[水環境学会誌 第19巻 第11号 897-903 1996]

〈論 文〉

化学物質の運命予測モデルにおけるパラメータの不確定性低減の評価

東 海 明 宏* 堀 博**
大 坪 和 裕*** 湯 浅 晶****

Application of Bayesian Monte Carlo Techniques for Agricultural Runoff Model Uncertainty

Akihiro TOKAI*, Hiroshi HORI**,
Kazuhiro OTSUBO*** and Akira YUASA****

* Institute of Environmental Science and Technology, Yokohama National University, Tokiwadai 156, Hodogaya-ku, Yokohama 240 Japan

** Dept. of Civil Engineering, Faculty of Engineering, Gifu University, 1-1, Yanagido, Gifu 501-11 Japan

*** Gifu Prefectural office, 1727-2, Hatsune, Gujohachimancho, Gujogun, Gifu 501-42 Japan

**** Center for River Basin Environmental Research, Gifu University, 1-1, Yanagido, Gifu 501-11 Japan

Abstract

The value of the parameters in environmental fate model of chemicals has not been well examined. This paper discusses about that. The purpose of this paper is to evaluate the parameter uncertainty using Bayes theorem with the example of agricultural chemicals runoff in the test watershed. Bayesian Monte Carlo technique is used to quantify errors in chemical fate model caused by uncertain parameters. Often there are a few site-specific data that describes the model parameters. The only information typically available for many parameters is a range of values obtained from related published studies. This technique combines Monte Carlo analysis with Bayesian inference specifying model input parameter distributions. The statistical likelihood function is employed to evaluate the ability of any given set of model parameters to describe the observed data on model state variables. Preliminary information on parameter distribution is combined with measurement of state variables to provide improved estimates of parameter distribution. This method was applied to a model developed to evaluate the pesticide runoff process on the Shibuta river, Kanagawa prefecture. The model used is one dimensional and purely advective and one state variable. Six parameters (partition coefficient, degradation rate constant in water, degradation rate constant in soil, soil density) were evaluated.

Key words: Bayes theorem, uncertainty, chemicals, fate, parameter

1. 序 論

本研究は、化学物質の環境運命予測モデルにおいて

用いられているパラメータ値の不確定性を確率分布で表現し、その分布形の特定化について検討したものである。手法としてはベイズ確率の定理を用いて、化学

* 横浜国立大学環境科学研究センター 〒240 横浜市保土ヶ谷区常盤台156 (前 岐阜大学工学部)

** 岐阜大学大学院工学研究科 〒501-11 岐阜市柳戸 1-1

*** 岐阜県庁八幡土木事務所 〒501-42 岐阜県郡上郡八幡町初音1727-2

**** 岐阜大学流域環境研究センター 〒501-11 岐阜市柳戸 1-1

物質の環境観測値と文献値に基づいて決められたパラメータ値を結合させパラメータ値を更新することを実例をもとに検討した。運命予測モデルのシミュレーションにおいて用いられるパラメータ値は現場の条件を反映した室内実験で求められるが、シミュレーションで対象としている現場条件や期間による変化などを含んだ値として決めることは必ずしも容易ではない。現場環境条件を反映した実験で求められたパラメータは環境の1条件下での値にしか過ぎないため長期間のシミュレーションを行う場合は、不都合が生じ易いといえる。そこで本研究では、実験室で測定されたパラメータ値は現場におけるパラメータ値の1部に対応するに過ぎないとの考えに立ち、それを補うために実環境下で測定された化学物質の濃度を活用し、パラメータ値の不確定性の低減効果を検討した。

環境運命予測に用いられるパラメータ値は環境条件によって変化するため長期間のシミュレーションにはパラメータの設定が重要となる。その際の対処法としては対象とする地域の環境変数(水温、風速、風向などの気象データ等)の関数でパラメータをきめることが考えられるがそういったデータを面的、時間的に詳細にえるための期間、費用等を考えた場合、予備段階として実施可能なものは室内実験で測定された(必ずしも解析対象の環境条件を反映しているわけではない)文献値と当該地域における化学物質の環境濃度の観測値とを活用することである。本研究は、そういったモデルシミュレーションにおける予備的な段階におけるパラメータの評価方法を検討したものである。本研究の先行研究としては、BOD等の有機物の水質汚濁モデルへの適用の研究がある^{1),2)}。それらの論文の中では、モデル化に際して含まれる不確定要因の分類を行い、BODを用いた場合の検討を行っている。しかしながら化学物質の物性が環境運命に関与する場合の検討は必ずしも十分ではない。そこで本研究では、分解、揮発、分配等の環境運命に関するモデルパラメータ値の不確実性の評価を行った。

2. ベイズ確率の適用方法

本研究では、物理化学性値に影響されるパラメータの効果を知ること主眼をおいたのでそれ以外の効果すなわち、輸送、系への化学物質の負荷はシナリオとして与えた。実際にはこのシナリオ自体にも不確実性は含まれるが、ここではそれらをいれて解析できるほどのデータ等の整備がなされていなかったために考慮の外においた。したがって次の2.1の前提条件をおいた。

2.1 前提条件

本研究の前提条件は次の通りである。

(1) 後述するようにここでは、モデルフレームワークとして水田水、水田土壌からなるコンパートメントモデルを取り上げ、そこで必要となるパラメータの値に誤差の生じる原因があると考ええる。

(2) 化学物質の系内外への輸送を支配する水分流量はタンクモデルにより計算し、コンパートメントモデルに入力する。この流量は誤差発生の要因とはみなさない。

(3) 農薬の散布方法は面的に一定とし、誤差発生 of 要因とはみなさない。

2.2 パラメータ値の更新方法

ここでは Dilks らの方法に従い、次のようにパラメータ値を2つの情報源を用いて更新する方法を用いた²⁾。今、2つの情報源として実環境下での化学物質濃度の観測値と別途、室内実験で測定されたパラメータ値をとりあげる。先の前提条件において、環境運命予測モデルへの入力データが適切に設定されていれば、モデル計算値と観測値との差はモデルに含まれるパラメータ値に起因するとみなすことができる。以上の2つの情報源は、ベイズの定理によって、(2.1)式で結合することができる。

$$P(\theta|X) = \frac{P(X|\theta) \cdot P(\theta)}{P(X)} \quad (2.1)$$

θ : モデルのパラメータ

X : 化学物質の環境観測値

$P(\theta|X)$: 観測値 X が与えられたときの θ の事後確率

$P(X)$: 観測値 X の生じる確率

$P(X|\theta)$: パラメータを θ としたときの特定の X が得られる条件付き確率

$P(\theta)$: θ の事前確率

左辺の $P(\theta|X)$ は X という観測結果が得られたとき、その原因がパラメータ θ の特定の値であることの確率を示している(事後確率)。すなわち、事前情報として与えられる θ と X という異なる性質の情報がこの式で結合され θ の事後確率を得る。右辺の分子のパラメータの事前情報 $P(\theta)$ は文献値から与えられるので $P(X|\theta)$ が決まれば、 $P(\theta|X)$ は計算可能となる。右辺の分母 $P(X)$ は観測値 X とパラメータ値 θ との結合尤度を表しており、この値は、正規化係数と呼ばれ、一定値となる¹⁾。 $P(X|\theta)$ は、 θ が与えられたとき観測値が X となる確率を示したもので、言い換えると事前情報として与えられるパラメータ θ を用いて得られた化学物質環境濃度の計算値 X とそれに対応する観測値との一致の程度を示したもので標本尤度関数

$(L(\theta|x_1, x_2, \dots, x_n))$ とよばれ、次のようにかける³⁾。

$$L(\theta|x_1, x_2, \dots, x_n) = \prod_{i=1}^n f_x(x_i|\theta) \quad (2.2)$$

$f_x(x_i|\theta)$: θ が与えられたときの x の確率密度関数

したがって尤度はこの式(2.2)でしめされる確率密度関数が定義されれば直接計算可能となる。観測値とモデルの計算値の差(誤差)が正規分布すると仮定すると、標本尤度関数は(2.3)式でかける。したがって $P(\theta)$ と観測値を代入することで式(2.1), (2.3)からパラメータの事後分布 $P(\theta|X)$ を得る。

$$L(\theta|X) = \left(\frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \right)^n \exp \left\{ -\frac{1}{2} \sum_{k=1}^n \left(\frac{X_k - u_k}{\sigma} \right)^2 \right\} \quad (2.3)$$

X_k : k 番目の観測値

u_k : k 番目の観測値に対応する計算値

σ : 観測値と計算値の誤差の分散

n : 観測値の個数 ($n = 7$)

2.3 計算の流れ

Fig. 1 は本研究の計算の流れをフローチャートに示したものである。手順の概略は次の通りである。

(1) 既存の文献を参考に、各パラメータ値を整理し、最小値から最大値にかけての一樣な確率分布になると仮定する(事前分布)。すなわち、リストアップされた

値のうち、いずれの値も同様に確からしいと考えられたために一樣分布すると仮定した。

(2) この事前分布と化学物質の観測値から式(2.1), (2.3)からパラメータの事後分布を求める。

(3) ついでパラメータの事前分布、事後分布の形を比較してパラメータの不確定性低減の効果を考察する。さらに検算としておのおの場合のパラメータ値を用いて化学物質の環境濃度の推移を評価する。

3. 事例適用

3.1 モデルの概要^{4),5)}

農薬の流出過程は Fig. 2 に示すような水と土壤からなるコンパートメントモデルを用いた。このモデルにおいて用いた農薬の物質収支式を以下に示す。

(1) 水田水コンパートメント

$$Awhw \frac{dCw}{dt} = P(t)Aw - q(t)AwCw - KwAwhwCw - KwaAwhwCw + KswAwhsysCs - KwsAwhwCw \quad (2.4)$$

(2) 土壌コンパートメント

$$Awhsys \frac{dCs}{dt} = -KsAwhsCs - KswAw\gamma shsCs + KwsAwhwCw \quad (2.5)$$

Cw : 水コンパートメント中の農薬濃度 ($\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$)

Cs : 土壌コンパートメント中の農薬濃度 ($\text{mg} \cdot \text{t}^{-1}$)

Aw : 対象流域の水田面積 (m^2)

hw : 湛水深 (m)

hs : 水田土壌有効吸着厚さ (m)

t : 時間 (day)

$P(t)$: 水田面積当りの農薬散布速度 ($\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$)

$q(t)$: 単位面積当りの流出流量 ($\text{m} \cdot \text{day}^{-1}$)

Kw : 水中総括分解速度定数 (day^{-1})

Ks : 土壌中総括分解速度定数 (day^{-1})

Kwa : 水から大気への揮発速度定数 (day^{-1})

Kws : 水から土壌への吸着速度定数 (day^{-1})

Ksw : 土壌から水への吸着速度定数 (day^{-1})

γs : 土壌密度 ($\text{t} \cdot \text{m}^{-3}$)

また水田の水-土壌間での農薬の吸脱着作用が短時間で平衡状態に達すると仮定して式(2.6)を用いた。計算にあたっては式(2.4)と式(2.5)を加えかつ式(2.6)を用いて Cw だけの常微分方程式を Lunge-Kutta-Gill 法により解いた。

$$Cs = KocMsCw \quad (2.6)$$

Koc : 土壌有機性炭素への吸着平衡定数 ($\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$)

Ms : 土壌中有機性炭素含有率 (-)

Fig. 1 Analytical procedure of improvement of information on parameter distribution

Fig. 2 Compartmetilization of paddy field

Table 1 Parameters used for analysis

Parameters	Symbol	Values (Min.~Max.)	Distribution
Sorption coefficient	Koc(cm ³ ·g ⁻¹)	200~680	Uniform
Degradation rate constant in water	kw(d ⁻¹)	0.003~0.023	Uniform
Degradation rate constant in soil	ks(d ⁻¹)	0.06~0.32	Uniform
Soil density	γ s(g·cm ⁻³)	2.30~2.83	Uniform
Depth of soil	hs(m)	0.01~0.09	Uniform

Table 2 Parameters that has constant value

	Symbol	Values
Area of paddy field	Aw(m ²)	7.0×10 ⁶
Spray of chemicals	P(kgd ⁻¹)	200

3.2 入力データ

3.2.1 パラメータ値の事前分布

文献値⁶⁾を参考にして各パラメータの最小値と最大値を求めた。設定した値を Table 1 に示す。またその区間においてより確からしいと考えるにたるデータは入手できなかったのですべてのパラメータ値について一様分布を仮定し、これを事前分布とした。その他の計算に必要なパラメータを Table 2 に示す。

3.2.2 環境濃度の観測値⁷⁾

適用事例として、1979年の神奈川県渋田川流域で測定された農薬濃度の流出観測データを用いた。当時の流域面積は約27.6km²、水田面積は約7.0km²であった。測定された物質はCNP、シメトリン、ベンチオカーブの3種類であったが本研究ではそのうちベンチオカーブのみを取り上げ、パラメータの更新結果について検討した。現地観測は1979年6月8日から50日間にわたって約1週間に1度の頻度で行われた（観測値の数は7個）。

3.2.3 流量

渋田川河川流量は農薬観測時に同時に測定はされていなかったため、丹沢湖と平塚の2地点に設置された気象庁の観測点の日降水量データの平均値にタンクモ

Fig. 3 Structure of tank model

デルを適用して推定した流量を用いた。タンクモデルは直列2段とした。タンクモデルのパラメータの値をFig. 3に示す。タンクモデルのパラメータは試験流域において観測データが得られなかったため、渋田川と同程度の流域面積をもつ河川でのケーススタディ等を参考に決定した⁹⁾。式(2.4)の $q(t)$ はこのタンクモデルによる表面流出量が入力される。

3.2.4 農薬散布

農薬の散布は、1979年6月7日から開始されたとした。また、降雨日を除き延べ14日間にわたって面的に同量ずつ散布されたと仮定して計算を行った。農薬の散布量は現地の使用状況に即して推定された値を用いた⁷⁾。

4. 結果および考察

4.1 パラメータの不確定性の低減

本研究では、値が不確実なパラメータとして式(2.4)、(2.5)に用いられた水田土壌有効深さ(h_s)、水田土壌有機性炭素含有率(M_s)、水田土壌密度(γ_s)、水中分解速度(K_w)、水田土壌中分解速度(K_s)、化学物質の有機性炭素への吸着平衡定数(K_{oc})の6つのパラメータをとりあげた。これらについて最小値から最大値までの範囲を9分割し、分割した区間毎の代表値として中央値を用いて計算した時の事後分布を事前分布とともにFig. 4~Fig. 9に示す。これらの図は、いずれも横軸に各パラメータのとりうる範囲をしめし、図中においては事前分布(prior)と事後分布(posterior)をあわせて示した。事後分布を計算する際には、 $9^6 = 531,441$ 通りのパラメータの組み合わせごとに農薬の環境中濃度を計算し、式(2.1)と式(2.3)を用いて各パラメータの事後分布を求めた。

具体的には次の通りである。今、事後分布を求める

Fig. 4 Distributions for effective soil depth

Fig. 5 Distributions for rate constant in water

Fig. 6 Distributions for organic carbon content

パラメータを θ_1 、それ以外のパラメータを θ_2 とする。すると θ_1, θ_2 についての二次元確率分布ができる。 θ_1 の事前分布における各値に対し θ_2 は5つあるので 9^5 通りの計算結果が得られる。それらの個々の尤度の計算結果の総和をパラメータの組み合わせの全ケース(9^6 通り)の個々の計算値の尤度の総和で除したものが θ_1 の事後分布となる。

パラメータの更新結果を大別すると、検討した区間で極値をもつものと極値をもたないものに分類できた。

4.1.1 区間において極値をもつパラメータ

土壌有効深さ(h_s)は区間内で極値(最大値)をもつ分布を呈した(Fig. 4)。その分布は0.06(m)あたり

Fig. 7 Distributions for degradation rate constant in soil

Fig. 8 Distributions for soil density

Fig. 9 Distributions for adsorption coefficient

ると考えられる。

4.2 パラメータ値において事前分布および事後分布を用いた場合の計算結果の比較

以上のパラメータの値として事前分布、事後分布を用いた場合のベンチオカーブの水中濃度の推移を Fig. 10 に示す。前述したように、各パラメータのとりうる範囲を分割して得られた値の組み合わせ毎に計算値がえられており、計算値の各点は、分布を有しているが代表値として期待値を用いてプロットしている。

パラメータ値に事前分布（一様分布）を用いた場合、観測値に比して平滑された値をとることが示されている。全体として濃度の系時変動傾向に関しては比較的よく再現しているといえる。しかし観測値との誤差は大きい。

一方、パラメータ値に事後分布 (Fig. 4～Fig. 9) における“posterior”の場合)を用いた場合、特に観測値の最大値前後の適合が良好である。しかし、観測最大値濃度以降においては実測値の低減化傾向に比べて計算値の低減化傾向は緩慢であった。

4.3 考察

モデルシミュレーションの予備的な段階において既存の研究をなるべく生かす方法としてベイズの定理に基づくパラメータの推定方法を実観測値に適用した。パラメータの事前情報としていくつかの測定値があるということだけから出発してベイズの定理で事後分布を計算した。

パラメータ値に事前分布を用いた場合においては、農業濃度の系時変化の再現傾向はより緩慢であった。事後分布を用いた場合において計算値の観測値への適合度は上昇し、観測濃度の最大値との適合が良好であった。これらの2種類のパラメータ（事前分布、事後分布）を用いて得られた計算結果は、運命予測モデルが暴露評価に用いられる上で考慮される必要がある。すなわち、平均的な濃度で長期間暴露濃度を求め

に相対頻度（尤度）が最大となる分布であり、事前分布として与えた区間において最大値側へ分布の中心が移動していた。この分布を見る限りにおいては、水田に散布された農薬の水田土壌中への鉛直方向への移動は高々10 (cm) 程度であることがわかる。

4.1.2 区間において極値をもたないパラメータ

土壌有効深さ以外のパラメータはすべて区間内において極値を持たない分布となった。単調増加するものに水中分解速度定数があげられる (Fig. 5)。水中分解速度定数以外はすべて単調に減少する分布となった。すなわち当初設定した区間において、より小さい値の尤度が高いことが示されている。なかでも水田土壌中有機性炭素含有率が最も変化が小さく、しかも設定した区間で線形に変化していた (Fig. 6)。残りの土壌中分解速度定数 (Fig. 7)、土壌密度 (Fig. 8)、有機性炭素への吸着平衡定数 (Fig. 9) はいずれも類似の分布型を呈していた。このことより、ベンチオカーブは水田土壌への分配率が低く、なおかつ水田土壌中において分解は相対的に少ない場合が多いことが想定される。一方、Fig. 5 に示した水中分解速度はより大きな値のときに相対頻度が増加した。このように、相対的にはベンチオカーブは水相へより多く配分され、固体相への配分量はなるべく抑えられるようにバランスしてい

Fig. 10 Comparison of the calculated values when prior and posterior distribution of parameter are used

るか、短期間で最大の値に近い場合の濃度を求めるかという点である。すなわち対象とする化学物質の毒性の発現形態が急性であり、かつ化学物質の環境への使用形態、化学物質の物理化学特性、環境の水文特性できまる濃度発現形態が時間的に変動が激しいような場合、むしろパラメータは、個々の観測値を説明できるように推定される必要があり、そのためには、パラメータ値、観測値情報になるべく多く活用することが過誤の確率を低下させることになる。同時にモデルフレームワークもそのような解像能力のあるものが検討される必要がある。本研究で検討したパラメータの評価基準は、最大値など観測値個々の変動を追跡するという場合に相当する。

各パラメータの事後分布から次のような関連が想定できる。*Koc*の事後分布からベンチオカーブは水田土壌よりも水相へ分配される確率が高い。水相に分配されたベンチオカーブの濃度が観測値に近づくためには水中分解速度が高い方へ移らなければならなくなり、そのことが Fig. 5 にあらわれたと解釈することができる。このように水田土壌部分の厚さが決まり、土壌容積が決まり、分配される化学物質量が決まる。そこで水中濃度の適合度が評価関数であるために水中分解速度の値が大きき方へ確率分布がシフトし、その結果再び吸着係数が小さき方へ移動してゆくというパラメータ間の連関構造が想定できる。以上の説明は定性的でかつ類推の面もあり、また必ずしもパラメータの関連は原因と結果という関係でのみ説明することは十分ではないが、パラメータの調整をする上での一定の方向を与えるといえる。

今回の計算では、ベンチオカーブの水田への散布を6月1日から開始し、降雨時は散布せず、散布した日

においては面的に同量ずつ散布するという仮定をおいた。この仮定にも計算結果は支配される。すなわち入力データが真の値に比べ誤差を含んでいれば、観測値を用いて更新されたパラメータ値の不確実性は低減しても真の値に接近したかどうかの保証はない。しかし、入力データの不確実性を考慮してもここで取りあげた6つのパラメータのとりうる値の確率分布が明らかになることはモデルシミュレーションのパラメータ値の設定において指針をあたえるものと考えている。

5. 結 論

これまでの議論をまとめると次のようになる。

1) 実測された環境中化学物質濃度と運命予測モデルの計算結果の差をパラメータの不確定性によるものとし、ベイズ確率の方法によってその不確定性を低減する方法を実測値に対し適用した。各パラメータの事前分布は文献値を用いて設定し、それらはベイズ確率の方法によってえられた事後分布のおおのについて比較した。その結果、事前分布として一様分布を仮定したパラメータは、ある特定の値の出現頻度が高くなる分布に変化した。

2) パラメータの事前分布と事後分布を用いての計算値の比較から、総体的に誤差は低減したことを確認した。本研究で検討した方法は、変動のある実測値に対しその変動になるべく追従した形で計算値を再現した。

(原稿受付 1996年5月24日)

(原稿受理 1996年9月4日)

参 考 文 献

- 1) Dilks, D.W. (1987) Analysis of Water Quality Model Uncertainty using a Bayesian Monte Carlo Method, Ph.D. Dissertation, The University of Michigan, Ann Arbor, MI.
- 2) Dilks, D.W., Canale, R.P. and Meier, P.G. (1992) Development of Bayesian Monte Carlo techniques for water quality model uncertainty, *Ecological Modeling*, 62, 149-162.
- 3) 中川徹, 小柳義夫 (1982) 最小二乗法による実験データの解析, pp.18-20, 東京大学出版会.
- 4) 李適宇, 右田順一 (1990) 水田からの農薬流出による河川水質汚染のモデル解析, 環境システム研究, 18, 184-191.
- 5) 大坪和裕 (1994) 化学物質の環境運命モデルにおけるパラメータの不確実性分析—水田施用農薬を例にして—, 岐阜大学大学院修士論文.
- 6) 金澤純 (1992) 農薬の環境科学, pp.156-167, 合同出版.
- 7) 飯塚宏栄, 岩無才次郎 (1982) 水田除草剤の河川への流出, 用水と廃水, 24(6), 13-19.
- 8) 土木学会 (1985) 水理公式集, pp.161-163.