

## 青森県における酸性雨のpH経時変化解析：季節変動とトレンドの分離・抽出

花石竜治 菩提寺誉子 神 毅統

青森県青森市および鱒ヶ沢町で2007年度から2020年度までに観測された降水のpHから、降水量で加重平均された月ごとのpHを求め、この時系列データを季節変動とトレンドに分離する解析を行った。解析には、状態空間モデルに基づくベイズ統計手法において、マルコフ連鎖モンテカルロ法を用いた。pHのトレンドは、青森市と鱒ヶ沢町でほぼ同じ傾向を示した。一方、その季節変動については、振幅は青森市よりも鱒ヶ沢町で大きく、鱒ヶ沢町でこれが漸増する経年変化を示した。上記二地点でトレンドが同一であったことは、季節変動を除けばpHが概ね同様に変化していることを示すと考えられた。

Key words : Acid rain, pH, Seasonal variation, Trend, State-space model

### 1. はじめに

我が国における酸性雨は、大気汚染や水質汚濁が顕在化して以来歴史ある環境問題であり<sup>1)</sup>、国は、1998年に東アジア地域諸国が参画するEANET(東アジア酸性雨モニタリングネットワーク)に参加し、課題の解決に向け取り組んでいる<sup>2)</sup>。また、酸性雨の調査研究は、地方自治体によるものから始まり、その後、環境省(庁)が設営した国設観測所による調査を経て、現在では、地方自治体が測定したデータを全国環境研協議会が収集している。

青森県は、日本海側地域と太平洋側地域の両方を有する地理的条件にあり、降水は、県内の地域ごとに特色ある化学的特性を持つ<sup>3)-5)</sup>。近年の調査地点は青森市および鱒ヶ沢町であり、花石らは昨年度、これらの地点における降水のイオン組成に着目し、人為的起源由来と考えられる非海塩性成分としての濃度をトリリニアダイアグラムによるプロットおよび多変量解析などで考察した<sup>6)</sup>。

一般にpH(水素イオン指数)以外のイオン組成は、年度内で桁が変わる程度の季節変動を示す。一方、pHは、イオン組成ほどの大きな季節変動はしないが、降水の酸性度の直接的な指標となっており、これまでの酸性雨研究において主に移動平均を取ることによって議論されてきた<sup>7)</sup>。

本研究で著者らは、降水量で加重平均された各月のpHの時系列データから季節変動を抽出する解析を検討した。

時系列データから季節変動を抽出する方法は、経済学の分野ですでに確立されたものとなっており<sup>8),9)</sup>、著者らの着眼は決して新規なものではない。科学技術計算に用いられるプログラミング言語Rには、時系列データから季節変動を抽出するstlという関数がある。しかし、この関数は定常的な季節変動を与えるもので、季節変動そのものが経時的に変化する場合には適用できない。

本研究では、時系列データ解析法としてより進化した状態空間モデル<sup>10)-12)</sup>を酸性雨のpHデータ解析に応用した。そして、モデルパラメータを確率変数と考えるベイズ統計手法に基づき、それらを推定した。この方法により、経時変化する季節変動の寄与を抽出でき、季節変動以外の変化をトレンドとして取得できたので報告する。

### 2. 解析理論

#### 2.1 季節変動を伴う時系列データのモデル化<sup>10)</sup>

状態空間モデルによるモデル化について記述する。

季節変動が確率的に変化することを予想してモデルを考える。季節変動 $\gamma_i$ の合計値が正規白色雑音 $s_t$ にしたがうとすれば、

$$\sum_{i=1}^k \gamma_i = s_t \quad (1)$$

$$s_t \sim \text{Normal}(0, \sigma_s^2)$$

ここで、 $\text{Normal}(\mu, \sigma^2)$  は、期待値  $\mu$ 、標準偏差  $\sigma$  の正規分布を表す。 $k$  は季節変動の周期である。

時系列データで、時点  $t$  における季節変動成分を次式で表す。

$$\gamma_t = - \sum_{i=t-(k-1)}^{t-1} \gamma_i + s_t \quad (2)$$

$$s_t \sim \text{Normal}(0, \sigma_s^2)$$

すなわち、時点  $t$  における季節変動成分は、その時点から、 $k-1$  個の時点まで遡った季節変動の影響を受けるものとして、それに正規白色雑音を加わったものである。

次に、本研究で採用した二次のトレンドモデル（平滑化トレンドモデル）に、周期  $k$  の季節変動が加わったモデル式（状態方程式）を(3)式に、モデル式による観測値  $y_t$  の表現（観測方程式）を(4)式に示す。

$$\mu_t \sim \text{Normal}(2\mu_{t-1} - \mu_{t-2}, \sigma_\xi^2)$$

$$\gamma_t \sim \text{Normal}\left(- \sum_{i=t-(k-1)}^{t-1} \gamma_i, \sigma_s^2\right) \quad (3)$$

$$\alpha_t = \mu_t + \gamma_t$$

$$y_t \sim \text{Normal}(\alpha_t, \sigma_v^2) \quad (4)$$

(4)式で明らかのように、本研究で採用した解析法において、解析する pH がモデル式による再現値（期待値）として正規分布することを仮定している。pH は水素イオン濃度の指数であり、正規分布するものが濃度でなく pH であることが解析上必要である。このことを pH の頻度分布により確認し、また、解析結果の残差の頻度分布から判断して、解析の妥当性を検証する。

## 2.2 バイズ法とマルコフ連鎖モンテカルロ (MCMC) 法の概要<sup>13)</sup>

バイズ法は、バイズの定理に基づき事前確率と尤度(ゆうど)から事後確率を算出する(バイズ更新)方法である。

その計算の実際においては、例えばギブズサンプリングの方法では、確率変数として扱うパラメータの乱数初期値から、設定したモデルが与える遷移核(マルコフ連鎖を与える完全条件付き確率分布)により、次々に乱数のパラメータに変換し、その統計分布を求める。この分布からモンテカルロ積分により、パラメータの期待値の近似値を求める。マルコフ連鎖の初期は、乱数初期値の影響が大きく、burn-in という期間として、モンテカルロ積分には用いない。また、マルコフ連鎖は、直前の値の影響を受けるため、その中で間隔を置いて値を抽出し、モンテカルロ積分に供する。

## 2.3 MCMC 法による状態空間モデルのモデルパラメータの推定<sup>11)</sup>

状態空間モデルとは、観測される物理量の背後に、状態があることを仮定するモデルで、状態間の遷移を状態方程式で記述し、状態の観測を観測方程式で記述する。

時系列の場合、1 ステップごとの状態の時間発展を状態方程式で表し、各ステップにおける観測量を、状態から観測量を取得する観測方程式で表す。

今回取り上げる数理モデルは、ベイズ統計手法に基づき MCMC 法で解くが、状態方程式や観測方程式で表される状態空間モデルは、この解法の適用を直截的に行えるモデルである。

まず、状態および観測量の同時分布を考える。いま、時刻  $t = 1, \dots, n$  の状態がそれぞれ  $m$  個の要素からなると仮定し、これを  $m$  次元のベクトルと考えて、その次元数の記述を省略し、 $\mathbf{x}_{1:n}$  と表す。同じように、時刻  $t = 1, \dots, n$  で観測量が与えられ、これがスカラーであるとして、 $y_{1:n}$  と表す。また、この数理モデルを表す要素  $m'$  個のパラメータセットがあるとして、この次元数の記述を省略し、ベクトル量の  $\theta$  とする。

時系列データが時間発展をするとし、時刻  $t = 1, \dots, n$  の状態および観測量の同時分布を  $p(\mathbf{x}_{1:n}, y_{1:n}, \theta)$  の形で記述する。ここで、パラメータセット  $\theta$  もあわせて記述する。

このとき、確率の乗法定理から、パラメータが  $\mathbf{x}_{1:n}, \theta$  のセットである場合に観測値が  $y_{1:n}$  である確率  $p(\mathbf{x}_{1:n}, \theta | y_{1:n})$  は、観測値が  $y_{1:n}$  である確率  $p(y_{1:n})$  と、同時分布  $p(\mathbf{x}_{1:n}, y_{1:n}, \theta)$  から、

$$p(\mathbf{x}_{1:n}, \theta | y_{1:n}) = \frac{p(\mathbf{x}_{1:n}, y_{1:n}, \theta)}{p(y_{1:n})} \propto p(\mathbf{x}_{1:n}, y_{1:n}, \theta) \quad (5)$$

が成り立つ。よって、同時分布を議論すれば、求める確率分布  $p(\mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta} | y_{1:n})$  を考えることができる。同時分布について、次式により記述を変える。

$$p(y_{1:n}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) = p(\mathbf{x}_{1:n}, y_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) \quad (6)$$

これは、時刻  $t = 1, \dots, n-1$  の時間発展とその後  $t = n$  の値の同時分布であるから、次式で表記される。

$$p(y_{1:n}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) = p(y_n, y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) \quad (7)$$

この同時分布は乗法定理で分解され、次式を得る。

$$\begin{aligned} p(y_n, y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) \\ = p(y_n | y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) p(y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) \end{aligned} \quad (8)$$

さらにこの積の第 2 項目は乗法定理で次式のとおり分解される。

$$\begin{aligned} p(y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) \\ = p(\mathbf{x}_n | y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n-1}, \boldsymbol{\theta}) p(y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n-1}, \boldsymbol{\theta}) \end{aligned} \quad (9)$$

以上から、

$$\begin{aligned} p(y_{1:n}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) \\ = p(y_n | y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) p(\mathbf{x}_n | y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n-1}, \boldsymbol{\theta}) \\ \times p(y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n-1}, \boldsymbol{\theta}) \end{aligned} \quad (10)$$

が成り立つ。これを繰り返すと、状態とパラメータセットの間の独立性も考慮して、

$$\begin{aligned} p(y_{1:n}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) \\ = \prod_{t=2}^n (p(y_n | y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) p(\mathbf{x}_n | y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n-1}, \boldsymbol{\theta})) \\ \times p(y_1 | \mathbf{x}_{0:1}, \boldsymbol{\theta}) p(\mathbf{x}_1 | \mathbf{x}_0, \boldsymbol{\theta}) p(\mathbf{x}_0, \boldsymbol{\theta}) \\ = p(\mathbf{x}_0 | \boldsymbol{\theta}) p(\boldsymbol{\theta}) \\ \times \prod_{t=2}^n (p(y_n | y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) p(\mathbf{x}_n | y_{1:n-1}, \mathbf{x}_{1:n-1}, \boldsymbol{\theta})) \\ \times p(y_1 | \mathbf{x}_{0:1}, \boldsymbol{\theta}) p(\mathbf{x}_1 | \mathbf{x}_0, \boldsymbol{\theta}) \end{aligned} \quad (11)$$

となる。

次に、状態空間モデルで仮定する観測の独立性から、

$$p(y_t | y_{1:t-1}, \mathbf{x}_{1:t}, \boldsymbol{\theta}) = p(y_t | \mathbf{x}_t, \boldsymbol{\theta}) \quad (12)$$

また、時系列がマルコフ的（直前の状態にのみ依存し、それより前の過去の記憶がないとする）に時間発展すると仮定するから、

$$p(\mathbf{x}_t | y_{1:t-1}, \mathbf{x}_{1:t-1}, \boldsymbol{\theta}) = p(\mathbf{x}_t | \mathbf{x}_{t-1}, \boldsymbol{\theta}) \quad (13)$$

以上から、

$$\begin{aligned} p(\mathbf{x}_{1:n}, y_{1:n}, \boldsymbol{\theta}) \\ = p(\mathbf{x}_0 | \boldsymbol{\theta}) p(\boldsymbol{\theta}) \prod_{t=2}^n (p(y_t | \mathbf{x}_t, \boldsymbol{\theta}) p(\mathbf{x}_t | \mathbf{x}_{t-1}, \boldsymbol{\theta})) \\ \times p(y_1 | \mathbf{x}_{0:1}, \boldsymbol{\theta}) p(\mathbf{x}_1 | \mathbf{x}_0, \boldsymbol{\theta}) \\ = p(\mathbf{x}_0 | \boldsymbol{\theta}) p(\boldsymbol{\theta}) \prod_{t=1}^n (p(y_t | \mathbf{x}_t, \boldsymbol{\theta}) p(\mathbf{x}_t | \mathbf{x}_{t-1}, \boldsymbol{\theta})) \end{aligned} \quad (14)$$

すなわち、初期条件と時間発展のマルコフ性、および観測の独立性から、すべての確率変数の同時分布が記述される。

MCMC 法を適用する場合、例えばギブズサンプリングを用いる場合を議論する。考える時刻  $t$  を除いたすべての状態を表すために  $\mathbf{x}_{-t} = (\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_{t-1}, \mathbf{x}_{t+1}, \dots, \mathbf{x}_n)$  とする。時刻についての更新は、 $\mathbf{x}_{-t}$  と  $\boldsymbol{\theta}$  を固定して、 $\mathbf{x}_t$  を更新するが、そのための完全条件付き確率分布は  $p(\mathbf{x}_t | \mathbf{x}_{-t}, \boldsymbol{\theta}, y_{1:t})$  である。この条件は、モデルのマルコフ性から、 $t = 2, \dots, n-1$  のとき  $p(\mathbf{x}_t | \mathbf{x}_{t-1}, \mathbf{x}_{t+1}, \boldsymbol{\theta}, y_t)$  であり、 $t = 1$  ならば  $p(\mathbf{x}_1 | \mathbf{x}_2, \boldsymbol{\theta}, y_1)$ 、 $t = n$  ならば  $p(\mathbf{x}_n | \mathbf{x}_{n-1}, \boldsymbol{\theta}, y_n)$  である。これらの確率分布の具体的な形を状態方程式から求めれば、MCMC 計算での乱数の動きを与えることができる。

なお、パラメータセット  $\boldsymbol{\theta}$  の確率分布の式の中に複数の正規分布が積の形である場合、これらの積もまた正規分布となるから、これにより乱数の更新を行えばよい<sup>13)</sup>。正規分布の期待値を更新する場合の条件付き確率分布は、もとの分布のパラメータから得られる正規分布になり、期待値と分散が指定されるので、もとの乱数を更新できる。また、分散を更新する場合、条件付き確率分布は逆ガンマ分布となり、このパラメータから乱数を更新できる。

以上がギブズサンプリングを用いたベイズ更新の方法である。

### 3. 材料と方法

図 1 に、調査地点である青森県青森市（県環境保

健センター屋上) および青森県西津軽郡鱒ヶ沢町 (県鱒ヶ沢道路河川事業所屋上) の位置図を示す。

降水採取は、ANEOS 社(旧 小笠原計器株式会社)の自動雨水採水器 US-300HD (青森市) および US-300D (鱒ヶ沢町) を用い、青森市は毎週、鱒ヶ沢町では 2 週間に一度の検体回収を行った。

検体について、湿性沈着モニタリング手引き書 (第 2 版)<sup>14)</sup> により、pH、電気伝導度およびイオン成分について分析を行った。

上記の結果のうち、2007 年度から 2020 年度までの降水量で加重平均した月ごとの pH については、下記の解析を行った。

解析は、R の言語環境 (ソフトウェア RStudio) で動作する統計計算パッケージ Stan を用いた<sup>10)</sup>。ベイズ法による MCMC 法で、繰り返し回数 (単一連鎖法) を 8000 回とし、そのうちの burn-in 回数を 2000 回、チェーン回数 (多重連鎖法) を 4 回、連鎖におけるサンプリング間隔を 6 回とした。その他の設定は、文献<sup>10)</sup> によった。

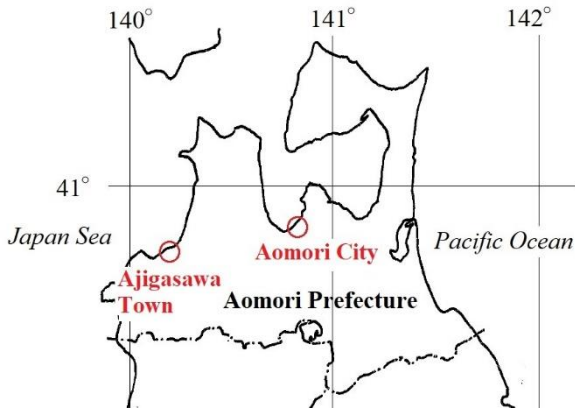


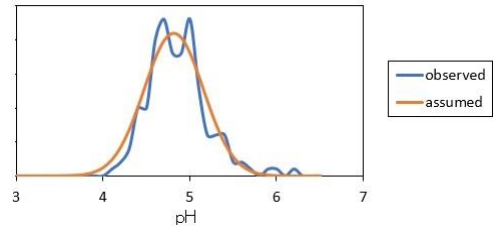
図 1 調査地点位置図

#### 4. 結果

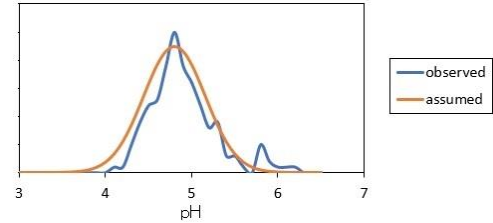
##### 4.1 加重平均された月ごとの降水の pH の正規分布性

図 2 に(a)青森市、(b)鱒ヶ沢町における降水の pH の頻度分布を示す。これらの分布が正規分布であると仮定すると、平均値  $\mu$  と標準偏差  $\sigma$  が求まることから、得られた正規分布曲線を頻度分布に重ね書きした。ここで、正規分布密度関数  $f(x)$  を(15)式で与えた。表 1 にこれらのパラメータを示した。

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left\{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right\} \quad (15)$$



(a) Aomori City



(b) Ajigasawa Town

図 2 (a)青森市および(b)鱒ヶ沢町における加重平均 pH(observed) の頻度分布と正規分布曲線 (assumed)

表 1 二地点の加重平均 pH の統計的パラメータ

Site	$\mu$	$\sigma$
Aomori City	4.81	0.342
Ajigasawa Town	4.80	0.357

##### 4.2 pH の経時変化からの季節変動の分離

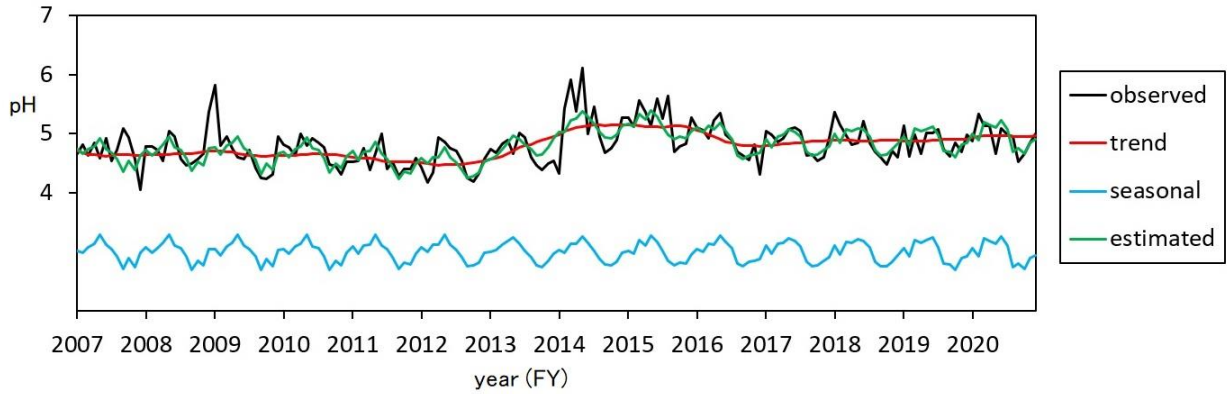
図 3 に(a)青森市、(b)鱒ヶ沢町における加重平均 pH から季節変動分離の解析結果を示す。"observed" は用いたデータ、"trend" および "seasonal" がそれぞれトレンド  $\mu_t$  および季節変動  $\gamma_t$  を示す。"estimated" はこれらの和で、 $\alpha_t$  を示す。

また、表 2 にベイズ法により求めたバラツキの標準偏差を示した。

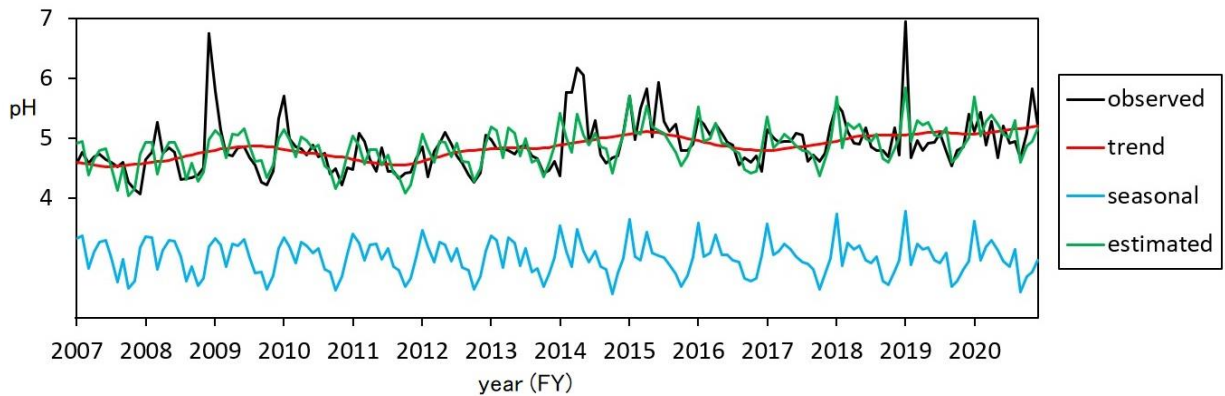
図 4 には、図 3 の観測値 "observed" の "estimated" で示したモデル式による推定値からの偏差を "residue" としてこの分布を示した。ここで、"normal dist." とは、偏差のバラツキの標準偏差から(15)式で求めた正規分布である。

表 2 ベイズ法により求めた、実測データのモデル式からのバラツキの標準偏差

Site	$\sigma_\zeta$	$\sigma_s$	$\sigma_v$
Aomori City	0.00613	0.251	0.0133
Ajigasawa Town	0.00590	0.351	0.0253

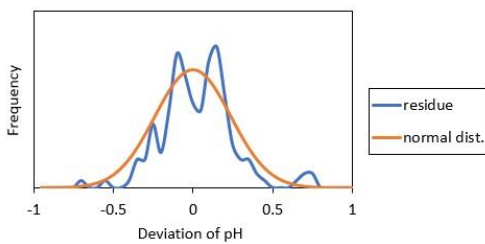


(a) Aomori City

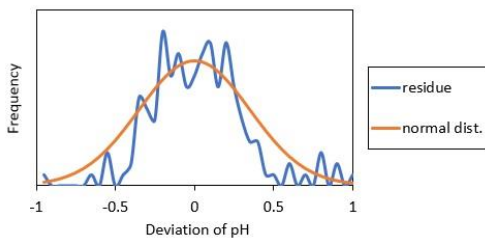


(b) Ajigasawa Town

図3 (a)青森市、(b)鱒ヶ沢町における加重平均 pH からの季節変動の分離結果。年度での表記



(a) Aomori City



(b) Ajigasawa Town

図4 モデル式による pH 経時変化からの季節変動の分離後の偏差の頻度分布

## 5. 考察

### 5.1 加重平均 pH の正規分布性

図2からこの pH はほぼ正規分布に近い頻度分布をしていた。この判断は定性的であり、データ全体からの結果を踏まえてのものである。

ベイズ法による解析では、時系列においてモデル式からのバラツキが正規分布をなすことが第一の仮定である。図4に示したモデル式からの偏差の頻度分布はほぼ正規分布に近いと言え、この仮定が概ね正しかったことが示唆された。

### 5.2 季節変動分離の解析について

#### (1) 季節変動

図3の(a)と(b)を比較すると、抽出された季節変動“seasonal”は、青森市よりも鱒ヶ沢町で、その振幅が大きいことが分かる。また、青森市における季節変動は、経年的にほとんど同一であるのに対して、鱒ヶ沢町では、振幅が漸増していることが示されている。

この季節変動の振幅の増加が温暖化現象などによるものかどうかの議論は今の段階ではできない

が、解析で示された一つの結論である。

## (2)トレンド

図3の(a)と(b)で示した“trend”は青森市と鱒ヶ沢町で概ね同じ傾向であった。このことは、菩提寺ら<sup>15)</sup>が述べたように、これら二つの観測地点で、降水の化学組成比が、海塩の寄与を除けばほぼ同じとみなせることに対応していると考えられる。

## 6. 結論

月ごとに降水量で加重平均された降水の時系列データのpHについて、ベイズ法により季節変動の分離を行った。その結果、次のことが示唆された。

1) このモデルによる解析は、解析後の残差の頻度分布が正規分布に近いことから、概ね妥当であったことが示された。

2) 季節変動の寄与は、青森市よりも鱒ヶ沢町で振幅が大きかった。そして鱒ヶ沢町で、この振幅が漸増する経年変化を示した。

3) 観測された時系列pHから季節変動の効果を除いて得られたトレンドは、青森市と鱒ヶ沢町でほぼ同じ傾向を示した。

仮定したモデル式は、時系列の二次の項を含み、トレンドが平滑化されるモデルであり、また季節変動が12か月のスパンでなされるという仮定をした。(1)-(3)の結果から、これらの仮定は概ね妥当であり、青森県の両地点の降水のpHについては、トレンドとしてほぼ同一であるという示唆を与えるものであると考えられた。

## 文 献

- 1) 玉置元則：日本の酸性雨，東アジアの酸性雨．環境技術,**35**,799,2006
- 2) 佐藤二郎：東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)の活動と包括的大気環境管理の推進．環境技術,**35**,818-823,2006
- 3) 対馬典子ほか：青森県内における酸性沈着による汚染実態—湿性沈着物およびガス状沈着物の調査結果から—．青森県環境保健センター研究報告,**16**,66-73,2005
- 4) 対馬典子ほか：青森県における酸性沈着による汚染実態(II)—平成15～17年度の調査結果より—．青森県環境保健センター研究報告,**18**,26-33,2007
- 5) 対馬典子ほか：青森県内の酸性沈着調査結果～平成3～19年度のとりまとめ～．青森県環境保健センター研究報告,**19**,31-39,2008
- 6) 花石竜治ほか：青森県における酸性雨のイオン

組成の解析．青森県環境保健センター年報,**32**,62-68,2021

7) 辻 昭博ほか：京都府北部の清浄地域における酸性雨の長期的動向．京都府保健環境研究所年報,**53**,41-52,2008

8) 奥本佳伸：季節調整プログラム センサス局法X-12-ARIMAのversion 0.3について．千葉大学経済研究,**24**,99-117,2010

9) Harvey, AC 著, 国友直人, 山本 拓共訳：時系列モデル入門．東京大学出版会,東京,1985

10) 馬場真哉：実践 Data Science シリーズ R と Stan ではじめるベイズ統計モデリングによるデータ分析入門．講談社,東京,2019

11) 萩原淳一郎ほか：基礎からわかる時系列分析—Rで実践するカルマンフィルタ・MCMC・粒子フィルター—．技術評論社,東京,2018

12) 馬場真哉：時系列分析と状態空間モデルの基礎 R と Stan で学ぶ理論と実装．プレアテス出版,安曇野,2018

13) 中妻照雄：入門 ベイズ統計学．朝倉書店,東京,2007

14) 環境省：湿性沈着モニタリング手引き書(第2版),平成13年3月

15) 菩提寺誉子ほか：青森県における酸性雨のイオン組成及び当量沈着量の調査地点間比較．青森県環境保健センター年報,**33**,68-77,2022

## Analysis of temporal changes in pH of acid rain in Aomori Prefecture: separation and extraction of seasonal changes and trends

Ryuji Hanaishi, Motoko Bodaiji, Taketo Jin

Based on the observed pH of precipitation in Aomori city and Ajigasawa town in Aomori Prefecture from fiscal year 2007 to 2020, the monthly pH weighted average of precipitation was calculated, and time series data were separated into seasonal variations and trends. The analysis was performed using the Markov chain Monte Carlo method in a Bayesian statistical method based on a state-space model. The trends for pH were almost the same between Aomori city and Ajigasawa town. On the other hand, the amplitude of seasonal changes was larger in Ajigasawa town than in Aomori city, and gradually increased over time in Ajigasawa town. The finding that the trends were the same at the above two locations was considered to indicate that pH changes followed almost the same pattern except for with seasonal variations.

Key words: Acid rain, pH, Seasonal variation, Trend, State-space model