

OPTIMALISATIE EN VALIDATIE VAN BIOGEOCHEMISCHE MODELLEN

de Brauwere Anouk

Departement Scheikunde, Analytische en Milieuchemie (ANCH), Vrije Universiteit Brussel
Pleinlaan 2, B-1050 Brussel
E-mail: adebrauw@vub.ac.be

Algemeen kader en doelstelling

Deze studie kadert in het onderzoek naar het belang van de biologische pomp als mechanisme voor de opname van CO_2 door de oceanen.

Het doel van het onderzoek is het schatten van de uitwisselingssnelheden tussen nutriëntreservoirs in mariene systemen, en terzelfdertijd uitspraken kunnen doen over de onzekerheid op die schatting, voor zowel random als systematische variaties: hoe betrouwbaar zijn de geschatte snelheden en hoe waarschijnlijk is het vooropgestelde model?

Voor het bepalen van deze snelheden, moeten in het algemeen de volgende stappen doorlopen worden:

- (1) hypothesen betreffende de beschouwde processen en opstellen van bijbehorende modelvergelijkingen,
- (2) geschikte metingen uitvoeren (in deze studie de aanrijkingsexperimenten met stabiele isotopen van Si en N),
- (3) keuze van een kostfunctie, en
- (4) keuze en uitvoering van een optimalisatietechniek.

Om betrouwbare resultaten voor de gezochte uitwisselingssnelheden te bekomen, moet elk van deze stappen zo nauwkeurig mogelijk gebeuren. Dit onderzoek concentreert zich vooral op de laatste twee stappen. Hierbij wordt ook aandacht besteed aan een accurate schatting van de onzekerheid op de berekende snelheden en aan een validatie van de gebruikte metingen en het veronderstelde model.

Deel A: Silicium cyclus

In het eerste deel werden de consumptie- en regeneratiesnelheid van silicium in mariene systemen bepaald. De beschouwde processen werden voorgesteld door een compartimenteel model (zie Fig. 1). Gezien de uitwisselingssnelheden (hier U en R) niet rechtstreeks kunnen gemeten worden, kwantificeert men de nutriëntreservoirs op verschillende tijdstippen gedurende een aanrijkingsexperiment. Het verband tussen de gezochte snelheden U , R en de gemeten concentraties en abundanties liggen vast in de gemaakte hypothesen en komen tot uiting in de modelvergelijkingen. Om de processen zo realistisch mogelijk te modelleren, werden niet-lineaire modelvergelijkingen gebruikt. Deze hebben echter het nadeel dat de gezochte uitwisselingssnelheden niet expliciet als functie van de metingen kunnen geschreven worden.

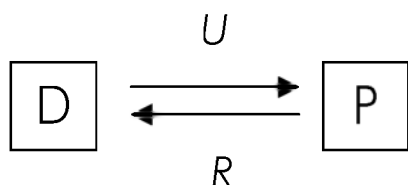


Fig. 1. Schematische voorstelling van het model gebruikt om de uitwisseling van silicium tussen de opgeloste (D) en particulaire fase (P) voor te stellen. U en R zijn resp. de opname- en regeneratiesnelheid van Si.

Om U en R te berekenen werd daarom een *kostfunctie* ingevoerd. Een kostfunctie drukt uit hoe goed de metingen beschreven worden door het model, m.a.w. het is een soort 'afstand' tussen meting en voorspelde modelwaarde. De beste waarden voor U en R komen dan overeen met een minimale kostfunctiewaarde. Deze minimale kostfunctiewaarde is in het algemene geval niet gelijk aan nul. Die residuele waarde kan vergeleken worden met een theoretisch verwachte waarde en levert zo informatie over (i) de geschatte meetonzekerheden en (ii) de accuraatheid waarmee

het gekozen model de metingen beschrijft. Deze extra informatie over de accuratesse is bijzonder interessant omdat in dit type van biochemische experimenten het zo goed als onmogelijk is om via bijvoorbeeld standaarden of referentiematerialen de juistheid te bepalen.

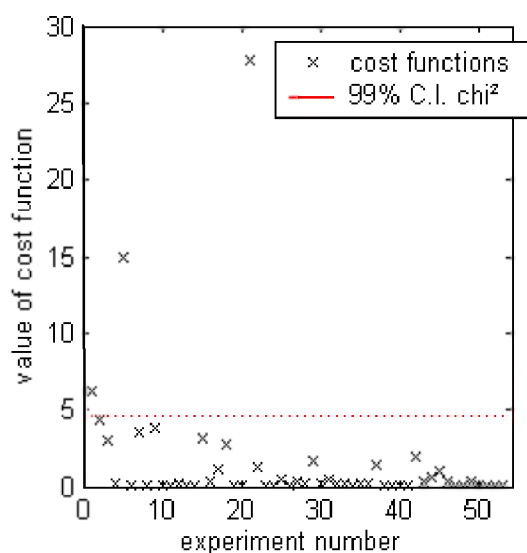


Fig. 2. Overzicht van de 53 minimale kostfuncties, vergeleken met het theoretische 99% betrouwbaarheidsinterval.

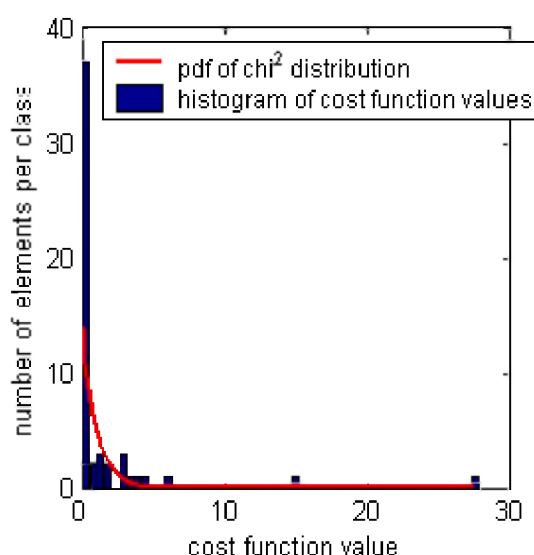


Fig. 3. Dezelfde kostfunctiewaarden als in Fig. 2, deze keer uitgezet in een histogram en vergeleken met de theoretisch verwachte curve.

Deze aanpak maakt het ten eerste mogelijk om voor één individueel experiment na te gaan of het een 'outlier' betreft of niet, zonder het te vergelijken met andere experimenten.

In een tweede stap werd de methode toegepast op een reeks van 53 experimenten. In Fig. 2 en 3 worden de resultaten gevisualiseerd en vergeleken met de theoretische verwachtingen. De volgende conclusies konden hieruit getrokken worden:

- (1) Het gekozen model mag aanvaard worden, gezien de grote meerderheid van de resultaten binnen het theoretisch verwachte 99% betrouwbaarheidsinterval ligt (zie Fig. 2).
- (2) De drie 'outliers' die toch aanwezig zijn, kunnen verklaard worden door een fout tijdens het meetproces (gezien het model aanvaardbaar is).
- (3) Het overschot aan lage kostfunctiewaarden (zie Fig. 3) kan enkel verklaard worden door een overschatting van de experimentele onzekerheden, opgegeven door de experimentator.

Deze conclusies zijn een belangrijke feedback naar de experimentator toe betreffende de kwaliteit van de metingen en het model.

Deel B: onzekerheden op de geschatte snelheden

In het vorige deel werd vooral aandacht besteed aan de schatting van de gezochte snelheden en de statistische interpretatie van de minimale kostfunctie, die unieke informatie kan leveren over de kwaliteit van zowel het gekozen model als de gebruikte metingen. In dit tweede deel werd gefocust op een accurate bepaling van de onzekerheid op de bekomen snelheden (bijvoorbeeld U en R). Die onzekerheden worden beïnvloed door elke stap van de procedure: (1) het ontwerpen en uitvoeren van het experiment, (2) het postuleren van het onderliggende model, (3) de keuze van de kostfunctie en (4) de eigenlijke optimalisatie, of het zoeken naar het kostfunctieminimum. In ons werk werd hoofdzakelijk de invloed van de laatste twee stappen onderzocht.

Een eerste methode voor het benaderd kwantificeren van de onzekerheden is gebaseerd op de – algemeen gemaakte, maar duidelijk ongeldige – hypothese dat de input-metingen gekend zijn met verwaarloosbare onzekerheid. Een evaluatie van de accuraatheid van deze onzekerheidsschatting werd doorgevoerd gebruikmakend van simulaties, en openbaarde dat de zo bekomen onzekerheden significante onderschattingen zijn van de werkelijke variaties. Onze bijdrage bestond in het voorstellen van een verbeterde onzekerheidsschatting, gebaseerd op een meer realistische visie van het experiment: zowel input- als output-metingen bezitten significante random variaties en moeten dus in rekening worden gebracht. De onzekerheden geschat met deze verbeterde methode bleken accurater te zijn. Bovendien biedt de methode het voordeel van veel sneller te zijn dan andere huidige gebruikte onzekerheidsberekeningen, zoals bijvoorbeeld Monte-Carlo simulaties.

Deel C: globale optimalisatie getest op enkele stikstofcyclusmodellen

In dit laatste deel werd de optimalisatiestap op zich meer in detail bekeken. Een nieuwe optimalisatieprocedure werd toegepast op een reeks stikstofmodellen van toenemende complexiteit. Deze methode, die gebaseerd is op intervalrekenkunde, is compleet verschillend t.o.v. klassiek gebruikte optimalisatie-algoritmen (bijvoorbeeld Newton-Gauss). Het unieke voordeel tegenover die klassieke methoden is dat het *garandeert* alle globale optimizers te vinden in een gegeven parameter ruimte. Klassieke technieken kunnen inderdaad niet bewijzen dat hun finale resultaat werkelijk overeenkomt met het globale en enige minimum van de kostfunctie. Deze 'onzekerheid' wordt meestal over

het hoofd gezien, maar kan grote gevolgen hebben voor de interpretatie van de gevonden 'optimale' parameters. Zo kan een klassieke methode niet garanderen dat deze echt optimaal zijn, of, in geval van multimodale situaties, dat ze de enige optimale parameters zijn. De globale optimalisatiemethode sluit deze onzekerheden uit. Een tweede, technisch voordeel van de methode is dat de moeilijke, soms zelfs onmogelijke zoektocht naar startwaarden (nodig voor de klassieke algoritmen) overbodig wordt.

Een eerste doelstelling was het testen van de globale optimalisatiemethode wat betreft zijn toepasbaarheid. Is het gebruiksvriendelijk en levert het bevredigende resultaten? Het antwoord is tweeledig. Enerzijds zijn de optimalisatieresultaten adequaat en bijzondere gevallen met meerdere globale minima worden zonder probleem opgelost. Anderzijds lijken de rekentijd en het nodige computergeheugen snel toe te nemen met modelcomplexiteit en aantal te schatten parameters. De limitaties van de methode zijn echter zuiver van technische aard en kunnen tot op zekere hoogte opgelost worden door de vergelijkingen te herparametriseren, het programmeren van contractoren (een bijkomend stukje programma) en een beter management van het computergeheugen.

We zijn in staat geweest de techniek te implementeren in de studie van biogeochemische modellen. Daaruit vloeide een tweede doelstelling, namelijk het toepassen van de globale optimalisatie op modellen voor stikstofcycli van toenemende complexiteit. Uitgaande van de unieke karakteristieken van de techniek, hebben we voorgesteld om de globale optimalisatie te bekijken als een *screening* methode. Dit betekent dat elke data set eerst de globale optimalisatie moet doorlopen, met het doel een globaal overzicht te hebben van de oplossingen. Afhankelijk van de uitkomst, moeten mogelijk bijkomende beslissingen genomen worden om uiteindelijk één set optimale parameters te behouden.

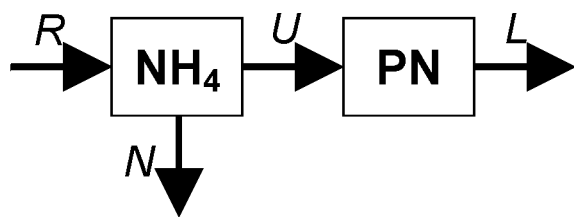


Fig. 4. Schematische voorstelling van eenvoudig stikstofmodel. De fluxen R (regeneratie), U (opname), N (nitrificatie) en L (verlies uit PN) worden gezocht en daartoe heeft men de reservoirs 'NH₄' (opgelost ammonium) en 'PN' (particulair stikstof) gekwantificeerd vóór en na incubatie met ¹⁵N.

Bijkomend hebben we de relatie tussen modelstructuur en het aantal (globaal) optimale parameters bestudeerd, gebruikmakend van globale optimalisatie. Het verband werd onderzocht met simulaties, zonder effecten zoals random variaties en modelfouten te beschouwen. Een van de belangwekkende resultaten van de analyse is dat het model voorgesteld in Fig. 4 geen eenduidige oplossingen voor de gezochte fluxen *kan* leveren: de twee situaties voorgesteld in Fig. 5 kunnen niet onderscheiden worden op basis van de gemaakte metingen. Om de fluxen toch eenduidig te kunnen bepalen moet bijvoorbeeld een compartiment aan het model toegevoegd worden, hetgeen neerkomt op het toevoegen van metingen. Dit is belangrijke informatie naar mogelijke gebruikers toe, gezien een klassieke optimalisatie geen enkel probleem zou laten vermoeden.

Deze werkwijze levert dus feitelijk een *wiskundige* validatie van een model: veronderstellend dat het *biologisch* representatief is, wordt nagegaan of het op

wiskundig vlak betrouwbaar is. Zoals geïllustreerd in voorgaand voorbeeld, heeft dit belangrijke gevolgen voor de fysische interpretatie van de resultaten.

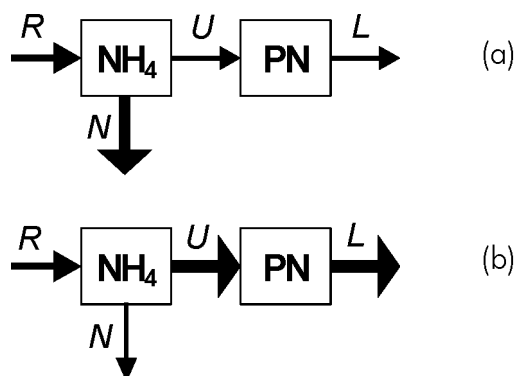


Fig. 5. Twee uiterst verschillende fysische situaties die niet kunnen onderscheiden worden uitgaande van een klassiek aanrijkingsexperiment waarbij de twee voorgestelde 'pools' worden gekwantificeerd aan het begin en het einde van de incubatie.

(a) U en L hebben kleine waarden, terwijl N groot is. (b) de tegengestelde situatie: U en L zijn groot, N is klein.

De R -flux is wel eenduidig te bepalen.

Conclusie

Is er nog leven na het experiment?

Ieder onderzoek vertrekt uiteraard van betrouwbare metingen en een doordacht model. In deze thesis ligt de nadruk echter op het zinvolle werk dat dáárna nog kan gedaan worden.

Om de gezochte snelheden te vinden, werd de kostfunctie-aanpak gebruikt. Deze leverde bovendien een feedback over de kwaliteit van de gebruikte metingen en model: het gepostuleerde model werd gevalideerd en de experimentator kreeg belangrijke informatie over zijn meetonzekerheden en het voorkomen van echte meetfouten.

Ook al zijn de snelheden accuraat berekend, zonder een onzekerheid weet men nog niets. Daarom werd de onzekerheidsschatting eveneens onder de loep genomen en vervolgens verbeterd om de accuraatheid ervan te verhogen.

Uiteindelijk werd een nieuwe optimalisatiemethode getest. Ondanks zekere beperkingen in toepasbaarheid (op dit moment), blijkt het toch een uiterst nuttige methode door de unieke garanties die hij biedt. Een van de toepassingen is de wiskundige validatie van modellen, hetgeen belangrijke gevolgen heeft voor de eenduidigheid van de fysische interpretatie. In dit kader werd een reeks stikstofmodellen geanalyseerd en dit heeft ons in staat gesteld een problematisch model te ontmaskeren. De toepasbaarheid is echter zeker niet beperkt tot deze modellen: andere types van biogeochemische modellen kunnen eveneens met deze methode gevalideerd worden.