

大气污染物浓度变化的非线性特征分析^{*}

刘 罡 李 昕 胡 非

(中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029)

郝文强

(河北省定州市环境保护局, 定州 073000)

崔克俭

(河北省定州市技术监督局, 定州 073000)

摘 要 研究了大气污染物浓度变化的非线性动力学特征, 首次详细考察了污染物浓度时间序列的谱分布、结构函数、自相关函数、时间变化曲线的分数维、相空间中吸引子的关联维及最大 Lyapunov 指数。此外, 当前在国际上得到广泛应用的小波分析方法也能对揭示污染物浓度变化的非线性特征提供很好的帮助。

关键词: 大气污染; 时间序列; 非线性特征

1 引言

当前, 人类赖以生存的大气环境正受到日益严重的破坏, 空气污染不仅危害人体健康, 而且破坏包括大气圈在内的整个生态系统的平衡。因此, 在改造自然, 发展生产的同时, 必须考虑到保护环境。大气污染的预测与防治是实现这一基本目标的科学前提。只有深入地了解大气污染机理, 并且运用科学的手段预测各种条件下大气污染物的时空分布和变化规律, 才能及时采取措施实现预防和治理, 达到保护环境的目的^[1]。

国际上较早开展空气污染预报研究的国家有美国、英国、日本、荷兰、前苏联等。污染预报按其内容主要分为潜势预报和浓度预报两大类。前者主要着眼于标志大气稀释扩散能力的那些气象条件, 当预期的气象条件符合可能造成严重污染的标准(判据)时, 就发出警报, 以便有关部门采取必要的预防措施; 后者则直接预报某一地区范围内的污染物浓度, 使预报更加定量化。浓度预报常用的方法又分为统计预报法和数值模式预报法两种。20世纪60年代和70年代大都采用潜势预报方法即预报污染的气象条件, 不能给出污染物浓度的定量结果。进入20世纪80年代以后, 国际上开始致力于定量的污染浓度预报, 包括统计预报和数值预报。如韩国、墨西哥及中国台湾和香港地区均采用统计预报; 而美国、荷兰和日本等国则采用数值预报模式^[1,2]。

另一种预报方法即时间序列预报方法也可以给出定量的结果。该方法一直是在大量的科学理论研究, 实验研究以及工程技术上得到较为广泛应用的一种预报方法^[3], 但在空气污染预报中的应用还很少见, 特别是非线性动力学预报。因此, 将其应用到空气污染预报研究中来可以说是一种新的尝试。

大气污染数值预报中的一个关键问题是气象背景场特别是中尺度气象场的预报, 但

2000-01-18 收到, 2001-04-04 收到修改稿

^{*} 中国科学院“九五”重大项目“大气污染预测的理论和研究方法研究”(KZ951-A1-403)资助

这往往是很困难的。由于大气运动本质上是非线性的,特别是气象预报模式是一个包含了许多非线性过程的复杂系统,因而受到可预报性问题的制约。以 Blackadar 的大气边界层模式为例(该边界层模式在目前许多流行的中尺度气象预报模式中被采用,例如 MM5、RAMS、LAMPS 等),McNider 等^[4]研究发现,该模式对地转风参数非常敏感,当地转风等于 9 m/s 时,模拟的地面温度出现了不应有的振荡,而当地转风达到 18 m/s 时,地面温度更是出现了物理上不可能发生的尖点突变。这一事实说明在一定的条件下,气象模式有时可能运行不下去,或者说预报结果完全不可靠。在这种情况下,时间序列预报方法就有很好的用武之地。此外,运行气象模式需要较好的计算机条件和气象资料保障,这在有些地区或城市很难满足,而时间序列预报则不需要太高的计算机条件,也不会对气象资料提出较高的要求。

研究大气污染物浓度时间序列变化的非线性动力学特征,目的是为开展污染物浓度的非线性时间序列预报提供基础。根据目前一般非线性动力学研究的基本结果^[5~7],本文从谱分布(Fourier 分析)、结构函数、自相关函数、物理空间的分数维(即时间变化曲线的分数维)、相空间中吸引子的关联维、Lyapunov 指数等几方面首次详细考察了污染物浓度时间序列的非线性特征。采用当前在国际上得到广泛应用的小波分析方法^[8~11]也很好地揭示出了污染物浓度资料的非线性特征。

2 观测资料介绍

大气污染物浓度时间序列取自美国环保局(EPA)的实际观测资料。观测值为小时平均浓度,长度为 10 年(1983~1992),污染物为 CO 、 NO_x ($\text{NO}+\text{NO}_2$) 和 O_3 。观测在两个地点同时进行,都属于城市环境,一个在布里斯托尔(Bristol),位于费城(Philadelphia)的东北,宾夕法尼亚(Pennsylvania)州的东部;另一个在纽卡斯尔(New Castle),位于匹兹堡(Pittsburgh)的西北,宾夕法尼亚州的西部。观测的详细情况可参见文献[12]。

图 1 所示为第 1 年的浓度资料。从图 1 中可看出,污染物浓度的变化有明显的季周期性,例如 O_3 在春季和夏季出现较高的浓度值,而 CO 和 NO_x 则出现较低的浓度值,这与 O_3 是由一次污染物通过光化学反应而产生的二次污染物有关。图 2 为污染物浓度日变化的一个例子。由图 2 可见,污染物浓度的变化也有很强的日周期性。

3 非线性动力学特征分析

3.1 谱分布

图 3 为污染资料的谱分布(由快速 Fourier 变换获得)。由图 3 可见,所有的谱均为连续的宽带谱(这里只给出其中一组资料的结果),但在连续谱的高频部分又叠加了一些代表周期特征的尖峰,尤其以对应于 24 小时和 12 小时周期的峰值最为明显,这反映了人类活动和气象条件的影响。连续的宽带谱表明信号含有非周期的成分,而如果在高频部分可以确定出一段频率范围,即在某个频率之上,谱密度 $p(f)$ 与频率 f 呈幂函数关系,即 $p(f) \sim f^{-\beta}$,则称谱密度为标度不变的(或分形的),而 β 称为谱指数。从图 3 中

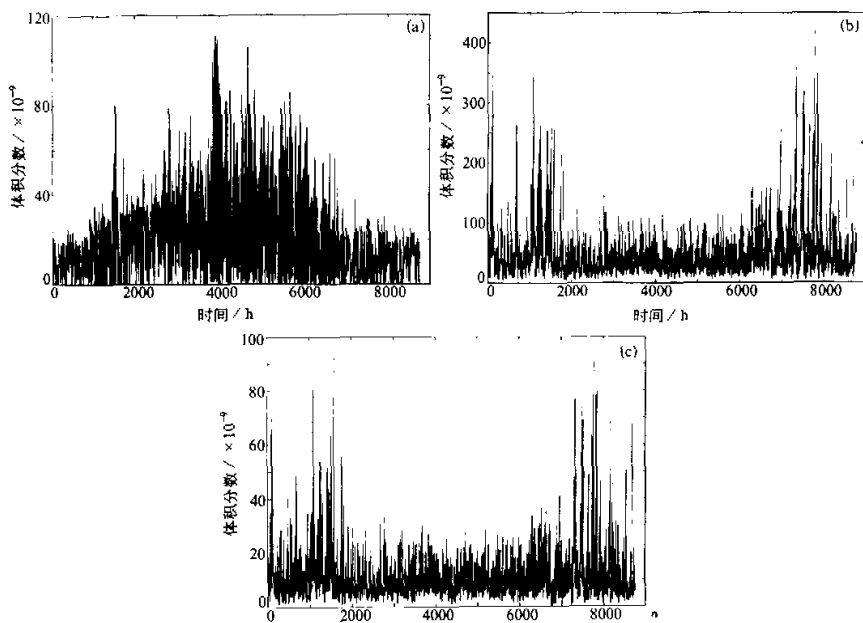


图1 大气污染物浓度时间序列(观测地点在纽卡斯尔, 观测时间1年)

(a) O_3 ; (b) NO_x ; (c) CO

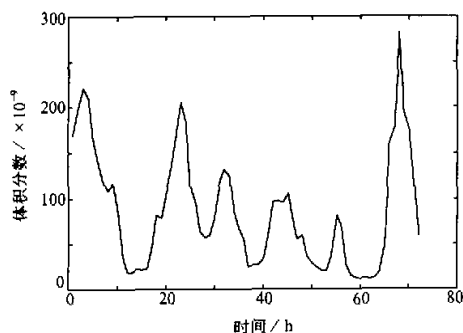
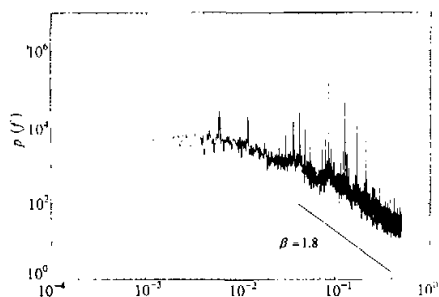
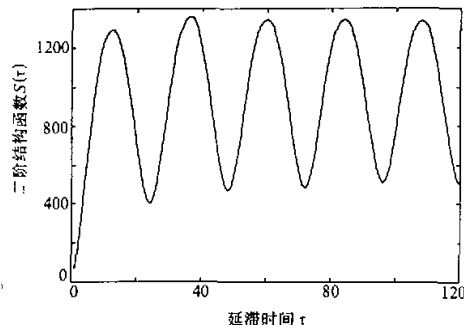


图2 NO_x 浓度时间序列(观测地点在布里斯托尔, 观测时间3天)

可看出, $f \approx 4 \times 10^{-2}$, 恰好对应于一天的时间尺度, 当 f 大于此频率时, 上述的关系成立, 且对于 CO 和 NO_x , $\beta = 1.8$, 而对于 O_3 , $\beta = 1.9$ 。两者的谱指数均小于 2, 表明这是一种标度行为, 类似于分形布朗运动, 而不像纯随机的经典布朗运动^[13]。同时也说明, 污染物浓度的变化并不是毫无规律的, 而是存在内在的稳定的动力学机制, 是由周期变化和非周期变化的影响共同造成的^[12,14]。

3.2 结构函数

图 4 为一组污染资料的二阶结构函数图。所有资料的二阶结构函数都呈现出相同的变化特征, 即在较低的时间尺度有一个清晰明显的标度区, 而当时间尺度稍稍增大(大约为 1 天)后, 出现了一个平台, 但又不是绝对的平台, 而是在其上叠加了一些峰值, 使得二阶结构函数呈振荡型, 表明时间序列有周期性; 同时也说明时间序列是非线性的, 因为对于线性时间序列来说, 它的二阶结构函数应该是抛物线型的^[5]。这些事实再

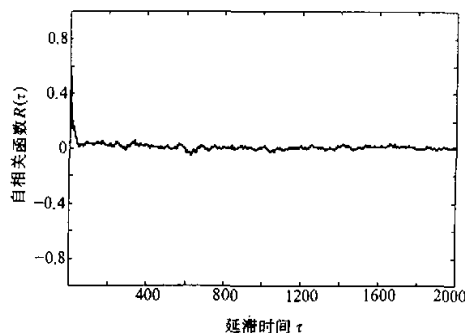
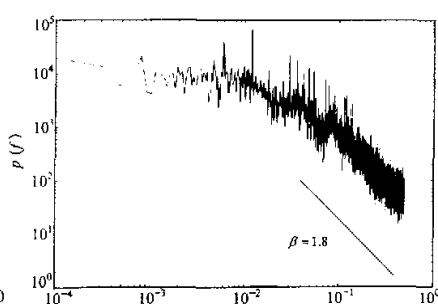
图3 去周期前纽卡斯尔 NO_x 资料的谱分布图4 布里斯托尔 O_3 资料的二阶结构函数

次应证了上述 Fourier 谱分析的结论, 表明污染物浓度时间序列在周期变化的基础上还叠加了非周期、非线性的成分, 而标度不变性(分形性)则有助于我们深入理解污染物浓度变化的内在机理^[12,14]。

为了对时间序列的非周期性变化进行非线性动力学特征分析与预报, 本文采用差分方法, 对污染资料进行了高通滤波, 做了去周期处理。

3.3 自相关函数

图 5 和 6 分别是去掉周期之后的污染资料的自相关函数图和谱分布图。从图中可看出, 时间序列的自相关函数随着延滞时间的增加迅速衰减, 只在零点附近振荡; 而谱除了在其连续的背景上已看不到明显的峰值外, 其余的性质保持不变。这些正是非线性时间序列的显著特征, 同时也说明去周期的效果是明显的。

图5 布里斯托尔 CO 资料的自相关函数图6 去周期后纽卡斯尔 NO_x 资料的谱分布

3.4 曲线分数维

连续观测取样得到的大气污染物浓度时间序列曲线是不规则的(见图 1), 特别是其细节部分呈现出复杂的多层次结构, 分数维可以定量地度量这种复杂结构^[13]。

对于一维曲线, 有不少计算分数维的方法^[15~17]。经过反复的数值试验比较, 我们发现以 Dubuc 等^[17]提出的所谓“变分法”最为方便、省时。

去掉周期后的大气污染物浓度时间序列的曲线分数维计算结果如表 1 所示。可见,

表 1 大气污染物浓度时间序列的曲线分数维

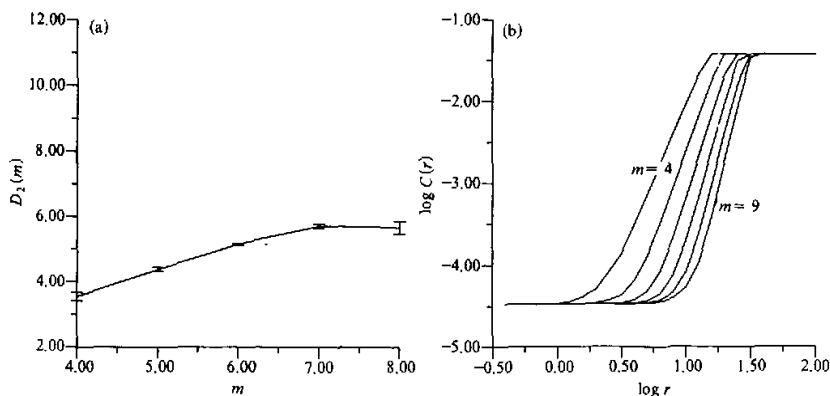
	O ₃	NO _x	CO
布里斯托尔	1.732	1.755	1.669
纽卡斯尔	1.780	1.688	1.660

其分数维均较大, 最小的也有 1.660, 与湍流曲线的分数维相近^[18~20]。这反映了污染物浓度时间变化的复杂性。按照分形理论, 这样复杂的曲线其背后一定是受着非线性混沌动力学的制约。若

要对其进行预报, 必须考虑其非线性特性, 并受到可预报性极限的限制。

3.5 吸引子关联维

我们从时间序列出发重构相空间后, 运用经 Theiler^[21]改进后的 G-P 算法^[22]对去周期后的污染资料进行了计算。图 7 和表 2 是大气污染物浓度时间序列的吸引子关联维。由此发现, 大气污染物浓度的变化存在着低维的混沌吸引子^[13]。从图 7 中可以看到, $C(r)$ 与 r 之间的标度关系在 $\log C(r)$ 与 $\log r$ 图中表现为一段直线, 而关联维 $D_2(m)$ 随嵌入

图 7 纽卡斯尔 O₃ 浓度变化的吸引子关联维

(a) $D_2(m)$ - m 关系, m 为嵌入维, $D_2(m)$ 为关联维; (b) $\log C(r)$ - $\log r$ 关系, r 为搜索半径, $C(r)$ 为相关和

维数 m 的变化也表现出饱和趋势。表 2 给出了计算得到的各组资料的具体关联维数。

从表 2 中可知: 由不同地区、不同污染物的资料得到的吸引子维数是不相同的, 但总的来说又没有很大的差别, 分数维值都比较接近, 在 4.5~7.5 左右。这表明大气污染物浓度的变化规律有一定的普适性, 描写大气污染物浓度变化的动力学行为可能只需要 5~8 个变量 (即动力学系统可能的自由度数目)^[13]; 对于同一污染物的吸引子维数, 纽卡斯尔均大于布里斯托尔, 这显示在纽卡斯尔描写大气污染物浓度变化的动力学变量比布里斯托尔的要多, 表明在纽卡斯尔支配大气污染物浓度变化的动力学成因要更为复杂。此外, 同一地区、不同污染物比较, O₃ 和 NO_x 的分数维值较为接近, 并且均小于 CO, 这表明影响 CO 浓度变化的潜在的动力学因子比 O₃ 和 NO_x 的要多, 变化规律也要更为复杂。

表 2 大气污染物浓度变化的吸引子关联维

	O ₃	NO _x	CO
布里斯托尔	4.80	4.61	6.41
纽卡斯尔	5.70	6.19	7.55

3.6 Lyapunov 指数

用 Wolf 等^[23]的改进算法, 对去周期后的大气污染物日平均浓度资料的最大 Lyapunov 指数 λ_1 进行计算, 发现在不同的地点、对不同的污染物, 得到的 λ_1 都是大于零的, 这从另一个侧面说明了大气污染物浓度时间序列具有混沌特性^[5~7]。

由图 8 可见, 计算得到的浓度资料的 λ_1 收敛性是非常好的, 随着发展总步数 M 的增加, λ_1 逐渐趋于一个平台。表 3 中列出了计算的结果, 平均说来, 浓度吸引子的最大 Lyapunov 指数基本上处于 0.05~0.15 之间。如果由最大 Lyapunov 指数的倒数来推测最大可预报性的话^[6,7], 大气污染物浓度变化的最大可预报时间尺度约为 7~20 天。

表 3 大气污染物浓度变化的
吸引子最大 Lyapunov 指数

	O ₃	NO _x	CO
布里斯托尔	0.063	0.048	0.128
纽卡斯尔	0.105	0.075	0.126

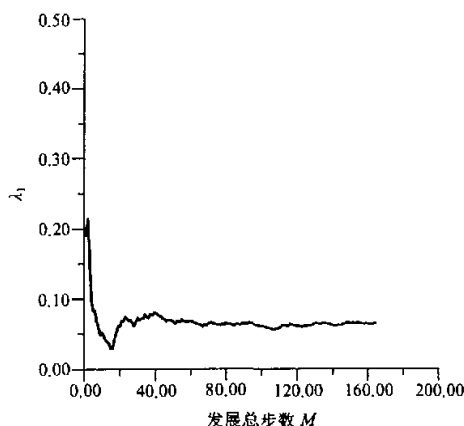


图 8 布里斯托尔 O₃ 浓度变化的吸引子最大 Lyapunov 指数

3.7 小波分析

图 9 给出了 1983 年布里斯托尔测站小时平均 O₃ 资料 (取起始观测值往后 1024 个点作为代表) 的小波变换图 (使用 Morlet 小波母函数)。由图 9 可见, 小波变换系数在不同尺度和不同时刻的分布没有一定的规律, 但也不像随机信号那样完全杂乱无章, 而是沿横坐标看过去有一定的重复出现的自相似性分布, 特别是其幅角分布 (图 9c) 呈现出明显的分叉和自相似性结构。图 10 给出同一测站的 NO_x 资料的小波分析结果, 得到与图 9 类似的结构。这些结构正是非线性混沌信号的普遍特征^[24]。因此, 小波变换也提供了大气污染物浓度变化具有混沌特性的证据。

4 结论

本文通过对实际观测得到的大气污染物浓度时间序列进行谱分布、结构函数、自相关函数分析、曲线分数维、相空间中吸引子的关联维、最大 Lyapunov 指数计算以及小波变换, 揭示出了大气污染物浓度时间变化的非线性动力学特征, 主要结论如下:

- (1) 污染物浓度的谱为连续的宽带谱, 在其高频部分叠加了代表周期特征的尖峰。去掉周期成分后, 在高频部分存在一个标度不变子区 (类似于湍流的 Kolmogorov 惯性副区), 该子区的谱指数为 1.8 或 1.9, 均小于 2;
- (2) 二阶结构函数呈非抛物线型;
- (3) 自相关函数迅速衰减, 只在零点附近振荡;
- (4) 曲线分数维大于 1 小于 2;
- (5) 吸引子的关联维处于 4.5 到 7.5 之间;
- (6) 最大 Lyapunov 指数大于零。

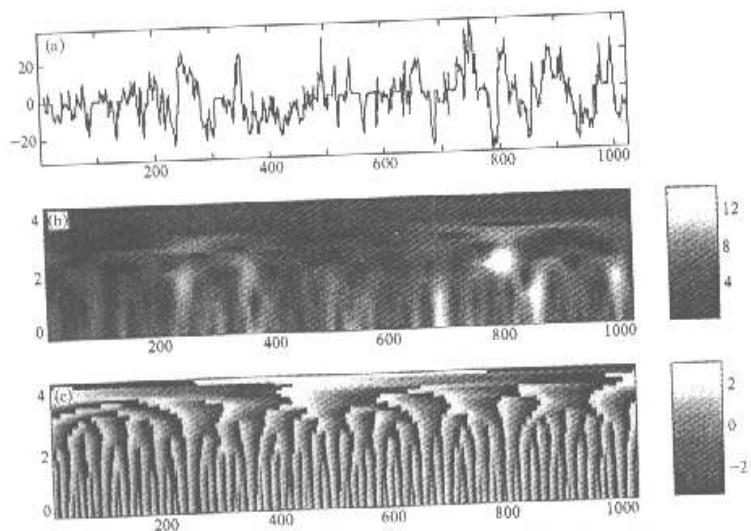


图9 布里斯托尔 O_3 浓度的小波变换 (用 Morlet 小波母函数)
(a) 原始信号; (b) 小波系数的模; (c) 小波系数的幅角

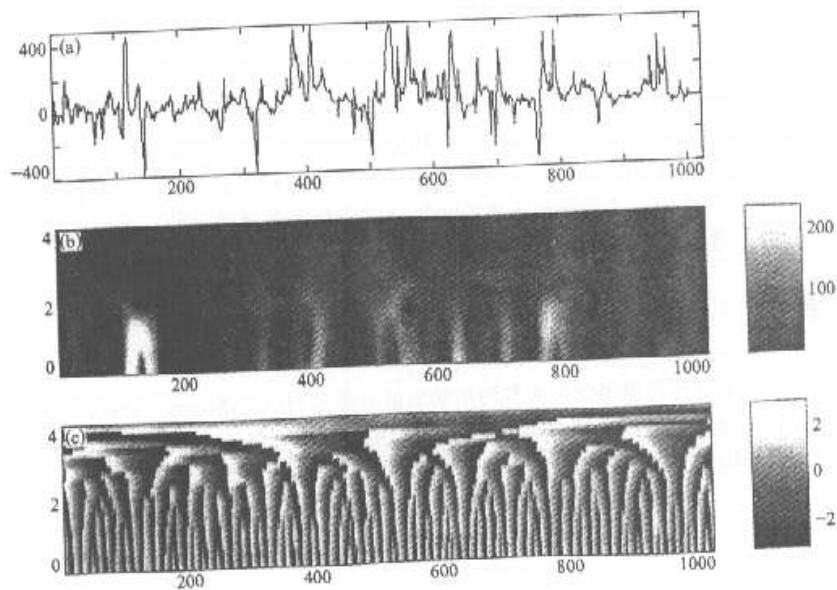


图10 布里斯托尔 NO_x 浓度的小波变换
其他同图9

按照非线性动力学与分形理论, 上述特性反映了污染物浓度的变化并不是毫无规律的, 而是存在内在的稳定的动力学机制, 即是由周期和非周期的影响因子共同造成的, 其总体变化是周期变化和非周期变化的叠加。在一天以上的时间尺度上主要受周期变化的影响, 而一天以下的时间尺度则主要受非周期变化的影响。周期性是由气象条件的变化(例如年、季和日周期性)和人类活动的影响(例如周周期性和日周期性等)共同造成的, 而非周期性则反映了污染物浓度的变化主要受某种非线性变化规律的支配, 这一规律的成因还有待于今后深入的研究和探讨。利用小波分析方法也很好地揭示出了污染物浓度变化的非线性结构特征。

上述的分析结果表明, 对污染物浓度的预报应由对其周期性变化的预报和非周期性变化的预报两部分组成, 而要对大气污染物浓度的非周期性变化作出较为准确的预测, 就必须采用考虑了污染物浓度变化的非线性特征并能够把握其内在的非线性变化规律的预报方法, 即非线性动力学预报方法。这方面的工作, 我们将另文发表。

参 考 文 献

- 1 洪钟祥, 胡非, 大气污染预测的理论和研究方法研究进展, 气候与环境研究, 1999, 4(3), 225~230.
- 2 别尔良德, 大气污染预报与控制(申亿铭译), 北京: 气象出版社, 1991.
- 3 Weigend, A. S. and N. A. Gershenfeld, *Time Series Prediction: Forecasting the Future and Understanding the Past*, Addison-Wesley Publishing Company, 1994.
- 4 McNider, R. T., D. E. England, M. J. Friedman, and X. Shi, Predictability of the stable atmospheric boundary layer, *J. Atmos. Sci.*, 1995, 52(10), 1602~1614.
- 5 胡非, 湍流、间歇性与大气边界层, 北京: 科学出版社, 1995.
- 6 Kantz, H. and T. Schreiber, *Nonlinear Time Series Analysis*, Cambridge University Press, 1997.
- 7 Williams, G. P., *Chaos Theory Tamed*, Taylor & Francis, Great Britain, 1997.
- 8 Morlet, J., *Sampling Theory and Wave Propagation*, NATO ASI Series, Vol. I, Chen CH ed., Springer-Verlag, Berlin, 1983.
- 9 Chui, C. K., *Wavelet: A Tutorial in Theory and Applications*, Academic Press, New York, 1992.
- 10 Meyer, Y., *Wavelet: Algorithms and Applications*, SIAM, Philadelphia, 1993.
- 11 赵松年, 熊小芸, 子波变换与子波分析, 北京: 电子工业出版社, 1997.
- 12 Lanfredi, M., M. Macchiato, M. Ragosta, and C. Serio, Time correlation structure in hourly concentration time series of CO, NO_x and O₃ in urban areas, *Fractals*, 1998, 6(2), 151~158.
- 13 Mandelbrot, B. B., *The Fractal Geometry of Nature*, Freeman, San Francisco, 1983.
- 14 刘罡, 大气污染物浓度的非线性预报与混沌控制研究, 中国科学院大气物理研究所博士学位论文, 1999.
- 15 Grassberger, P., An optimized box-assisted algorithm for fractal dimensions, *Phys. Lett.*, 1990, A148, 63~68.
- 16 Theiler, J., Estimating fractal dimension, *J. Opt. Soc. Am.*, 1990, A7, 1055~1073.
- 17 Dubuc et al., Evaluating the fractal dimension of profiles, *Phys. Rev.*, 1989, A39, 1500~1512.
- 18 高安秀树, 分数维(沈步明、常子文译), 北京: 地震出版社, 1981.
- 19 李昕, 大气湍流混沌特征的研究, 中国科学院大气物理研究所博士学位论文, 1998.
- 20 刘罡, 李昕, 胡非, 大气边界层风速脉动的分形模拟, 气候与环境研究, 1998, 3(3), 260~265.
- 21 Theiler, J., Efficient algorithm for estimating the correlation dimension from a set of discrete points, *Phys. Rev.*, 1987, A36, 4456~4462.
- 22 Grassberger, P. and I. Procaccia, Characterization of strange attractors, *Phys. Rev. Lett.*, 1983, 50, 346~349.
- 23 Wolf et al., Determining Lyapunov exponents from a time series, *Physica*, 1985, 16D, 285~317.
- 24 胡非, 大气边界层湍流涡旋结构的小波分解, 气候与环境研究, 1998, 3(2), 97~105.

Analysis of Nonlinear Characteristics of Air Pollutant Concentration Changes

Liu Gang, Li Xin and Hu Fei

*(State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry,
Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029)*

Hao Wenqiang

(Bureau of Environmental Protection of Dingzhou, Hebei Province, Dingzhou 0730000)

Cui Kejian

(Bureau of Technical Supervision of Dingzhou, Hebei Province, Dingzhou 0730000)

Abstract Nonlinear dynamical characteristics of air pollutant concentration changes are studied. The spectrum distribution, structure function, autocorrelation function, fractal dimension of curve, correlation dimension and largest Lyapunov exponent of attractor in phase space of air pollutant concentration time series have first been investigated. The wavelet transform, which is applied extensively at present, can also help to reveal nonlinear characteristics of air pollutant concentration changes well.

Key words: air pollution; time series; nonlinear characteristics.