

# 岩石-水相互作用を支配する不均質反応ダイナミクスを統計的に推定する ～ベイズ統計に基づく情報抽出～

Statistical Estimation of Heterogeneous Reactions Governing Water-Rock Interaction

森本 亮太\*  
Ryota Morimoto

桑谷 立†  
Tatsu Kuwatani

岡本 敦‡  
Atsushi Okamoto

福島 孝治§  
Koji Hukushima

大森 敏明\*  
Toshiaki Omori

## 1. はじめに

自然界には様々な化学反応が存在し自然現象の要因となっており、その化学反応式を正しく推定することは自然界に存在する様々な数理モデルの解明につながり、工学的な活用が可能となる。例えば、地球表層近傍における熱水や地下水は、流れとともに鉱物の溶解と析出によってその組成を変化させる(図1)。これは不均質反応と呼ばれる異なった二相以上からなる化学反応で、この化学反応式の理解は、放射性廃棄物の地層処分、二酸化炭素の貯留など地圏環境を利用しようとする上で非常に重要である。

不均質反応は反応物の界面積に依存するため、実験室とフィールドワークで得られる結果が異なることが起きている。よって不均質反応が従う非線形ダイナミクスを正確に推定するためのデータ駆動的な計算手法の確立が求められる。

本論文では観測データから不均質反応ダイナミクスの推定方法を提案する。導出した確率モデルに対して、中間物のみが観測可能のもとで反応物、中間物、生成物の同時推定を可能にするために逐次モンテカルロ法を導出し、不均質反応ダイナミクスに対して適用する。さらに不均質反応ダイナミクスを支配するパラメータである反応速度定数や拡散定数を推定するためにハイパーパラメータ推定と呼ばれる方法を構成する。提案手法により、観測されるノイズが重畳された観測データから不均質反応ダイナミクスとそのダイナミクスを支配するパラメータの推定が可能であることを示す。

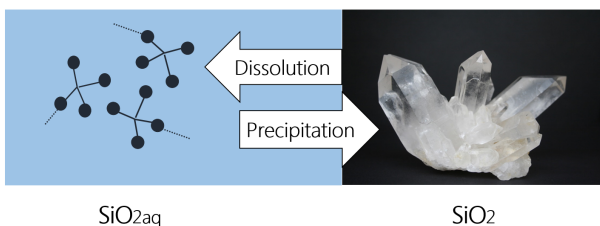


図1. 不均質反応ダイナミクスの一例(石英)

## 2. 時空間を考慮した不均質反応の非線形ダイナミクス推定

本研究では、不均質反応が液相と固相の界面積に依存する非線形ダイナミクスに依存することに着目し、実験室で

検証が可能なモデルとして反応物 $N^r$ (固相) $\rightarrow$ 中間物 $C$ (液相) $\rightarrow$ 生成物 $N^p$ (固相)からなる化学反応に対して確率モデルを定式化する。

次に不均質反応の非線形ダイナミクス推定を実現するために、観測されるデータ $\{\mathbf{Y}_t\}$ から、各状態の多次元の時空間応答 $\{\mathbf{X}_t\}$ とその背後に存在する反応速度定数などのパラメータ群 $\Theta$ を導入した推定方法を構築する。ここで $\{\mathbf{X}_t\} = \{N^r, C, N^p\}$ 、観測データは液相である中間物 $C$ にノイズが付加した $\hat{C}$ を考える。

まず、不均質反応の各場所における非線形ダイナミクスを表す。システムモデルの確率モデル $p(\mathbf{X}_{t+1}|\mathbf{X}_t)$ を導出する。不均質反応の空間構造及び時間的振る舞いを考慮したモデルに基づいて、次の微分方程式に従うとする。

$$\frac{dN_i^r}{dt} = k_r R_i \quad (1)$$

$$\frac{dN_i^p}{dt} = k_p P_i \quad (2)$$

$$\frac{dC_i}{dt} = \begin{cases} -k_r R_i - k_p P_i - DC_i^+ & i = 1 \\ -k_r R_i - k_p P_i - D(C_i^- + C_i^+) & 2 \leq i \leq M \\ -k_r R_i - k_p P_i - DC_i^- & i = M \end{cases} \quad (3)$$

ただし

$$R_i = A_r (N_i^r)^n (C_i - C_{r,eq}) \quad (4)$$

$$P_i = A_p (N_i^p)^n (C_i - C_{p,eq}) \quad (5)$$

$$C_i^+ = (C_i - C_{i+1}) \quad (6)$$

$$C_i^- = (C_i - C_{i-1}) \quad (7)$$

である。 $i$ は各状態の位置を示し、 $M$ は地点数を表す。 $D$ は拡散定数、 $k_r, k_p$ は反応速度定数である。 $D$ は中間物の空間内における鉱物の空間的な拡散の速さを定める定数で、不均質反応を支配するパラメータである。

時刻 $t+1$ における中間物 $C(t+1)$ が従う確率モデルは、次のように表される。

$$P(C_i(t+1)|C_{i-1}(t), C_i(t), C_{i+1}(t), N^r(t), N^p(t)) \propto \exp \left[ -\frac{1}{2\sigma^2} \left( \frac{C_i(t+1) - C_i(t)}{\Delta} + D(C_i^- + C_i^+) + k_r R_i + k_p P_i \right)^2 \right] \quad (8)$$

$\Delta$ は離散化した際の刻み幅である。同様に $N^r, N^p$ についても確率モデルを導出することで $p(\mathbf{X}_{t+1}|\mathbf{X}_t)$ を構成する。

次に、観測モデルの確率モデル $p(\mathbf{Y}_t|\mathbf{X}_t)$ を定式化する。図2に示すように、多次元の状態変数 $\mathbf{X}_t$ のうち、ノイズが重畳された観測データ $\hat{C}_i$ のみが観測される状況を想定する

\*神戸大学 大学院工学研究科

†海洋研究開発機構

‡東北大学 大学院環境科学研究所

§東京大学 大学院総合文化研究科

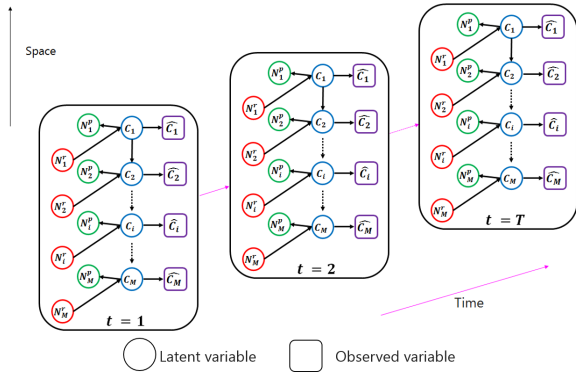


図2. 不均質ダイナミクスの状態空間モデル

と、観測モデルは、確率モデルを用いて次式のようにあらわされる。

$$P(\hat{C}_i|C_i) \propto \exp \left[ -\frac{(\hat{C}_i - C_i)^2}{2\eta^2} \right] \quad (9)$$

ここで、 $\eta$ は観測ノイズの強度である。観測可能な場所に対してこの確率モデルを導入することにより、観測モデル  $p(\mathbf{Y}_t|\mathbf{X}_t)$  を構成する。不均質反応モデルの状態空間モデルを図2に示す。

これらの確率モデルを用いてノイズが重畳された観測されるデータ  $\hat{C}$  から不均質反応における各状態の分布を推定する。時刻  $t$  における隠れ状態  $\mathbf{X}_t$  は、同時刻  $t$  における観測値  $\mathbf{Y}_{1:t}$  を用いて次式のように推定される。

$$p(\mathbf{X}_t|\mathbf{Y}_{1:t}) = \frac{p(\mathbf{Y}_t|\mathbf{X}_t)p(\mathbf{X}_t|\mathbf{Y}_{1:t-1})}{\int p(\mathbf{Y}_t|\mathbf{X}_t)p(\mathbf{X}_t|\mathbf{Y}_{1:t-1})d\mathbf{X}_t} \quad (10)$$

ここで、 $p(\mathbf{X}_t|\mathbf{Y}_{1:t-1})$  は、予測分布であり、ベイズの定理を用いると次式のように求まる。

$$p(\mathbf{X}_t|\mathbf{Y}_{t-1}) = \int p(\mathbf{X}_t|\mathbf{X}_{t-1})p(\mathbf{X}_{t-1}|\mathbf{Y}_{1:t-1})d\mathbf{X}_{t-1} \quad (11)$$

不均質反応の数理モデルから導出したシステムモデルと観測モデルをこれらの2つの更新式に交互に適用し、隠れ状態  $\mathbf{X}_t$  の推定を実現する。更にハイパーパラメータ群  $\Theta = (k_r, k_p, D)$  を推定するために、EMアルゴリズムを用いた推定法を構成する。

以上のように提案手法ではベイズ統計に基づき隠れ状態  $\mathbf{X}_t$  の推定、EMアルゴリズムを用いたハイパーパラメータ群  $\Theta = (k_r, k_p, D)$  の推定を交互に繰り返す。以上のように構成される統計的アルゴリズムにより、不均質反応の非線形ダイナミクス、及びそれを支配するパラメータの同時推定を実現する。

### 3. 提案法に基づく推定結果

図3において青の実線が真の値、赤の実線が推定値で上段からそれぞれ  $k_r, k_p, D$  である。横軸は逐次モンテカルロ法とハイパーパラメータの試行回数である。反応速度定数である  $k_r, k_p$  が試行回数を重ねるごとに真の値に漸近しており、真の値で留まることを示している。また拡散定数  $D$  も同様に真の値で留まっており、これらのことから提案手法が時空間モデルにおいてもハイパーパラメータが推定できることが示せた。

次に図4に状態推定の結果を示す。例として時刻  $t = 5000$  における各状態の推定値と真の値をそれぞれ赤色と青色で示す。実験結果から提案手法によって得られる推定値と真

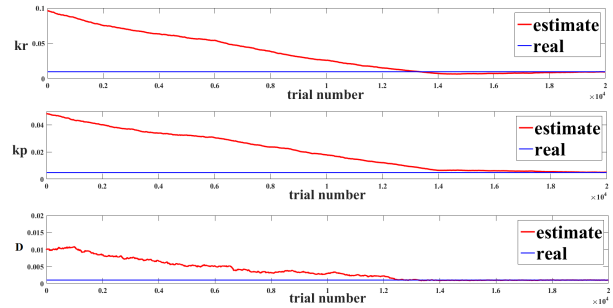


図3. 3つのハイパーパラメータ同時推定結果

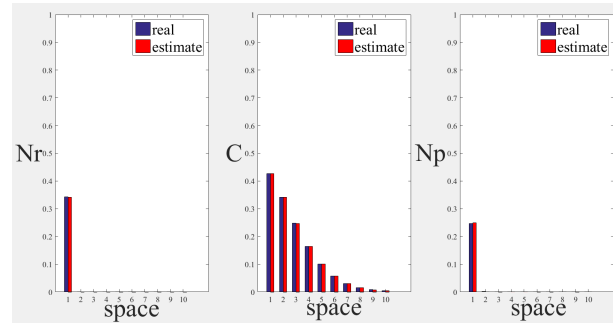


図4. 状態推定結果 ( $t = 5000$ )

の値がほぼ一致していることがわかる。

以上のように提案手法によってノイズが重畳された観測データのみから各状態、及び各ハイパーパラメータを同時推定できることが示された。

### 4. まとめ

本研究では不均質反応の各状態とハイパーパラメータの推定を行う手法を提案した。時空間性を考慮した不均質反応ダイナミクスの状態空間モデルを構成し、逐次モンテカルロ法による状態推定、EMアルゴリズムを用いてハイパーパラメータ推定を繰り返すことで不均質反応のハイパーパラメータの推定が可能であることを示した。

### 謝辞

本研究の一部は、文部科学省 科学研究費補助金 新学術領域研究「スパースモデリングの深化と高次元データ駆動科学の創成」[課題番号JP25120010]、国際共同研究加速基金(国際共同研究強化)[課題番号JP15KK0010]の援助の下で、行われた。

### 参考文献

- [1] J. D. Rimstidt and H. L. Barnes: The kinetics of silica-water reactions. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 44, pp. 1683-1699 (1980)
- [2] T. Omori, T. Kuwatani, A. Okamoto, K. Hukushima: Bayesian inversion analysis of nonlinear dynamics in surface heterogeneous reactions, *Physical Review E* 94, 033305 (2016)