieve the initial gas concentrations and reaction rates in chemical reactions about ozone destroying in the stratosphere. The adjoint models and functional gradients are deduced for the complete and incomplete (terminal time) observations of the gases' concentrations respectively. Finally, a series of ideal numerical experiments are performed to show the validity of the variational adjoint method. Especially, Tikhonov regularization principle can be used to overcome the ill-posedness in the case of combinational retrieving for incomplete observations.

Key words parameter retrieval in atmospheric chemistry; variational adjoint method; Tikhonov regularization principle

0 引言

大气化学是大气科学的一门新兴分支学科, 也是现代一门很重要的边缘学科。大气化学的发展和日臻成熟标志着大气科学研究进入了一个新阶段。地球大气的主要成分是氮和氧, 其数量稳定。此外还含有一些微量成分, 其量虽小, 但在地球气候的形成、大气化学过程以及大气环境质量中的作用是巨大的。事实上, 这些微量成分是大脑中变化最明显、化学反应最激烈的成分, 是大气化学研究的主要对象^[1-2]。

在过去的 40 多年里, 对大气化学微量成分的研究有了长足的进步: 一方面是由于光化学理论的进展, 描述微量成分在空间分布和随时间变化的数学模式已基本建立, 如荷兰的长期臭氧模拟模式 LOTOS^[3]; 另一方面是全球观测网的建立, 使得对这些微量成分在全球范围的观测已成为可能。特别是随着现代探测技术的发展, 气象卫星等非定时观测系统可以持续不断地提供全球范围的观测资料, 填补了常规资料在空间分布

收稿日期: 2006-03-04 改回日期: 2006-06-16

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (40505005); 江苏省气象灾害重点实验室资助项目 (KIM E0502); 国家自然科学基金资助项目 (40575052)

作者简介: 方涵先 (1974-), 男, 福建莆田人, 博士, 研究方向: 大气探测, fanghx@ gmail . com.

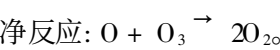
上的空白, 如 1979 年以后的卫星观测资料给出了气柱臭氧总量的空间分布并证实南极地区春季气柱臭氧总量有下降趋势^[4]。基于以上两方面的进步, 大气微量成分的空间分布预报将成为可能。但气象卫星所探测到的资料种类有限, 而且资料不一定是在同一时刻观测的, 因此, 如何有效地利用卫星及其他非常规资料, 将这些不完全的资料同定时的但空间分布不完全的常规资料融合起来在数学预报模式中综合使用, 于是提出了四维同化问题。

四维变分同化技术就是通过变分方法把四维观测资料加以充分利用, 主要思想就是把预报模式和观测资料结合起来, 充分利用两者中的有效信息, 通过非线性模式解与不同时段观测资料集的全局调整达到同化的目的, 其核心本质就是基于最优控制理论, 利用观测信息反演预报模式所需的最优初值或最优模式参数^[5-6]。国内许多学者在资料同化方面做了大量研究工作, 王顺凤等^[7]提出了基于遗传算法的资料同化方法, 李晓莉等^[8]研究了中尺度模式的四维资料同化方法, 费文龙等^[9]对资料同化中的误差进行了分析, 王栋梁等^[6]研究了含有“开关”变量的 MM 5 四维变分同化方案。

本文将变分伴随方法应用于大气化学催化循环过程的参数与初值反演, 用以改进大气微量成分的预报。首先考虑平流层中一个臭氧催化循环破坏模式, 在推导出其伴随模式的前提下, 考虑实施反演的具体方案, 其中分为整体资料和末端时刻局部资料情形, 为了克服反演的不适定性, 参照黄思训等^[10]、Du 等^[11]、Fang 等^[12]、Wang 等^[13]的做法, 结合正则化思想^[14], 对此进行一系列数值试验和结果分析。

1 理论推导

飞机在平流层中飞行会影响大气中臭氧的含量, 超音速飞机的发动机是产生 NO 的源。而 NO 同臭氧进行光化反应, 并且 NO 在大气光化反应中起催化作用。一个 NO 分子可以同原子氧 O 和臭氧 O₃ 组合多次反应:



上面的催化循环反应过程导致大气中臭氧含量的减少。在大气光化反应中, 单位体积里活化分子的数目与反应物的浓度成正比。当反应物浓度增大时, 单位体积内活化分子的数目增多, 单位时间内的有效碰撞次数随之增加, 反应速度也就加快。上述各反应物和产物的浓度之间存在下列关系:

$$\begin{cases} \frac{dx}{dt} = -k_2xy, \\ \frac{dy}{dt} = k_1zw - k_2xy, \\ \frac{dz}{dt} = -k_1zw, \\ \frac{dw}{dt} = k_2xy - k_1zw, \\ x(0) = x_0, y(0) = y_0, z(0) = z_0, w(0) = w_0. \end{cases} \tag{3}$$

其中 x, y, z, w 分别代表气体成分 O₃, NO, O, NO₂ 的浓度, 是时间 t 的函数。考虑到微量气体情况, 取反应物浓度单位为 $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ (微摩尔每升), 而反应速率常数 k_1, k_2 的单位是 $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ (微摩尔每升每天)。下文将分成两种情形讨论, 第一种情形的目标是确定反应物初始浓度 x_0, y_0, z_0, w_0 和反应速率常数 k_1, k_2 的一组最优值, 使得在同化窗口内 x, y, z, w 的预报量和观测资料在各个时刻的误差总和最小, 这显然要求在知道整个同化窗口各计算时刻各状态变量 x, y, z, w 的观测值条件下进行, 本文称之为整体资料反演。另一种情形则是仅已知末端时刻 ($t=T$) 的观测值, 称之为局部资料反演。局部资料反演显然更加具有现实意义, 但其反演难度大于整体资料反演。讨论的具体方案是: 定义一个关于反演初值和参数的目标泛函, 它度量任意模式解和观测之间的距离, 在模式的约束下该目标函数达到最小的解就是初值和参数的最优反演值。下面分别就此两种情形用变分伴随方法导出反演方案。

1.1 整体资料情形

已知在整个 [QT] 上的观测值, 定义目标泛函为

$$J[x_0, y_0, z_0, w_0; k_1, k_2] = \frac{1}{20} \int_0^T [(x - x^{obs})^2 + (y - y^{obs})^2 + (z - z^{obs})^2 + (w - w^{obs})^2] dt. \tag{4}$$

式中: x, y, z, w 为模式 (3) 的预报值, $x^{obs}, y^{obs}, z^{obs}, w^{obs}$ 为参加化学反应的各微量成分的观测值。泛函 J 越小, 表明在满足模式 (3) 的条件下, 预报值与观测值的一致程度越高, 同时说明反演反应物的初始值和反应速率常数越准确。这样就把常微分方程组 (3) 的初值问题和模式参数反演问题转变为求泛函极值问题。

在各种不同的极小化算法 (如最速下降法、牛顿下山法及拟牛顿下山法、共轭梯度法等) 当中, 计算 J 对各调整参数的梯度是必须的, 而这个梯度, 可以用变分伴随方法来获取。下面利用该方法计算目标泛函对模式各参量的梯度, 按 3 个步骤进行。

第 1 步: 导出切线性模式。

对初值 x_0, y_0, z_0, w_0 和反应速率常数 k_1, k_2 进行扰动, 即令

$$\begin{aligned} x_0 \rightarrow x_0 &= x_0 + \alpha \cdot \hat{x}_0, y_0 \rightarrow y_0 = y_0 + \alpha \cdot \hat{y}_0, z_0 \rightarrow z_0 = z_0 + \alpha \cdot \hat{z}_0, \\ w_0 \rightarrow w_0 &= w_0 + \alpha \cdot \hat{w}_0, k_1 \rightarrow k_1 = k_1 + \alpha \cdot \hat{k}_1, k_2 \rightarrow k_2 = k_2 + \alpha \cdot \hat{k}_2, \end{aligned}$$

而用 x, y, z, w 来表示对模式参量 $x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2$ 扰动后通过模式所求得的值。

定义 $\hat{x} = \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{x - x_0}{\alpha}, \hat{y} = \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{y - y_0}{\alpha}, \hat{z} = \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{z - z_0}{\alpha}, \hat{w} = \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{w - w_0}{\alpha}$ 。于是, 将扰动后的模式减去未扰动的模式, 除以 α 后再令 $\alpha \rightarrow 0$ 可得切线性模式为

$$\begin{cases} \frac{d\hat{x}}{dt} = -k_2xy - k_2\hat{x}y - k_2x\hat{y}, \\ \frac{d\hat{y}}{dt} = k_1zw + k_1\hat{z}w + k_1z\hat{w} - k_2xy - k_2\hat{x}y - k_2x\hat{y}, \\ \frac{d\hat{z}}{dt} = -k_1zw - k_1\hat{z}w - k_1z\hat{w}, \\ \frac{d\hat{w}}{dt} = k_2xy + k_2\hat{x}y + k_2x\hat{y} - k_1zw - k_1\hat{z}w - k_1z\hat{w}, \\ \hat{x}(0) = \hat{x}_0, \hat{y}(0) = \hat{y}_0, \hat{z}(0) = \hat{z}_0, \hat{w}(0) = \hat{w}_0. \end{cases} \tag{5}$$

第 2 步: 写出泛函导数的形式。

泛函 J 在 $x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2$ 沿着 $\hat{x}_0, \hat{y}_0, \hat{z}_0, \hat{w}_0, \hat{k}_1, \hat{k}_2$ 的方向导数按定义为

$$\begin{aligned} J' [x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2; \hat{x}_0, \hat{y}_0, \hat{z}_0, \hat{w}_0, \hat{k}_1, \hat{k}_2] = \\ \cdot \hat{x}_0 J \cdot \hat{x}_0 + \cdot \hat{y}_0 J \cdot \hat{y}_0 + \cdot \hat{z}_0 J \cdot \hat{z}_0 + \cdot \hat{w}_0 J \cdot \hat{w}_0 + \cdot \hat{k}_1 J \cdot \hat{k}_1 + \cdot \hat{k}_2 J \cdot \hat{k}_2 \end{aligned} \tag{6}$$

再利用 J 的表达式 (4) 有

$$\begin{aligned} J' [x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2; \hat{x}_0, \hat{y}_0, \hat{z}_0, \hat{w}_0, \hat{k}_1, \hat{k}_2] = \\ \int_0^T [(x - x^{obs}) \cdot \hat{x} + (y - y^{obs}) \cdot \hat{y} + (z - z^{obs}) \cdot \hat{z} + (w - w^{obs}) \cdot \hat{w}] dt \end{aligned} \tag{7}$$

第 3 步: 导出伴随及伴随边界条件, 求出泛函梯度的表达形式。

引进伴随变量 P_1, P_2, P_3, P_4 , 分别乘以 (5) 的第 1、2、3、4 式并相加, 然后在同化窗口 (QT) 上进行积分, 通过分步积分后可得

$$\begin{aligned} (\hat{x}P_1 + \hat{y}P_2 + \hat{z}P_3 + \hat{w}P_4) \Big|_{t=0}^{t=T} = \\ \int_0^T \left[\frac{dP_1}{dt} - k_2y(P_1 + P_2 - P_4) \right] \cdot \hat{x} dt + \int_0^T \left[\frac{dP_2}{dt} - k_2x(P_1 + P_2 - P_4) \right] \cdot \hat{y} dt + \\ \int_0^T \left[\frac{dP_3}{dt} + k_1w(P_2 - P_3 - P_4) \right] \cdot \hat{z} dt + \int_0^T \left[\frac{dP_4}{dt} + k_1z(P_2 - P_3 - P_4) \right] \cdot \hat{w} dt + \\ \int_0^T zw(P_2 - P_3 - P_4) \cdot \hat{k}_1 dt + \int_0^T xy(P_4 - P_2 - P_1) \cdot \hat{k}_2 dt \end{aligned} \tag{8}$$

引进伴随方程和定解条件:

$$\left\{\begin{array}{l} -\frac{dP_1}{dt} = -k_2y(P_1 + P_2 - P_4) + (x - x^{obs}), \\ -\frac{dP_2}{dt} = -k_2x(P_1 + P_2 - P_4) + (y - y^{obs}), \\ -\frac{dP_3}{dt} = -k_1w(P_3 + P_4 - P_2) + (z - z^{obs}), \\ -\frac{dP_4}{dt} = -k_1z(P_3 + P_4 - P_2) + (w - w^{obs}), \\ P_1(T) = P_2(T) = P_3(T) = P_4(T) = 0 \end{array}\right. \tag{9}$$

将 (9) 式代入 (8) 式, 并利用 (5) 中的初始值条件有

$$\begin{aligned} -(\hat{x}P_1 + \hat{y}P_2 + \hat{z}P_3 + \hat{w}P_4) \Big|_{t=0} = & -\int_0^T (x - x^{obs}) \cdot \hat{x} dt - \\ & \int_0^T (y - y^{obs}) \cdot \hat{y} dt - \\ & \int_0^T (z - z^{obs}) \cdot \hat{z} dt - \\ & \int_0^T (w - w^{obs}) \cdot \hat{w} dt + \\ & \int_0^T w(P_2 - P_3 - P_4) \cdot k_1 dt + \\ & \int_0^T xy(P_4 - P_2 - P_1) \cdot k_2 dt \end{aligned} \tag{10}$$

将 (10) 的右边和左边分别与 (6) 和 (7) 式比较

$$\begin{aligned} & \dot{\hat{x}}_0 J \cdot \hat{x}_0 + \dot{\hat{y}}_0 J \cdot \hat{y}_0 + \dot{\hat{z}}_0 J \cdot \hat{z}_0 + \dot{\hat{w}}_0 J \cdot \hat{w}_0 + \dot{k}_1 J \cdot k_1 + \dot{k}_2 J \cdot k_2 = \\ & P_1(0) \cdot \hat{x}_0 + P_2(0) \cdot \hat{y}_0 + P_3(0) \cdot \hat{z}_0 + P_4(0) \cdot \hat{w}_0 + \\ & \int_0^T w(P_2 - P_3 - P_4) \cdot k_1 dt + \int_0^T xy(P_4 - P_2 - P_1) \cdot k_2 dt \end{aligned} \tag{11}$$

将上式右端按 $\hat{x}_0, \hat{y}_0, \hat{z}_0, \hat{w}_0, k_1, k_2$ 合并同类项后与左端比较系数就得到各参量的关于泛函 (4) 的梯度值为

$$\left\{\begin{array}{l} \dot{\hat{x}}_0 J = P_1(0), \\ \dot{\hat{y}}_0 J = P_2(0), \\ \dot{\hat{z}}_0 J = P_3(0), \\ \dot{\hat{w}}_0 J = P_4(0), \\ \dot{k}_1 J = \int_0^T w(P_2 - P_3 - P_4) dt, \\ \dot{k}_2 J = \int_0^T xy(P_4 - P_2 - P_1) dt. \end{array}\right. \tag{12}$$

1.2 局部资料情形

对于仅已知末端时刻状态量观测值的情形, 定义目标泛函如下:

$$\begin{aligned} J[x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2] = & \frac{1}{2} [(x - x^{obs})^2 + (y - y^{obs})^2 + (z - z^{obs})^2 + (w - w^{obs})^2] \Big|_{t=T} + \\ & \frac{\gamma}{2} [(y_0 - x_0 + z_0)^2 + (x_0 - z_0 + w_0)^2]_0. \end{aligned} \tag{13}$$

各字母涵义同前述, 为了克服局部资料反演的不适定性, 类似于一些研究运用了 Tikhonov 正则化思想, 即在目标泛函中引入稳定泛函 (即上式右端第 2 项), 这里 γ 是一个正的常数, 被称为正则化参数, 在反演计算中

调整其值使得反演快速有效地收敛到最优解。类似于前小节的推导可以得伴随方程和定解条件为

$$\left\{ \begin{aligned} -\frac{dP_1}{dt} &= -k_2y(P_1 + P_2 - P_4), \\ -\frac{dP_2}{dt} &= -k_2x(P_1 + P_2 - P_4), \\ -\frac{dP_3}{dt} &= -k_1w(P_3 + P_4 - P_2), \\ -\frac{dP_4}{dt} &= -k_1z(P_3 + P_4 - P_2), \\ P_1(T) &= (x - x^{obs}) \Big|_{t=T}, \quad P_2(T) = (y - y^{obs}) \Big|_{t=T}, \\ P_3(T) &= (z - z^{obs}) \Big|_{t=T}, \quad P_4(T) = (w - w^{obs}) \Big|_{t=T}. \end{aligned} \right. \tag{14}$$

泛函梯度表达式为

$$\left\{ \begin{aligned} \dot{J}_{x_0} &= P_1(0) + \forall (2x_0 - y_0 - 2z_0 + w_0), \\ \dot{J}_{y_0} &= P_2(0) + \forall (y_0 - x_0 + z_0), \\ \dot{J}_{z_0} &= P_3(0) + \forall (y_0 - 2x_0 + 2z_0 - w_0), \\ \dot{J}_{w_0} &= P_4(0) + \forall (x_0 - z_0 + w_0), \\ \dot{J}_{k_1} &= \int_0^T w(P_2 - P_3 - P_4) dt, \\ \dot{J}_{k_2} &= \int_0^T y(P_4 - P_2 - P_1) dt \end{aligned} \right. \tag{15}$$

1.3 计算流程

记 $R = (R_1, R_2, R_3, R_4, R_5, R_6) = (x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2)$, 在各参变量的泛函梯度求出之后, 选择合适的下降算法, 对各参变量进行迭代,

$$R_j^{i+1} = R_j^i - \dot{J}_{R_j} \Big|_{R^i} \cdot \vartheta_j^{i+1}. \tag{16}$$

最终可以获得所求的各参数值。这里当 $i = 0$ 时代表猜测值; $\vartheta_j^{i+1} (j = 1, 2, \dots, 6)$ 为第 i 次迭代步长, 其具体大小由下降算法决定。

总的说来, 利用伴随方法对反应物浓度初值和反应速率常数进行反演可以分为以下 5 个步骤:

第 1 步, 给出各未知量 $x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2$ 的初始猜测值;

第 2 步, 利用新的猜测值, 对模式 (3) 进行积分, 获得同化窗口各时刻的预报值 $x(t), y(t), z(t), w(t)$, 并加以存贮;

第 3 步, 利用同化窗口内的预报值 x, y, z, w 和观测值 $x^{obs}, y^{obs}, z^{obs}, w^{obs}$, 对伴随模式从 $t = T$ 到 $t = 0$ 进行反向积分, 求得伴随值 P_1, P_2, P_3, P_4 ;

第 4 步, 利用适当的下降算法, 求出步长 ϑ_j^{i+1} , 按照 (16) 式对各参量进行迭代, 求出新的参量值;

第 5 步, 按照公式 (12) 或 (15) 求各参量的泛函梯度值, 如果满足程序终止条件 (如达到所要求的收敛精度或是虽未达到此精度, 但迭代次数已达到事先预设的最大迭代次数), 则终止程序; 若不满足, 利用新的 $x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2$ 值从第 2 步开始进行新一轮的迭代循环。

2 数值试验

数值试验的设计是首先给反应物浓度和反应速率 $x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2$ 赋予一定的初始值, 并假定这些值是准确的, 利用这些值对正模式从 $t = 0$ 到 $t = T$ 进行积分, 将获得的预报值作为观测值 $x^{obs}, y^{obs}, z^{obs}, w^{obs}$ 。然后对初始值和反应速率参数进行扰动, 将扰动后的值作为 $x_0, y_0, z_0, w_0, k_1, k_2$ 的估计值, 并将这些估计值作

为计算流程第 1 步中的初始值, 进行迭代。值得注意的是将伴随模式的时间自变量反号, 也变成和正模式类似, 都是常微分方程组的初值问题, 而且在程序编制时完全可以共用积分子例程。具体计算时对常微分方程组初值问题采用了四阶精度的 Runge-Kutta 方法, 当然如果发现是刚性问题, 则可以改用 Gear 方法。下降算法是调用 M1QN3 子程序实现的^[15]。

本文在全球观测资料和仅有末端时刻局部观测资料条件下, 分别做了仅反演气体浓度初始值、仅反演反应速率以及二者联合反演的一组数值试验, 反演结果对比见表 1。计算中将整个同化时间窗口取为 1 d 即在 $t \in [0, 1]$ 上计算。这里浓度初始值、反应速率的准确值分别取的是 $(10.0, 5.0, 2.0, 1.0, 0.10, 0.10)$, 仅反演气体浓度初始值对应初猜值取的是 $(7.0, 7.5, 3.2, 1.4, 0.10, 0.10)$, 仅反演反应速率对应初猜值取的是 $(10.0, 5.0, 2.0, 1.0, 0.08, 0.08)$, 二者联合反演对应初猜值取的是 $(7.0, 7.5, 3.2, 1.4, 0.08, 0.08)$ 。这里浓度单位为 $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$, 反应速率单位为 $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$ 。反演前(后)总误差指的是将用初猜值(反演值)求解正问题得到计算时间格点上气体浓度预报值与准确值之间的方差(即差值平方和的平方根), 显然可以用该量来度量预报场与准确场(即观测场)的逼近程度。另外表中的浓度计算值是截断表示的, 所取有效位数足以表现反演的准确程度即可。正则化参数取 0.000 03。

从表 1 可见, 整体资料的反演以及末端时刻局部资料非联合反演都是非常成功的, 而且不必使用正则化, 这当然是由于准确观测信息的富足使得反问题的适定性得到了充分满足。比较而言, 局部资料反演比整体资料反演困难, 联合反演比非联合资料反演困难, 反演参数越多(比如浓度初始值就比反应速率多两个量)反演越困难, 这从表 1 中反演值、反演前后预报场误差值、泛函下降数量级以及最大迭代次数等都可以看出来。

表 1 反演数值试验结果

Table 1 Results of numerical experiments of initial value retrieval

	[O ₃] / ($\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$)	[NO] / ($\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$)	[O] / ($\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$)	[NO ₂] / ($\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$)	k ₁ / ($\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$)	k ₂ / ($\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{d}^{-1}$)	反演前预 报总误差	反演后预 报总误差	泛函下降 数量级	迭代 次数
气体浓度初值和 反应速率的准确值	10.00	5.00	2.00	1.00	0.100	0.100				
气体浓度初值和 反应速率的初猜值	7.00	7.50	3.20	1.40	0.080	0.080				
仅反演浓度初值 ¹⁾	10.00	5.00	2.00	1.00			41.966 74	0.001 28	9	11
仅反演反应速率 ¹⁾					0.100	0.100	4.229 96	0.000 02	10	17
联合反演 ¹⁾	10.00	5.00	2.00	1.00	0.100	0.100	41.301 88	0.000 73	9	42
仅反演浓度初值 ²⁾	10.000 1	5.000 1	1.999 9	1.000 0			41.966 74	0.011 13	9	11
仅反演反应速率 ²⁾					0.100	0.100	4.229 96	0.000 18	9	9
联合反演未使用正则化 ²⁾	9.511 7	4.702 7	1.809 0	1.297 2	0.058 6	0.087 4	41.301 88	3.027 92	6	21
联合反演使用正则化 ²⁾	9.836 8	4.846 7	1.990 1	1.153 4	0.096 2	0.096 6	41.301 88	1.185 35	9	16

注: 1)整体资料; 2)局部资料。

特别要指出的是, 末端时刻局部资料联合反演初始浓度和反应速率显然是不适定的, 因为问题的微分方程系统在不同的定解条件下都可能在末端时刻达到相同的状态目标。为了解决这个困难, 本文根据反问题正则化思想引入了稳定泛函, 这种数学上的技巧必须符合问题物理化学本质, 前述的稳定泛函正好是状态变量组合的正定守恒量。其中正则化参数的选择至关重要, 可以参考有关偏差原则的工作^[16]。从表 1 的结果明显看出正则化在局部资料联合反演中是有明显效果的。为了进一步说明这点, 图 1 给出了局部资料联合反演 4 种气体浓度在计算时段内的变化情况, 并将初猜值预报场、未使用正则化反演值预报场、使用正则化反演值预报场与准确观测场做了直观对比, 可见没有进行正则化时, 末端时刻观测信息很难决定远离该时刻的浓度值, 因此初值误差较大, O 浓度初值甚至偏离到不可用的程度, 这些初始值也必然在较大误差的反应

速率条件下使气体浓度在末端时刻达到已知目标信息, 而使用正则化方法则使得误差大为减小, 不过效果仍然比整体资料或非联合反演情形差得多。本文没有给出其他数值试验的这种图示, 因为从表 1 很容易知道在那些情形下反演的预报场与观测场将近于完全重合。

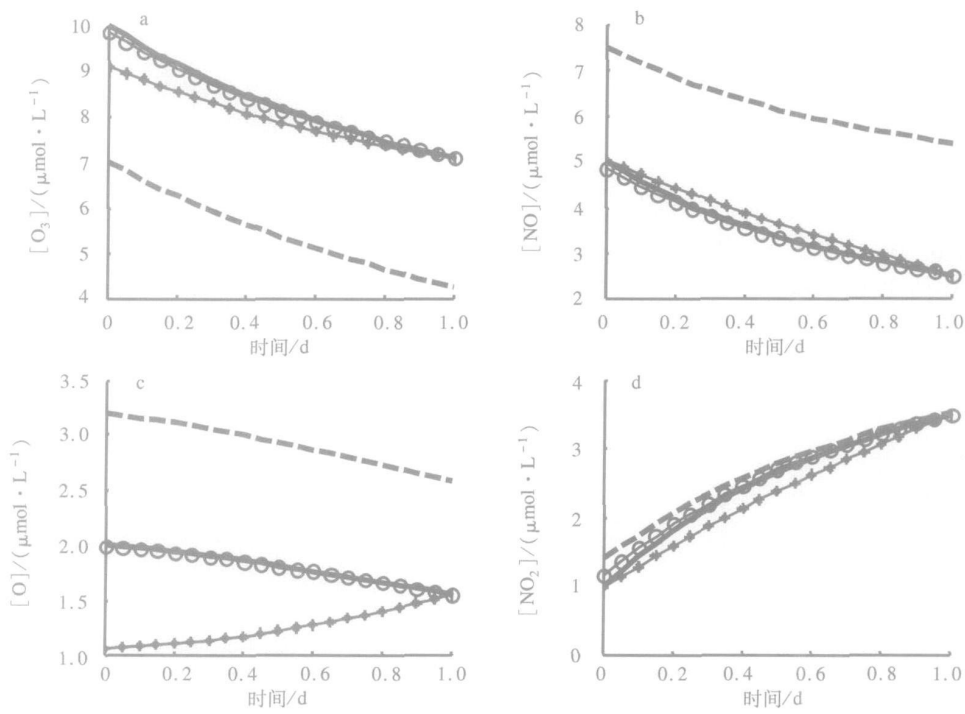


图 1 末端时刻局部资料联合反演浓度初值和反应速率时 O_3 (a)、 NO (b)、 O (c) 和 NO_2 (d) 气体浓度的变化曲线 (实线表示利用准确浓度初值和反应速率预报反应过程中气体浓度值, 虚线表示利用猜测浓度初值和反应速率预报反应过程气体浓度值, 带* 号线表示利用未正则化反演浓度初值和反应速率预报反应过程中气体浓度值, 带圈线表示利用正则化反演浓度初值和反应速率预报反应过程中气体浓度值)

Fig 1 Temporal evolution curves of concentrations of (a) O_3 , (b) NO , (c) O and (d) NO_2 in the combinational retrieval with the observations given at terminal time (Solid lines represent the true concentrations of gases, dash lines ones predicted with guessed (disturbed) initial concentrations and reaction rates, lines with stars ones predicted with the initial concentrations and reaction rates retrieved by the variational adjoint method without Tikhonov regulation and lines with circles ones predicted with the initial concentrations and reaction rates retrieved by the variational adjoint method in combination with Tikhonov regulation)

3 小结

本文先就大气平流层中一个关于 O_3 、 NO 、 O 、 NO_2 的催化循环反应过程给出了这 4 种物质浓度变化的常微分方程组的初值模型, 然后提出了该模型的浓度初始值和反应速率参数的反演问题。为此分别在整体资料和末端时刻局部资料条件下定义了适当的目标泛函, 采用变分伴随方法从理论上推导出反演的伴随方程和定解条件, 以及关于反演参数的泛函梯度。对于局部资料情形, 为了克服反问题的不适定性, 特别引入稳定泛函, 将正则化思想运用于反演中, 最后进行了各种组合情形下一组理想数值试验, 试验结果表明:

- (1) 基于微分方程最优控制的变分伴随方法运用于大气化学过程的反演研究是可以实行的;
- (2) 整体资料的反演以及末端时刻局部资料非联合反演因为观测信息的富足, 反演是适定的, 所以在未使用正则化的情况下就非常成功;
- (3) 整体资料反演比局部资料反演容易, 非联合反演比联合反演容易;
- (4) 局部资料联合反演是不适定的, 引入稳定泛函, 使用正则化方法可能显著地改善反演效果。

本文的研究是变分伴随方法在大气化学中的初步尝试, 因为模型属于最简单的空间零维情形, 无法描述

扩散过程, 另外缺乏有关资料而只进行了理想数值试验, 这些有待今后进一步完善。

参考文献:

- [1] 王明星. 大气化学 [M]. 北京: 气象出版社, 1991
- [2] 蒋维楣, 蔡晨霞, 杨涛, 等. 城市交通废气与低层大气臭氧形成和分布的数值模拟 [J]. 气象科学, 2001, 21 (4): 409-416
- [3] Simpson D. Long period modelling of photochemical oxidants in Europe Calculations for July 1985 [J]. Atmos Environ, 1992, 26A: 1609-1634
- [4] Kirill Y, Kondratyev, Varotsos C A. Atmospheric ozone variability: implication for climate change, human health and ecosystems [M]. Chichester (UK): Springer Praxis Publishing, 2000.
- [5] Courtier P, Talagrand O. Variational assimilation of meteorological observations with the adjoint vorticity equation. Part II. Numerical results [J]. Quart J Roy Meteor Soc, 1987, 113: 1629-1647.
- [6] 王栋梁, 沈桐立. 包括“开关”变量的 MM 5 四维变分资料同化系统 [J]. 气象科学, 2003, 23 (4): 426-434.
- [7] 王顺风, 沈桐立, 张建伟, 等. 基于进化方向遗传算法的四维变分资料同化方法 [J]. 南京气象学院学报, 2002, 25 (6): 740-746
- [8] 李晓莉, 沈桐立, 孙麟平, 等. 中尺度模式的四维伴随同化系统及其同化试验 [J]. 南京气象学院学报, 2002, 25 (1): 36-44
- [9] 费文龙, 朱克云. 关于伴随同化方法的误差分析 [J]. 南京气象学院学报, 2001, 24 (2): 237-241.
- [10] 黄思训, 韩威, 伍荣生. 结合反问题技巧对一维海温模式变分资料同化的理论分析及数值试验 [J]. 中国科学: D 辑, 2003, 33 (9): 903-911
- [11] Du Huadong, Huang Sixun, Shi Hanqing. The theoretical analysis and numerical experiments in the retrieval for the 1-D semi-geostrophic shallow water model [J]. Journal of Hydrodynamics Ser A, 2004, 19 (1): 38-45
- [12] Fand Hanxian, Huang Sixun, Wang Tingfang. Retrieval study of 1-dropsonde motion [J]. Journal of Hydrodynamics Ser A, 2004, 19 (1): 53-60
- [13] Wang Tingfang, Huang Sixun, Xiang Jie. Studies on retrieval of the turbulivity of atmospheric boundary layer [J]. Journal of Hydrodynamics Ser B, 2006, 18 (2): 177-183
- [14] Kirsch A. An introduction to the mathematical theory of inverse problems [M]. New York: Springer-Verlag, 1996.
- [15] Gilbert J C, Lemarachal C. Some numerical experiments with variable storage quasi-Newton algorithms [J]. Math Programming, 1990, B45: 407-435
- [16] 李俊, 黄思训. 改进的偏差原则在大气红外遥感及反演中的应用 [J]. 中国科学: D 辑, 2001, 31 (1): 70-80