

大気ブラックカーボン及びその役割を知る

(Atmospheric black carbon and its role)

¹ 安成哲平, ² 兼保直樹, ³ 能田淳, ³ 星野仏方, ⁴ 野口泉, ¹ 村尾直人, ⁵ 秋山雅行,
³ 藤岡真路, ³ 馬場賢治, ³ 萩原克郎, ⁶ 甲斐憲次, ⁵ 山口高志, ⁵ 鈴木啓明, ⁷ 松本利恵

¹ 北海道大学大学院工学研究院

² 産業技術総合研究所

³ 酪農学園大学

⁴ 北海道立総合研究機構環境・地質研究本部

⁵ 北海道立総合研究機構環境科学研究センター

⁶ 名古屋大学大学院環境学研究科

⁷ 埼玉県環境科学国際センター

Correspondence:

安成哲平

北海道大学 大学院工学研究院

〒060-8628 札幌市北区北 13 条西 8 丁目

E-mail: t.j.yasunari@eng.hokudai.ac.jp

1. はじめに

みなさんは、ブラックカーボン (Black Carbon: BC) という言葉をどれくらいご存知だろうか？ 近年日本では、越境大気汚染の報道が多くなったこともあり、PM_{2.5} (空気力学径で捕集効率が 2.5 μm で 50% となるように捕集された粒子状物質「Particulate Matter: PM」の質量濃度であり、2.5 μm 以上の粒子も実際には入っている: <https://www.nies.go.jp/kanko/news/20/20-5/20-5-05.html>) という言葉は身近に知られるようになった。その PM_{2.5} の中に含まれている代表的な大気汚染微粒子 (エアロゾル) の1つが BC である (e.g., U.S. EPA, 2012; Bond et al., 2013)。BC は不完全燃焼に伴い出てくる黒色炭素で、人為起源 (ディーゼルエンジン, 家庭用ストーブ, 工場など) 及び自然起源 (森林火災などのバイオマス燃焼, 焼畑など) から排出される (e.g., Bond et al., 2013)。呼び方は、BC と呼ばれたり、煤 (soot) と言われたり、熱光学的分析の際には EC (Elemental Carbon: EC) と呼ばれたりもするが (e.g., Bond and Bergstrom, 2006)、いずれも黒色炭素のことである。BC は PM_{2.5} のサイズであるので、呼吸器系などの健康影響について懸念されている (e.g., Janssen et al., 2012; U.S. EPA, 2012)。一方で、大気中では黒いことで太陽の光を吸収するので、大気を暖める効果があり (e.g.,

IPCC, 2007, 2013), 更には雪に落ちた際雪の反射率(アルベド)を下げることで地表を暖めることで気候へ影響も与えることが議論されている(e.g., Hansen and Nazarenko, 2004; Hansen et al., 2005; Flanner et al., 2007; Yasunari et al., 2015). このように, 健康から気候まで様々な研究トピックに関わる大気汚染物質が BC である.

そんな現在世界的に注目されている大気汚染物質 BC ではあるが, 2016 年 11 月 25 日に地方独立行政法人北海道立総合研究機構環境科学研究センター及び酪農学園大学が主催で, 第4回大気エアロゾルシンポジウム「ブラックカーボン」が札幌で開催された(<https://goo.gl/ORo7vh>). このシンポジウムでは, BC に関連した様々な講演があり, BC 全般の話から, モンゴルの火力発電所から排出された BC の動態, 日本のバックグラウンド大気中での BC 濃度と BC 沈着量, 北海道内 BC 濃度変動, 積雪中の BC 及びその雪氷変動と気候への影響, BC とバイオエアロゾルの関係, バイオマス燃焼起源の BC についての講演があった. このシンポジウムでの講演及び予稿集は BC について大変良くまとまっており, BC について参加者の方々は知見を深めることができたと思われる. しかしながら, 残念なことに, この BC のまとまった話は当日の限られた参加者にしか伝わるものがなかった. 更に, 北海道や日本及び周辺域における BC に特化した講演の話は他ではなかなか聞けない話であり, 貴重なものであった. 今回, 日本気象学会北海道支部から「細氷」の解説記事を執筆する機会を頂いていたこともあったため, この大気エアロゾルシンポジウムの BC に関する内容を是非多くの方に読んでいただければという思いと合わせて, 講演・予稿集(特に予稿集)に追記・修正などを加えて(もしくは新たに書いていただき), この機会にまとめ直す運びとなった. 尚, 大気エアロゾルシンポジウムの予稿集の内容についての著作権はすべて執筆著者らに帰属しているため, 関わった方々に本解説記事においても共著者に加わってもらうことで文章の再利用することに問題がないことを事前に確認している(日本気象学会北海道支部にも問題がないことを確認済み). また, 一部論文化前の結果などで要旨の内容をそのまま出せない場合には, 講演内容に関連しつつ, 本解説記事に載せるための代わりの記事を新たに書いていただいた. 論文ではなかなか書けないような部分も書いていただいたので, 読み物としても BC について楽しんでいただけるのではないかと考えている.

世界的には様々な BC に関連した報告書や論文などが既に出ているので, もし本解説記事をきっかけに BC に興味を持たれた方がおられたら, BC についての気候から健康影響までまとめた米国環境保護庁(United States Environmental Protection Agency: U.S. EPA)の報告書(U.S. EPA, 2012)や BC に関するおそらく最も良くまとまっている 173 ページにも及ぶ総説論文(Bond et al., 2013), 気候影響についての最新の知見は IPCC(Intergovernmental Panels on Climate Change)の最新の第5次報告書(IPCC, 2013), 雪氷中の BC 及びその他の太陽光吸収性粒子についての観測・モデル研究からの最新の知見及びその水循環への影響についての総説論文(Qian et al., 2015)などを読んでいただければ幸いである. 皆様が, 本解説記事を通して, 少しでも大気エアロゾルの BC というものに興味を持っていただくきっかけとなれば幸いである.

本解説記事の各章の構成

1. はじめに	3
2. ブラックカーボン(BC)とは？	6
2.1. BC の重要性	6
2.2. BC の発生源	7
3. バイオマス燃焼起源の BC	8
3.1. 調査方法および地点	8
3.2. 結果および考察	9
3.2.1. 道内各地の BC 濃度の変動	9
3.2.2. バイオマス燃焼と BC	10
3.3. おわりに	11
4. BC とバイオエアロゾルの関係について	13
5. ドルノゴビ県サインシャンドの火力発電所から排出される煤の動態	16
5.1. 研究方法	17
5.2. 結果および考察	19
6. 過去からの EC の地表面沈着量を北海道で復元 ー分析のあれこれー	21
6.1. BC, EC の定義と分析法のよもやま話	21
6.2. 居酒屋にて、日本のアイスコア・サンプルを発見	22
6.3. 分析法をどうする…ないものは自分で考えろ	24
6.4. 気にならない人は何もしないが、私は気になる炭酸塩を徹底除去	24
6.5. さて、その結果は？	25
7. 北海道内の PM _{2.5} 中 BC 濃度の変動について	26
7.1. 試料採取及び分析	26
7.2. 結果および考察	26
7.3. おわりに	28
8. 雪の BC とその雪氷変動及び気候への影響	29
8.1. 雪のアルベドと太陽光吸収性エアロゾル	29
8.2. 札幌の雪と積雪不純物	30
8.3. 気候モデルと雪の BC	31
8.4. 今後の展望	33
9. まとめ	35
謝辞	36
参考文献	37

2. BC とは？

「ブラックカーボン (BC)」が使われるようになったのは比較的最近のことで、それ以前は「すす (煤)」や「エレメンタルカーボン (EC, 元素状炭素や黒色純炭素)」が使われていた。地球温暖化を扱う IPCC の第 2 次報告書 Climate Change 1995 (IPCC, 1996) で, "*We define soot as the light-absorbing aerosol produced by incomplete combustion of carbon-based fuels, as distinct from non-absorbing organic aerosols from, for example, biomass combustion. Some authors use the term "black carbon" for this component.*" (p.104) と書かれていることから, 「BC」は 1995 年あたりから使われ始めたことがわかる。これらの 3 つの用語は, 同じものとして使用されることもあれば, BC にすすが含まれる場合, またはその逆, ということもある。これらの黒色炭素に関する用語の違いについては, Bond and Bergstrom (2006) に大変わかりやすく述べられており, あえて区別すれば, 「EC」はエアロゾルのキャラクタリゼーションのなかで炭素質エアロゾルの一つとして分析される場合に用いられ, 「BC」は光吸収性に注目した研究で使用され, 「すす」はわかりやすさであったり, 排出に着目した言い方であったり, ということになるだろう。本解説記事の元となる第4回大気エアロゾルシンポジウム「ブラックカーボン」では (<https://goo.gl/ORo7vh>), これらを区別する必要はなかったが, 科学的な議論を行なう際に, 用語の定義があいまいであることが好ましくないことはいうまでもない。

2.1. BC の重要性

BC は $PM_{2.5}$ の主要成分の一つであるが (e.g., U.S. EPA, 2012), 私たちが特にそれに注目するのは次のような特徴を持つためである。

まずこれまでの文献を元にすれば, 以下にまとめられるような気候への影響がある (e.g., Warren and Wiscombe, 1980; Flanner et al., 2007; 青木と田中, 2008, and references therein; IPCC, 2007, 2013; U.S. EPA, 2012; Bond et al., 2013; Yasunari et al., 2015): 「大気エアロゾルは光を散乱するが, BC のような色を持つ粒子は太陽の光を吸収してそれを含む気層を暖め, 地表に届く太陽光を減らす。色を持つ粒子として, 他に黄砂などの土壌粒子や一部の有機炭素成分もあるが, BC の光吸収が最も大きい。さらに BC が雪氷のような「明るい」地表面に沈着すると, その光吸収性により, 氷や雪の融解を加速したり, 地表を暗く (太陽光の反射を小さく) することにより, 気候に影響を与える」。

次に人の健康への影響が報告書でまとめられている (e.g., Janssen et al., 2012, and references therein; U.S. EPA, 2012, and references therein): 「環境大気中の $PM_{2.5}$ が世界全体にわたって大きな健康影響を持つという疫学的研究やそれに基づく評価研究により示されてきており, BC はその PM の一つの良い指標となることや, 他の PM に含まれる毒性物質のキャリアーとしての働きとして注目されている」。例えば, Global Burden of Disease study 2010 では, $PM_{2.5}$ による大気汚染によって, 毎年, 世界で約 320 万人の尚早死亡が生じるとされている (Burnett et al., 2014)。最近の疫学結果を用いた評価で特に注目されるのは, 比較的濃度が低い先進国においても, $PM_{2.5}$ 濃度のさらなる低減により (主に虚血性心疾患, 脳血管疾患による) 尚早死亡を大きく減らすことができ

るとされたことである(日本の死亡者数推定は毎年 2 万 5 千人)(Lelieveld et al., 2015). $PM_{2.5}$ 中のどんな成分が最も健康に影響するかはわかっていないが, $PM_{2.5}$ 中の成分の健康影響を確認する試みが増えており, BC は特に注目を集める成分の一つである.

2.2. BC の発生源

BC は, 炭素を主成分とする燃料が不完全燃焼する際に発生する. 具体的には, ディーゼルエンジンの排気, 石炭燃焼, 森林火災などがその発生源である. Bond et al. (2013) の BC の総説論文の図 9 を元によると, 2000 年の時点で, 世界全体の BC 排出の Top 3 の地域は, 上位からアフリカ, 東アジア, ラテンアメリカ(中南米)である. 同図を更に参照すると, BC 排出量のソースとして, 欧米の先進国は, ディーゼルからの排出が顕著なのに対し, ラテンアメリカやアフリカでは屋外のバイオマス燃焼の割合が多く(アフリカはバイオ燃料による調理も顕著), 東アジアでは産業や家庭の石炭使用とバイオ燃料による調理が主なソースとなっている(Bond et al., 2013). 2000 年以降, アジアからの排出量は増加傾向にあり, 中でも中国とインドは世界最大の排出国となっており, 1996 年から 2010 年の間にこれらの国々では BC の排出量が 21%と 41%, それぞれ増加している(Lu et al., 2011). これらの地域では, 住宅での暖房や調理によるバイオマス燃焼からの排出が支配的で(その次に, 産業による石炭使用からの排出が多い)(Lu et al., 2011, の図 3 参照), 先進国の排出が主に輸送セクター, 特にディーゼル車からであることと大きく異なる(e.g., Bond et al., 2013, の図 9 参照). 近年の研究は全球の人為起源の BC 排出量が産業革命以降増え続け, その寄与が石炭, 生物燃料, ディーゼルエンジンへと変わってきたことを示す(Bond et al., 2007). 先進国からの排出が大きく減るなか, 途上国での排出対策が今後重要となる.

3. バイオマス燃焼起源の BC

前章までに述べたように、大気中 BC は、いわゆる煤であり、多孔性の微小粒子である。PM_{2.5} サイズのため、長距離輸送されやすい。また有害な汚染物質や時には細菌などの微生物が付着しやすく、これらの運び屋としても懸念される物質である(バイオエアロゾルについては第 4 章参照)。

我が国の都市部における BC 濃度は自動車からの排出量削減に伴い改善傾向にある。しかしながら、アジアにおける BC 排出量は、前章で述べたようにインドおよび中国の排出量が大きく(Lu et al., 2011)、その影響が懸念されている。中国の発生源としては、近年は自動車の寄与が増加しつつあるが、石炭およびバイオマス燃焼の寄与が大きい(Ohara et al., 2007; Bond et al., 2004)。そこで、この章では北海道を対象地域として、大気中 BC 濃度の挙動を解析するとともに、バイオマス燃焼や化石燃料の燃焼の指標となる非海塩由来カリウムイオン(nss-K⁺)、硝酸イオン(NO₃⁻)、および非海塩由来硫酸イオン(nss-SO₄²⁻)などの挙動との比較を行い、BC の起源とその変動傾向を考察した。

3.1. 調査方法および地点

通常、BC は図 3.1(中央および左)のように石英繊維ろ紙で捕集し、燃焼による方法で測定され、EC とも呼ばれる。しかし近年、光学的黒色炭素粒子(オプティカルブラックカーボン: OBC)と呼ばれる測定法で BC を測定する方法が用いられ始めている。本研究では、松田ら(2010)によって開発された大気中粒子の捕集に多用されているテフロンフィルター(図 3.1 右)の吸光度(黒色度)を、積分球を用いて測定する方法を用いた。本方法は図 3.2 に示すように燃焼法による結果とよく合致していることが確認されている。

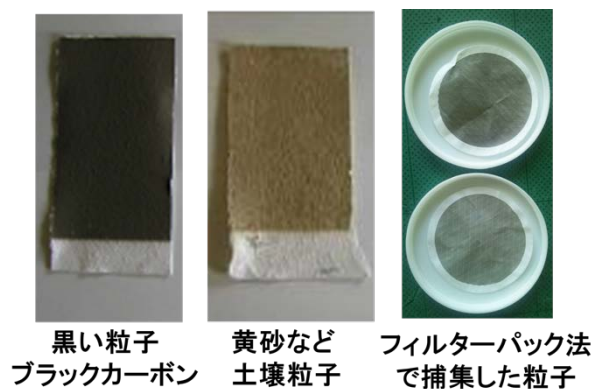


図 3.1. 大気中粒子を捕集したフィルター。

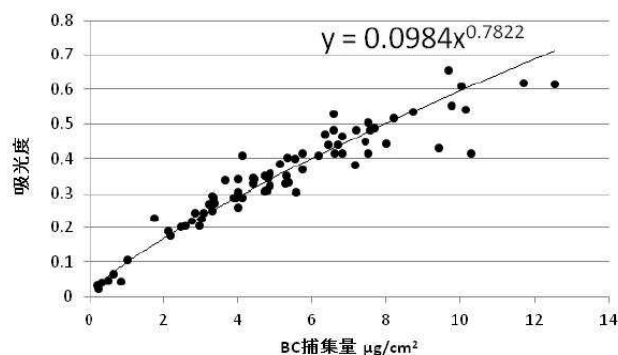


図 3.2. 燃焼法による BC 捕集量と光学的黒色度の吸光度.

解析対象は、図 3.3 に示すように 2009～2014 年度に道内で大気汚染物質調査を行った都市部の札幌、田園部の母子里、海岸部の利尻、山間部の天塩および道東の山間部の摩周にて得られた試料である。

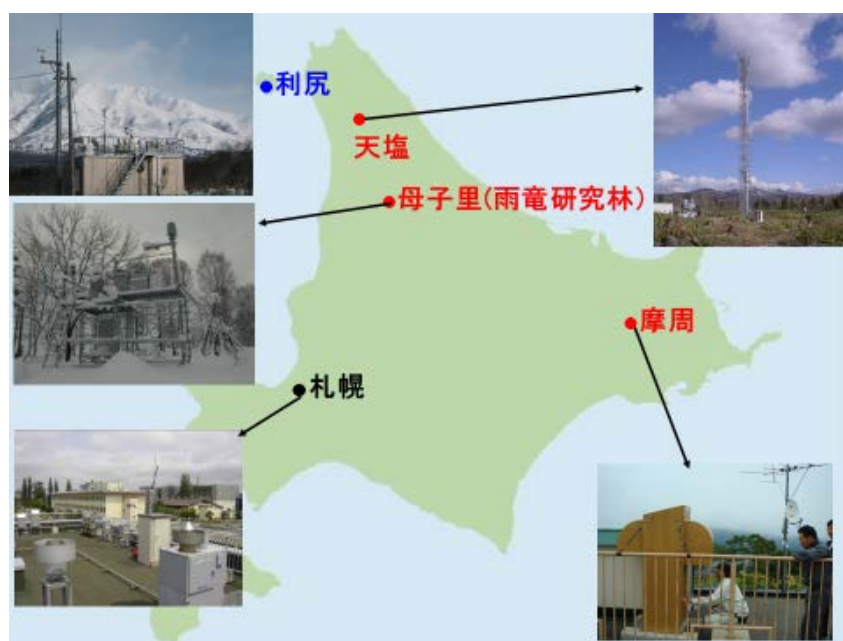


図 3.3. 調査地点

青字: 海岸, 赤字: 田園及び山間部, 黒字: 都市部.

3.2. 結果および考察

3.2.1. 道内各地の BC 濃度の変動

BC 濃度は図 3.4 に示すように、都市部の札幌で高く、海岸部、田園部、山間部ではばらつきはあったが、大きなレベルの差は見られなかった。季節的にはいずれも寒候期に高かった。冬は大気安定するなどの条件もあるが、海岸および山間部の状況から、卓越する季節風により、長距離

輸送汚染物質の影響が考えられた。また、長期的にはいずれの地点も近年減少傾向が見られた。

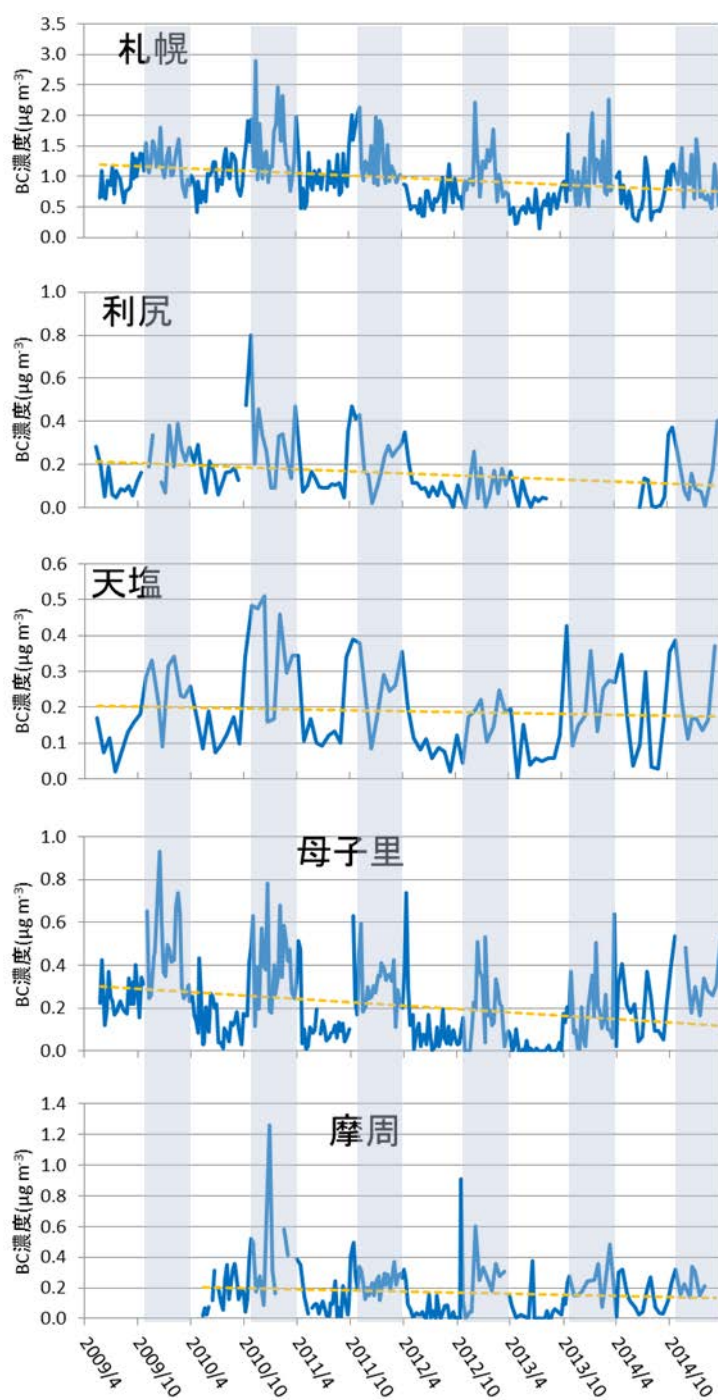


図 3.4. BC 濃度の変動.

3.2.2. バイオマス燃焼と BC

2014 年 7 月 25 日午後、ロシア・東シベリアで発生した大規模な森林火災に起因する煙霧が全道で観測された。微小粒子状物質(PM_{2.5})の濃度も急上昇し、特に札幌市内では 1 時間値のこれまでの最高濃度 155 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (月寒中央測定局)を記録した(<https://goo.gl/zKTXfq>)。この時(7 月 25-

26 日), 札幌市北区で実施した大気中粒子・ガス成分調査結果を, 燃焼法による EC および有機炭素粒子(OC)濃度が得られている 2012 年 7 月の月平均値を比較対象に図 3.5 に示す.

通常の越境大気汚染で見られる化石燃料の燃焼由来の SO_4^{2-} などの濃度は低く, 森林火災時に濃度が高かった成分として粒子状の NH_4^+ と OC, ガスでは NH_3 濃度が挙げられた. また, NO_3^- , K^+ および EC 濃度も高い傾向が窺えた. これらのことから, K^+ はバイオマス燃焼の重要な指標の一つであることが分かる. そこで, 全道の BC 濃度と nss-K^+ , NO_3^- , および nss-SO_4^{2-} 濃度の相関を解析した. 結果を図 3.6 に示す. 日本海側の海岸部(利尻), または海岸から比較的近い山間部(天塩)では, nss-K^+ との強い有意な相関が見られ, これらの地点での BC はバイオマス燃焼起源の影響が大きく, またいずれの地点も相関係数は $\text{nss-K}^+ > \text{NO}_3^- > \text{nss-SO}_4^{2-}$ の順に高く, 道内全体でもバイオマス燃焼の影響は大きいと考えられた. これらの起源は冬期にも相関が高いことや気流の流れなどから, 大陸での発生源の影響が大きいと考えられた(野口ら, 2012).

一方, 札幌では自動車や他の発生源の影響が大きいため, 他の地点より nss-K^+ との相関係数は小さかったと考えられた.

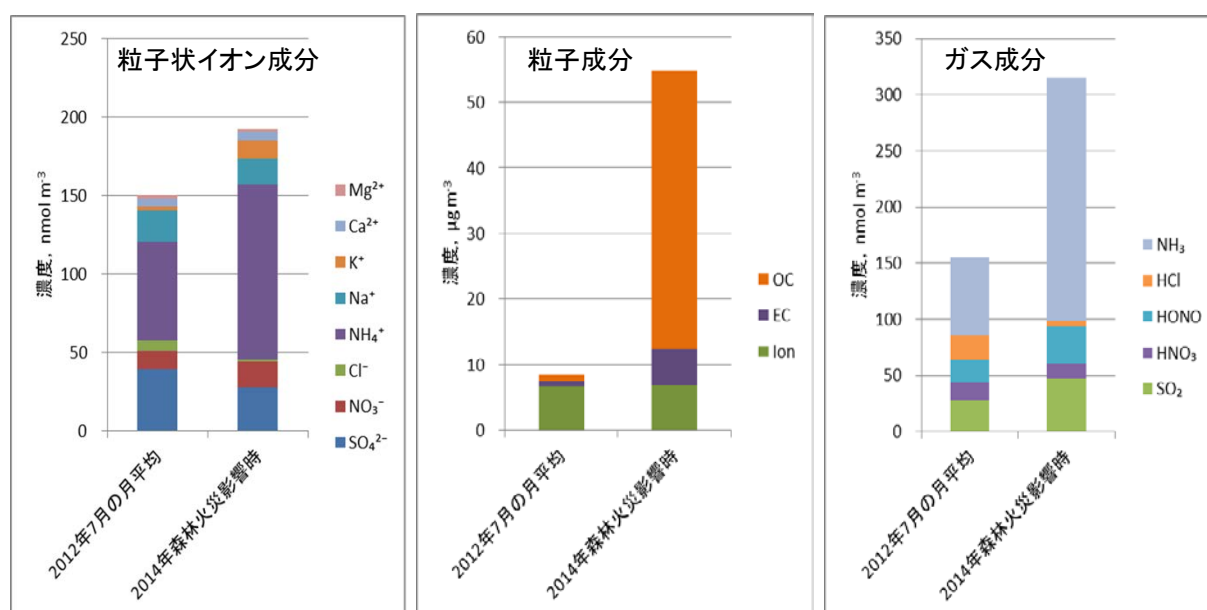


図 3.5. 7 月 25-26 日の森林火災時と通常時の大気中成分の比較(野口ら, 2012).

3.3. おわりに

BC と nss-K^+ の間の相関については, 国内の他の地域では, 北海道ほどの強い相関は見られなかったことを松本ら(2016)は報告している. また地理的に北海道に近い中国北東部の黒竜江省, 吉林省などでは薪や農業残渣物などが暖房を含む各種燃料として用いられていることが報告されており(外岡ら, 2008), これらの地域の発生源の影響が大きいと考えられた. しかしながら, 前述したように長期的に減少傾向であることから, 発生源となる地域のエネルギー構成が変わりつつあることも考えられた.

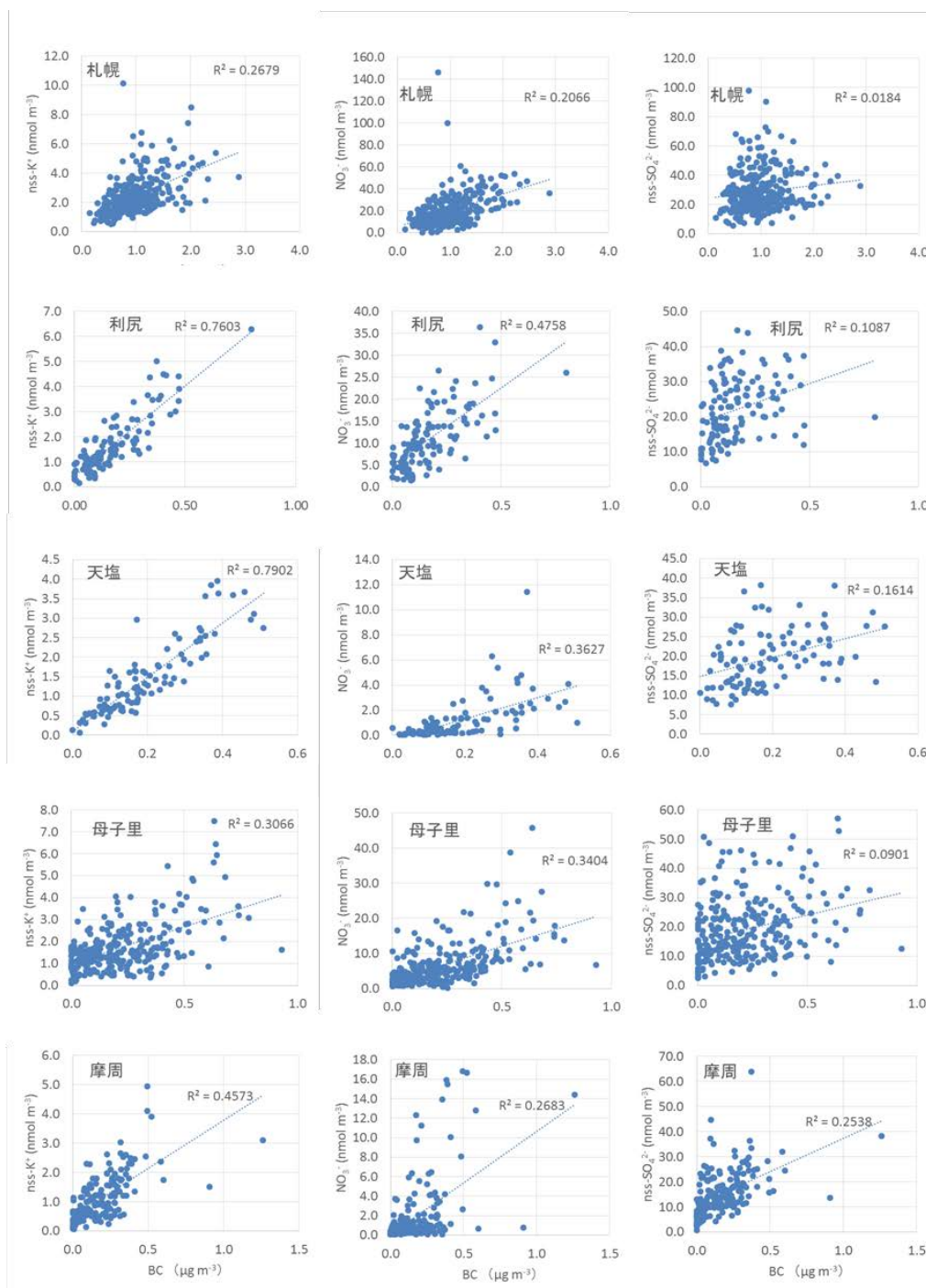


図 3.6. BC 濃度と nss-K⁺, NO₃⁻, および nss-SO₄²⁻ 濃度の相関。

4. BC とバイオエアロゾルの関係について

バイオエアロゾルは Biological Aerosol の造語であり、ウイルス、バクテリア、カビ、原虫、藻など微生物由来の成分を含むエアロゾルである。また、花粉などの植物由来の成分が含まれている場合もバイオエアロゾルと呼ばれる。これら、バイオエアロゾルは生物由来の物質が感染力や増殖力を保持したままで存在している場合 (Viable Bioaerosol: VB) と、生物としては壊れた状態で感染力や増殖力は持たないが毒素、核酸、その他生物由来物質が存在している場合 (Non-Viable Bioaerosol: NVB) がある。健康への影響という観点から考えると、VB は感染症として、はしか、インフルエンザ、結核など空気感染の成立による疾病が知られている。これには、ウイルス、バクテリアなどの病原体が人などのホスト間を移同し増殖することで健康被害となる例である。これに対し、NVB は生物由来の物質自体が毒素などとして健康に影響を及ぼしてしまう例である。生物由来の物質には人の抗体と反応してアレルギーを起こす抗原物質 (アレルゲン) が多く存在し、人によっては少量であっても甚大な健康被害をもたらす可能性がある。アレルギー反応に大きな個人差が存在する例として花粉症などがある。また、真菌の毒素が生体側に過剰な免疫応答を引き起し、炎症を呈し健康被害を及ぼすことが川崎病のメカニズムであることが近年示唆されており (Rodó et al., 2014), これも人によって反応に違いがある。これら両タイプのバイオエアロゾル (VB, NVB) は健康被害を及ぼす可能性があり、大気中での挙動を把握することは健康被害を考える上で重要であると考えらる。

BCなどの煤成分とバイオエアロゾルを考えてみた場合、これらがどの様に影響し合うかについてはほとんどが未解明である。大気中を浮遊するバイオエアロゾルの立場からすると、乾燥、酸化ストレス、低温度、場合によっては紫外線の照射などを受ける過酷な環境下であることが想像できる。このような条件下では生存の維持、増殖は困難であることが考えられるため、どちらかという「移動時間」として、いかにこの過酷な状況をやり過ごすかが重要なポイントであることが想像できる。また生物活動を行うことができない NVB にしても、酸化ストレスに曝露されることで、その物質自体の持つ毒素、抗原物質としての特性が変化することが推測できる。これまでに、大気中のストレスが多く存在する過酷な環境を乗り切るために砂嵐に含まれるダスト成分が「隠れ蓑」として作用しているのではないかという仮説が存在する (Iwasaka et al., 2009)。また、カリブ海のサンゴ礁がカビにより被害を受けた例として、サハラ砂漠からのダスト成分がカビの長距離移動を助けたことを示唆する報告がある (Griffin et al., 2003)。同様に BC がバイオエアロゾルに含まれる生物由来成分の「蓑」として、酸化や紫外線のストレスから保護しているのではないかという仮説を基に我々のグループでは研究を進めている。

本研究グループではテフロンシートで作成した反応チャンバーを活用して、環境中に存在しうるダストとバクテリアを含むバイオエアロゾルが混在した状態にて、バクテリアの生存保持にどのような影響を及ぼすかについての評価試験を行っている (能田, 2016)。図 4.1 の静的反応チャンバーは 2 室に分かれており、バクテリアと環境微粒子等を個別に浮遊させることができる。実験の流れとしては 2 種類の異なるエアロゾルの濃度をそれぞれ把握した後に混和・攪拌し、粒子数分布状況の

把握を行う。それぞれのエアロゾルを混和反応させた1時間後にバイオサンプラー(図 4.2)を用いてチャンバー内に存在するエアロゾルを捕集し、それらを培養し、コロニー数を数えることで生存率の違いを評価する。これまでに、非生物由来のダストとしては、モンゴル由来の砂と石巻の津波被害の影響を受けた地域を由来とする津波由来ダストを十分乾燥させたものを使用し、バイオエアロゾルとして大腸菌由来のDH5 α を試験に使用している。この実験の目的は異なるタイプのダスト成分の存在がエアロゾル化された大腸菌の生存にどのような影響を及ぼすかについて行った実験である。ダスト成分においては、600 °Cの強熱試験より判定した揮発成分はモンゴル由来ダスト：約 1.2%と津波由来ダスト：約 5.6%であり、津波由来ダストには有機物質と思われる成分が約 4.7 倍含まれていた。有機物質の組成分析までは至っていないが、人の活動の多い石巻港の沿岸地帯由来のヘドロ状の物質であったことから、重油など脂溶性の物質が多く含まれている可能性が高い。船舶関係の化石燃料、潤滑油などが港付近の海底に滞積していた可能性が考えられる。また、ヘドロ由来ダストであり、色がやや黒ずんでいる点、また強いドブ臭さが存在したことなどから嫌気状態にあり、有機物質の酸化が進みにくい状況にあった可能性が高い。これらのダストの電子顕微鏡画像を図 4.3a,b にてそれぞれ表示した。このように表面の形状に大きな違いがあるが、有機物質量の違いが生存数に影響したと考える。これらの結果は大気中に存在するBCとバイオエアロゾルの関係を把握する上で参考になると考える。すなわち、この試験での有機物質をBCに置き換えると、より多くのBCの存在はバクテリアの存在を保護する要素が有るのではないかという仮説である。例えば、このヘドロ由来ダスト中に含まれる脂溶性の有機物質成分がバクテリアの細胞を乾燥から保護するような働きなどで、より安定した状態で大気中に浮遊することが可能になるのではないかという仮説である。

上記実験はサンプル全体(バルク)での分析であり、それぞれの粒子における表面の化学組成などの詳細は把握できておらず、ブラックボックス的な試験でしかない。揮発性の成分以外にも、その粒子ごとの鉱物組成が直接バイオエアロゾルに及ぼす影響、BCの被覆を得た鉱物が付着し、これらの表面がバイオエアロゾルに及ぼす影響など、未解明な部分が多くある。大気中に存在するダストに含まれる長石の鉱物結晶構造の違い、珪藻由来成分が、大気中での氷核形成に影響する可能性が報告されているが(Atkinson et al., 2013)、長石と珪藻の影響だけでなく、長石がBCの被覆を受けることでより効率良く氷核形成に至るなどの可能性も考えられる。BCがこれらの鉱物などにどの様に作用し、どの様に生物由来成分と相互作用を持つかなどについては、より詳細な情報収集、今後のさらなる研究が必要である。

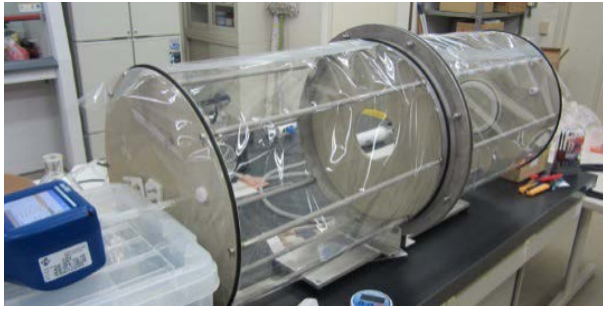


図 4.1. 反応チャンバーによるバクテリアへの活性影響.



図 4.2. 反応後のエアロゾル捕集に使用した Bio Sampler®(SKC).

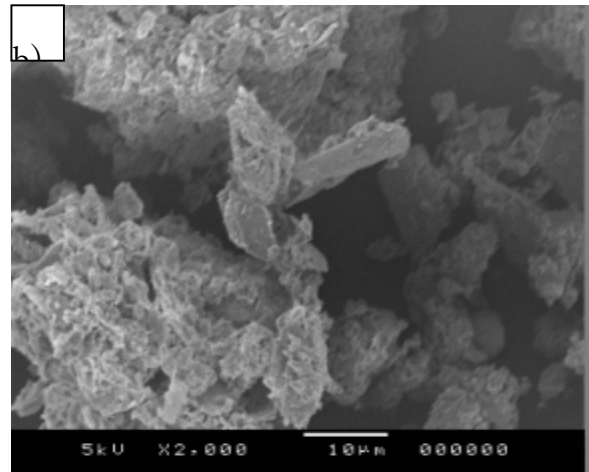
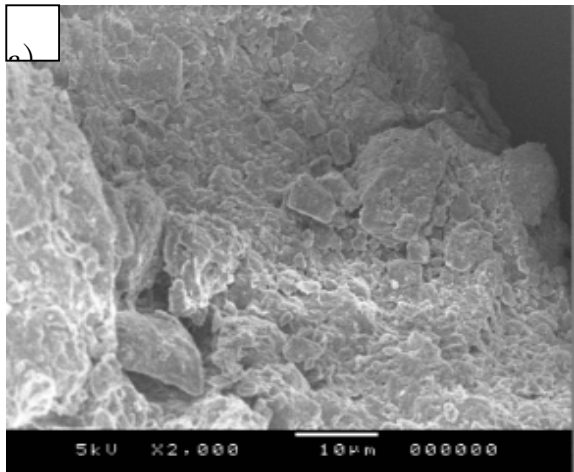


図 4.3. (a)有機物質が約 1.2%のゴビ砂漠由来ダストと(b)有機物質が約 5.6%の石巻由来ヘドロダストの表面組成(電子顕微鏡画像提供:竹花一成氏).

5. ドルノゴビ県サインシャンドの火力発電所から排出される煤の動態

黄砂とは、低気圧の発生などにより、中国大陸内陸部のタクラマカン砂漠や黄土地帯、モンゴルのゴビ砂漠など乾燥・半乾燥地域で数千メートルの上空にまで巻き上げられた鉱物・土壌粒子が偏西風に乗って拡散し東アジア・西太平洋地域を中心に広く拡散あるいは降塵する現象である。一方、砂塵嵐とは、強風によって地面の大量の砂塵が空中に巻き上げられる現象で、空気が非常に濁り、視程が 1 km 以下になる現象であり(環境省, 2005), 1990 年から 2000 年にかけて、モンゴル、内モンゴル、中国北西部においてダストの発生頻度が増加しており、特にモンゴルにおいて非常に多く観測されている。砂塵嵐や黄砂には、自然起源と人為起源のものがあり、今日において、人為起源の粒子が黄砂の粒子に付着し二次粒子となる越境大気汚染が問題になっている。

日本へ飛来する黄砂の粒径は、 $PM_{2.5}$ (第 1 章の説明参照)を含む $1\sim 30\ \mu m$ であり、最も多いのは $4\ \mu m$ であると見られている(Kurosaki et al., 2011)。本研究では、モンゴル南のドルノゴビ県の所在地のサインシャンドの火力発電所周辺の地表面における人工粉塵の分布、標高別の粒径測定から周辺の粒径の分布を明らかにするとともに、地表面の粒子の存在する状態を明らかにすることを目的とする。そのために地面に沈着した土壌粒子の測定を行った。

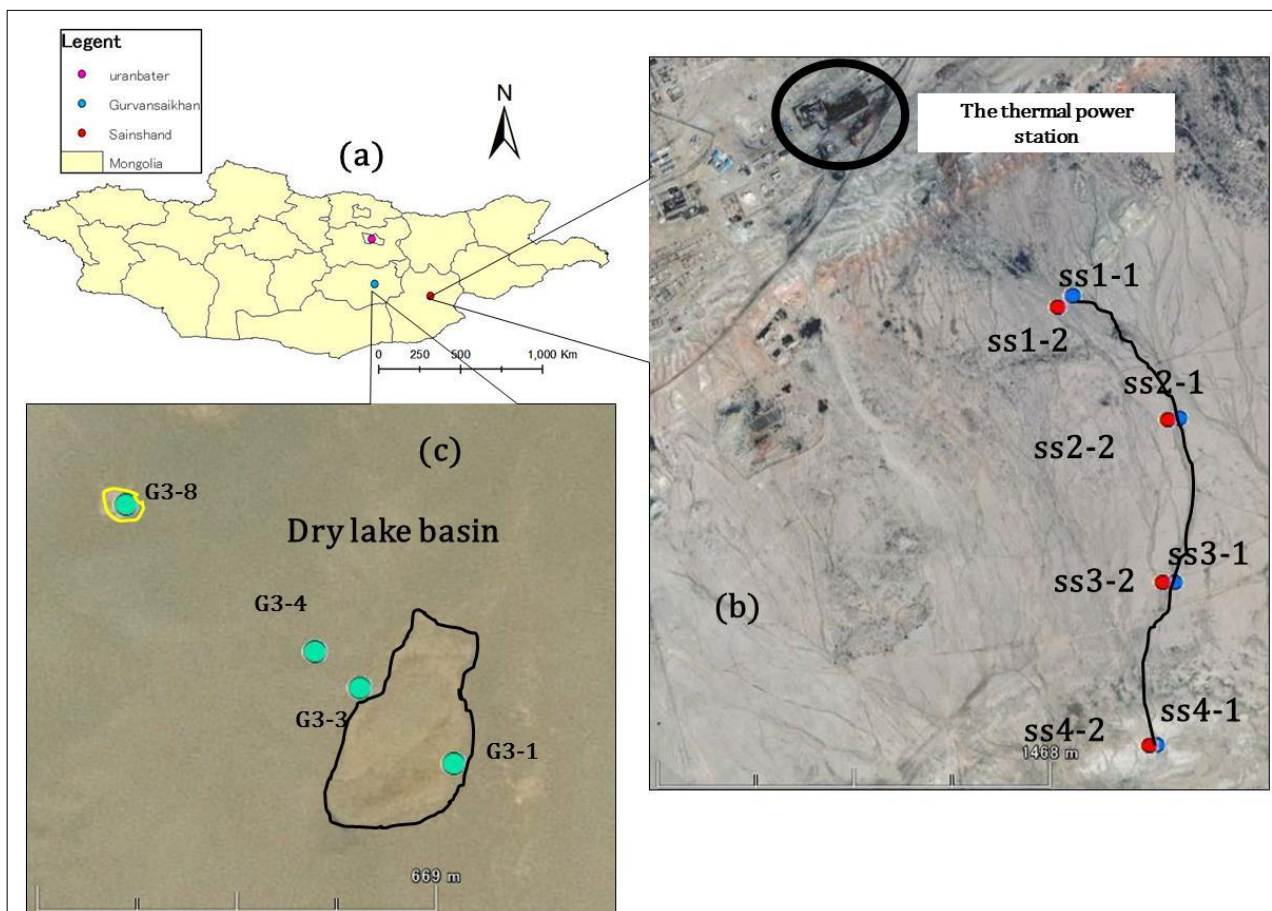


図 5.1. (a)モンゴル国;(b)サインシャンド火力発電所;(c)ドライレイクとサンプリングポイント。

5.1. 研究方法

図 5.1a,b,c で示したように, 現地調査とサンプリング場所はモンゴル国ドルノゴビ県のサインシャンドにある火力発電所及びその周辺とドンドゴビ県のゴルバンサイハンで行った. モンゴル国において, 石炭を用いた火力発電は全発電所の 92.6%を占めている (National Statistics Office of Mongolia, 2011). サインシャンドの火力発電所は, サインシャンドの駅から南へおよそ 3 km の丘の頂上に位置する. 周辺には石炭の燃焼過程で出た黒い砂が地表面に沈着しており(図 5.2 を参照), 人為的影響を受けていると考えられる. また, 丘の頂上からワジ(乾いた河川)が下流域まで形成されている. ゴルバンサイハンでは, ドライレイクとその周辺で調査を行った. ドライレイクとその周辺は, ゴルバンサイハンの村からおよそ 40 km 離れており, 人為的影響が少ないと考えられる(図 5.3). ドライレイクとは, 地理学・地形学的に内陸窪地(プラヤ: Playa)といい, 雨季に浅い湖になるが蒸発すれば湖底なる土地粘土, 塩, 石膏などの沈殿物が残る塩類平原のことである. サインシャンドの火力発電所からおよそ 1 km 離れた地点から, 600 m ごとにワジの内外で調査を行った. ワジ内外に 1 m × 1 m のプロットを設置し, 平均的な表層土壌(0~1 cm)を採取した. また, 人間の影響が及ばないゴルバンサイハンでの調査地においてもドライレイクとその周辺に 1 m × 1 m のプロットを設置し, 平均的な表層土壌(0~1 cm)を採取した. 採取した表層土壌(0~1 cm)のサンプルを 200 μm のふるいにかけ粗大な粒子を除去し, 走査型電子顕微鏡 (KEYENCE, VE-8800) (1), 蛍光顕微鏡 (OLYMPUS BX51) (2) (3)を用いて各サンプルの撮影を行った. 撮影した粒子の写真を, 粒径 $1 \leq D < 5 \mu\text{m}$, $5 \leq D < 10 \mu\text{m}$, $10 \leq D < 20 \mu\text{m}$, $20 \leq D < 30 \mu\text{m}$, $30 \mu\text{m} \leq D$ の5つに分類し, 分類後目視で粒子数を数えた. また, 各サンプルに含まれる黒い粒子の数を数えた.

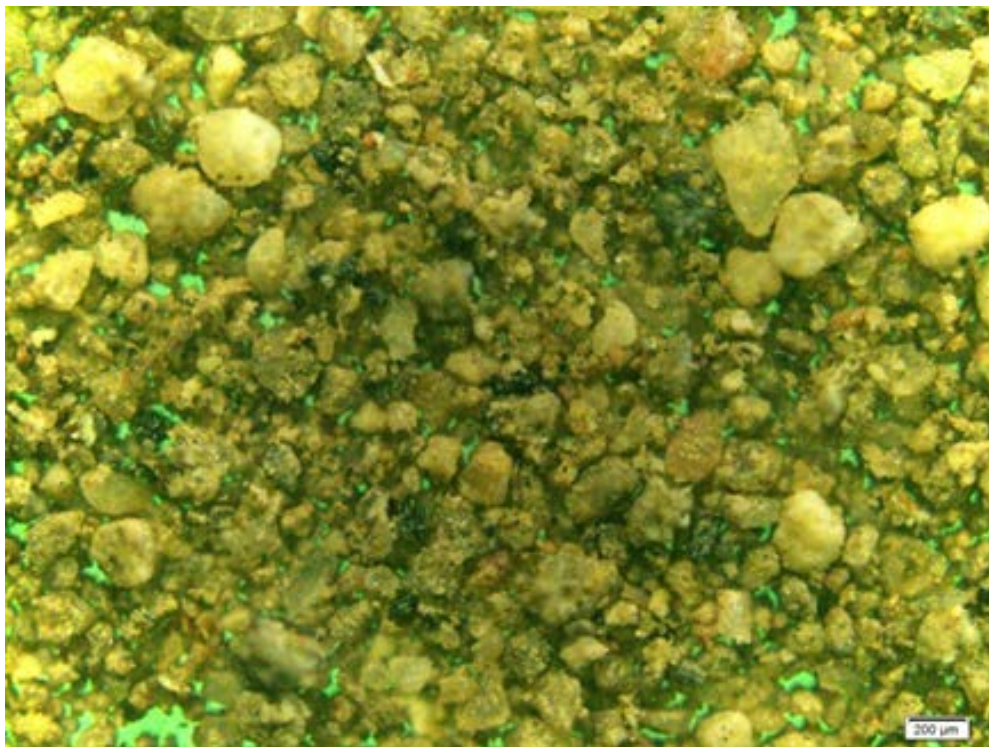


図 5.2. 火力発電所付近の表土粒子の電子顕微鏡写真(黒色の人工粉塵が確認された).

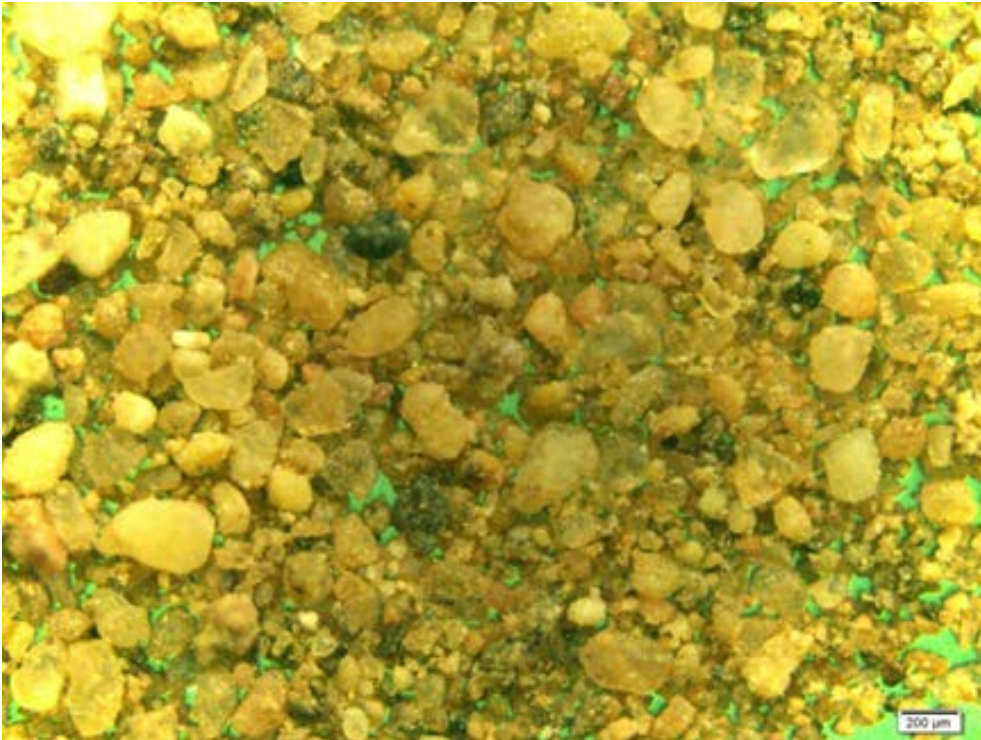


図 5.3. 火力発電所から離れた場所の表土粒子の電子顕微鏡写真(黒色の人工粉塵が確認されなかった).

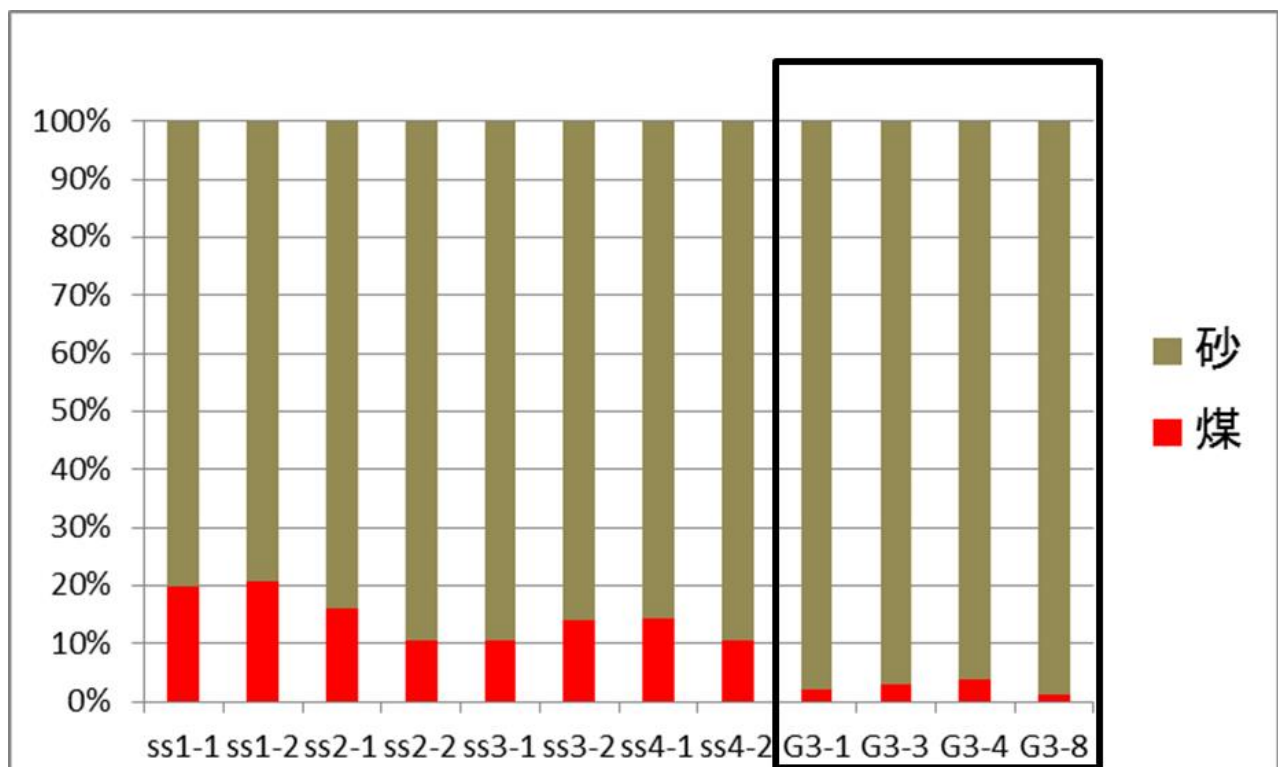


図 5.4. 各サイトにおける黒い砂の割合(天然沙漠ではその割合が少ない).

5.2. 結果および考察

図 5.2 と図 5.3 は各ポイントの表層土壌のサンプルを、蛍光顕微鏡 (OLYMPUS BX51) を用いて撮影したものである。撮影した写真内の黄色い砂と黒い砂の割合を図 5.4, 図 5.5 に示した。サンプル内の黒い砂を測定した結果, すべてのサンプルにおいて黒い砂が観察された。モンゴル国は、鉱物資源の豊富な国であるため、これらの黒い粒子が鉱物の可能性が疑われた。しかし、火力発電所付近の ss1-1 から離れるにつれ、①黒い砂の割合が減少していること②形状が不揃いであることから、黒い砂は燃焼過程で排出される煤、人工粉塵であると考えられる。一方、人為的影響のないゴルバンサイハンのサンプルにも、わずかに黒い粒子が観察された。しかし、①火力発電所周辺の黒い砂の量と比較してもごくわずかであり、②ゴルバンサイハンの調査地は人為的影響が少なことを、③形状が同じであるものが多いため、このサンプル内の黒い砂は鉱物の可能性がある。火力発電所周辺の下流域とドライレイク内において粒径 $1 \leq D < 5 \mu\text{m}$ の粒子が増加している。これは、標高の低い場所、盆地へ細粒土が堆積するためだと考えられる。上流域から下流域、またはドライレイク内において、粒径 $1 \leq D < 5 \mu\text{m}$ が増加する傾向があると述べた。 $5 \mu\text{m}$ の粒子は直径がそれより大きい粒子に付着された状態でダスト発生のホットスポットであるドライレイク内で存在していることが確認されている。

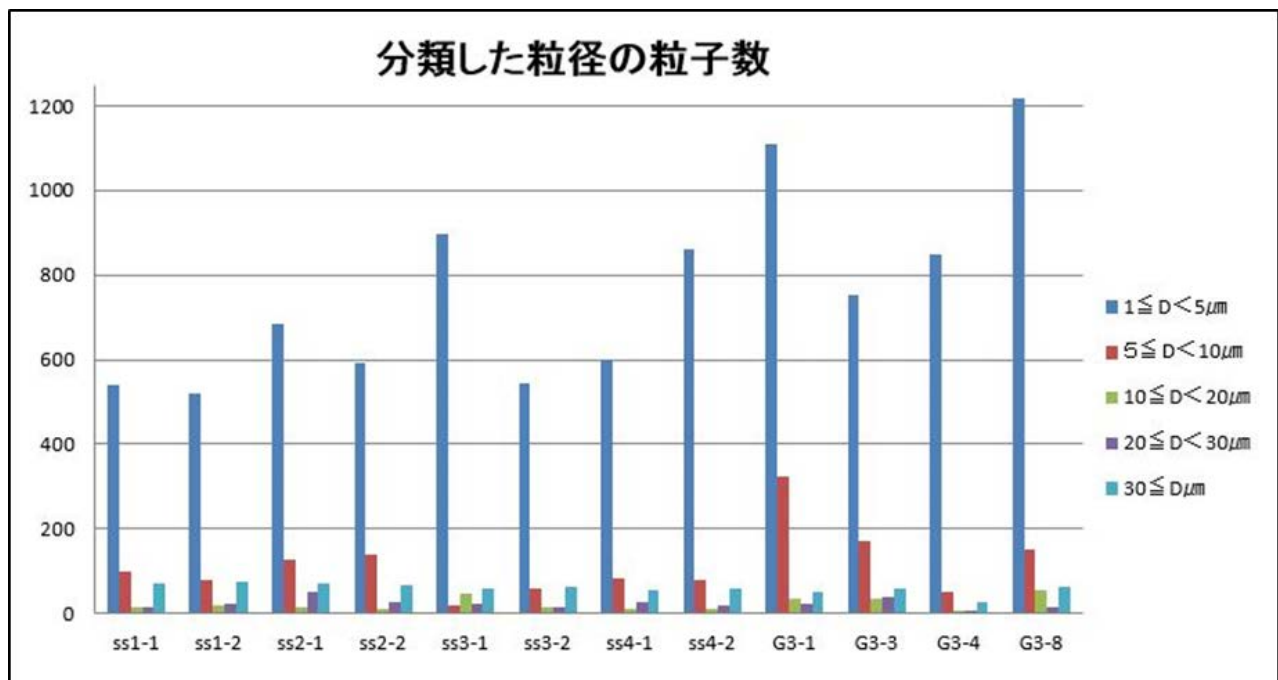


図 5.5. 各サイトにおける土壌粒径の分布(どのサイトでも $5 \mu\text{m}$ 以下の微粒子の数が多い、それより大きい粒子に付着して存在する)。

KEYENCE, VE-8800 を用いて測定・観察した結果、粒径 $1 \leq D < 5 \mu\text{m}$ の粒子が最も多く、次に $5 \leq D < 10 \mu\text{m}$, $D \leq 30 \mu\text{m}$ の粒子であった。図 5.5 から分かるように、最も多く観察された $1 \leq D <$

5 μm の粒子はそれ以上大きな粒子に付着している. 日本に飛来する黄砂の粒径で最も多いのはおよそ 4 μm と報告されている (e.g., Mori et al., 2003).

6. 過去からの EC の地表面沈着量を北海道で復元 ―分析のあれこれ―

6.1. BC, EC の定義と分析法のよもやま話

何を BC (あるいは光吸収性カーボン light absorbing carbon: LAC)と呼び, 何を EC (あるいは難熱分解性カーボン refractory carbon: RC) と呼ぶかについては, 本記事の第 2 章でも Bond and Bergstrom (2006) などから少し触れられており, 更に既に本解説記事でも紹介されている週刊誌ほどの厚さのレビュー (Bond et al., 2013)もあることから「またか」という感じになるかもしれないが, 論文では書けない観点から始めに少し書いておきたい。

兼保 (2012) でも書いたが (といっても高い事典なので筆者自身も買っていないし, あまり読まれた記事とは思えない), BC と EC は違う研究文化の背景を引きずった, 異なる概念である. 端的には, 前者は光 (短波放射) に対する “性質” に, 後者は物質としての “質量” に意識がいった概念で, 前者にとって本質的には質量は意識の外にある. 本稿の読者である気象学会会員はどちらかといえば BC や LAC の言葉を使われる機会が多いであろう. しかし, 放射強制力や大気加熱率の計算で使用される光吸収係数 (m^{-1}) を導く際, その前段階として光吸収性と質量を結びつけた量, 例えば質量吸収断面積 ($\text{m}^2 \text{g}^{-1}$) などが暗黙のうちに使用されている. これらの値を得るためには, どこかで光吸収とは別の手法で質量を測っておかなければならない. つまり, 物質としての実体を気にしていない BC であっても, 発生量 (発生源インベントリ) や, それによる気候影響を計算しようと言ったとたんに, 物質としての EC や RC の概念が入り込むことが避けられない. そして, 物質としての EC や RC の概念は “分析法依存” のものであり, 絶対的なものは存在しない.

近年の論文などには, Single Particle Soot Photometer (SP2) による測定値こそが最も正確な BC の値だと主張するものも散見されるが (これに refractory BC とさらに混乱する名前を付けた人もいる), 測定された単位として質量 (g) あるいは質量濃度 (g m^{-3}) を表示する以上, それは同じ強度の白熱光を生じさせるグラファイトやフラーレンなど標準 (と使用者が考える) 炭素系粒子 “相当” の質量を出しているに過ぎない. つまり, 過去のデータあるいは何らかの標準 (と使用者が考える) 炭素系粒子の質量吸収断面積をもとに, 光吸収係数の測定値から “相当” する質量を算出している従来法と本質的には変わらない.

一方, 大気汚染関係の研究者の間では, EC の方がなじみの言葉であろう. 近年, 国内で使われる EC としての分析手法の大部分は, He など不活性ガス中での熱分離・反射光補正 (Thermal/Optical-Reflectance) 分析法 (TOR-EC) であり, さらに昇温のプロトコルは IMPROVE あるいは IMPROVE-A と呼ばれるものが大部分である. これは, 環境省の $\text{PM}_{2.5}$ 成分分析マニュアルに書いてあるためであるが (<http://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual/manual-4.pdf>), 日本のみのガラパゴス的状況といえそうである. 国外の論文や, 学会に出てみればわかるが, 欧州では NIOSH プロトコルが使われる場合が多く, さらにより理想的な有機物との分離条件を目指した EUSSAR, EUSSAR-II といったプロトコルも提案されている. また, 分析サンプルの状況によっては, サンプルが捕集されたフィルターの表面の状態に大きく影響される (炭化に対する) 反射光補正ではなく, フィルター内部深くまで捕捉された粒子状物質の状況をより反映する透過光補正

(Thermal/Optical-Transmission: TOT)法の方が適当と考えられる場合もあるが、国内では教条的に TOR 法が使用される場合が多い。日本人はマニュアルに弱い。

ところで、不活性ガス中で有機物を熱分解しようとするすると炭化が生じ、それを補正するためにフィルターの光反射率や透過率を使うのだが、比較的早い時期(1980 年代)には、有機物を熱分解で除去するのではなく、有酸素中の雰囲気です比較的低温で加熱することで酸化により除去する手法も用いられていた。これらは Ohta and Okita(1984)や Cachier et al.(1989)などであり、2001 年頃に東大海洋研の植松らにより各地で用いられた EC の自動測定器 R&P5400 も Cachier et al.(1989)の分析法のバリエーション(オリジナルでの 2 時間の加熱時間を 5 分程度と非常に短くし、純酸素中ではなく空気中で加熱)を用いたものである。このタイプの酸化分解・燃焼法はその後用いられることは少なくなったが、分析法として TOR や TOT より本質的に劣っていたためというより、使いやすい分析機が販売された結果、それらが多く用いられてデファクト・スタンダードとなったものと考えられる。

それでは、「お前は何が最良だと思うのか」と問われれば、「他の一つ以上の測定法とお互いにデータ変換できるように比例関係がとれていれば、どれでもよい」というきわめて軽薄な意見である。「我こそは真実である」という神学論争や「業界の主導権を取る!」といった権力抗争に興味はない。

6.2. 居酒屋にて、日本のアイスコア・サンプルを発見

大気中の EC あるいは BC の長期的濃度変化に関する研究例は、豊富とは言えないまでも、20 年程度以前からの測定データはヨーロッパのバックグラウンド観測地点である Mace Head や、北極域での数地点において存在する。一方、大気中からの除去過程である沈着についての観測的研究は降水中の測定例がいくつか存在するものの、大部分のデータは雪氷面アルベドの問題を意識した積雪の中の濃度(g m^{-3})であり、沈着フラックス($\text{g m}^{-2} \text{yr}^{-1}$)としての観点は薄い。よりフラックスに近いデータとしては、ヒマラヤ山脈やチベット高原、パミール山地などでの氷河のアイスコア・サンプル分析例 (e.g., Ming et al., 2008, ほか 7~8 報)がある。これらは、過去の発生量の推定値と比較できる長期レコードであり、非常に興味深い。ただし、これらの氷河は経済発展著しい東アジア域より偏西風帯の風上にあることから、その影響をみるには適しておらず、ヒマラヤ山脈の南側に位置する氷河の場合はインドからの排出の影響を受けている。

一方、化学物質輸送モデル(あるいは大気大循環モデルにオンラインで結合されたエアロゾル発生・輸送・拡散・変質・沈着モデル)による BC や EC の大気中濃度の計算例は非常に多いが(e.g., Textor et al., 2006)、沈着量の計算結果についてはほとんどデータの検証を提示しておらず、それ以前に、ほとんどのモデルでは炭素系粒子の地表面・海面への沈着量の計算結果そのものを発表していない。BC・EC は大気中で生成・消滅しないので、大気中の濃度は発生量と輸送・拡散、沈着量の間のバランスで決まることになるが、「大気中の濃度測定値が見事に再現されました」といったとき、沈着量が調整項になっているかもしれない。そこで、氷河のアイスコア・サンプルに似ているが、まったく別の手法によって、過去からの EC の地表面沈着フラックスの長期レコードを復元

する手法を考えた。それには、現在の環境研究のなかではその呼称を聞く機会が減ってきた “酸性雨” が関わっている。

国内唯一のアイスコア・サンプルは、酸性雨観測によって作られた。何を言っているのか意味不明であると思われるかもしれないが、しばらく我慢して読んでいただきたい。1970 年代半ばより国内で続けられていった酸性雨研究は、1983 年に環境庁(当時)により全国規模の「酸性雨対策調査(第 1 次調査)」として広域展開された。その過程で、(比較的)統一された捕集機材・プロトコルでの測定法の採用が進められ、同調査は第 4 次調査(2000 年度に終了)まで続いた。この第1次調査で降水のサンプラーとして採用されたのが **Filtrating Bulk Deposition Sampler**, 通称 “バルクサンプラー” である。これは現在の国設酸性雨測定所で用いられている **Wet-only Sampler** のように降水時のみフタが開くといったメカは付いておらず、降下してくる物質を乾性沈着と湿性沈着の区別をせずに上に開いた漏斗で集め、その下部に設置された降水採取瓶に、降水に溶けた状態で貯めるという単純な構造である。この漏斗と降水採取瓶の間にフィルターホルダーが挿入されており、メンブラン・フィルターをセットすることにより、降水採取瓶内に土壌粒子などの不溶性物質や木の葉の破片などが混入することを防いでいる。降水採取瓶やメンブラン・フィルターが冬季の低温時に凍結しないようシェルター内が加温されていたり、降雪時に漏斗部分が雪で一杯になってあふれないようヒーターが内蔵されていたりと、細部に違いはあるが、概ね Tamaki et al.(2000)の Fig. 1 に示された形を踏襲しているとみてよい。筆者らが隠岐で使用しているものの写真を図 6.1 に示す。



図 6.1. バルクサンプラー.

さて、この不溶性粒子除去のためのメンブラン・フィルターであるが、主としてバルクサンプラーを運用していた地方自治体附属の環境研究所でのルーチンは、月に一度、降水採取瓶に溜まった

サンプルを回収する際に新しいフィルターに交換し、古いものは廃棄している。もしこのフィルターが残っていれば、過去に沈着した不溶性粒子について研究ができるかもしれない、と頭の隅でずっと思っていたところが、北海道環境科学研究センター（現：北海道立総合研究機構）の野口泉氏（本解説記事の著者の一人）とある夜どこかの居酒屋で呑んでいると、「ウチはバルクサンプラーを今も続けて使っていて、メンブラン・フィルターもずっととってあるよ」と云うではないか。つまり、過去からの不溶性粒子の沈着フラックス・サンプルが明確に「日付入り」で保存されていることになり、これを上に向かって積み重ねていけば、アイスコア・サンプルそっくりになる。ただし、長くても20~30年程度の昔までしか遡れないが、「これはしめた」と思ったのだが、問題となるのは、炭素系粒子を分析するとして、その方法である。

6.3. 分析法をどうする…ないものは自分で考えろ

雪のサンプルからBCを測定したClarke and Noone(1985)などの初期の研究では、雪を溶かしてNuclepore フィルターで濾過し、フィルターの吸光を測定するという手法が多かった。その後、アイスコア・サンプルの分析では溶かした氷を石英繊維フィルターで濾過し、熱・光学分析法に掛ける例が多くなった。さらに近年は、溶かした雪や氷を噴霧してSP2で分析する例が増えている。北海道環境科学研究センターで保存していたのは混合セルロース・エステル(mixed cellulose ester)フィルターであり、有機物そのものの固まりであるフィルターに載ったサンプルをそのまま燃焼分析にかけることはできず、また、採取月によってはかなり土壌粒子が載っているため、フィルターの吸光度を測る方法では土壌粒子による光吸収の干渉が大きい。どうしたものかと考えていたところ、ある夜どこかの居酒屋で呑んでいたときだったか、風呂に浸かっていたときだったか、セルロース・エステル的一种である酢酸セルロース(acetylcellulose, cellulose acetate: 写真フィルムの素材)が有機溶媒に溶けたことを思い出した。今時の学生には、写真フィルムがどのようなものか想像できないかもしれないが、もし、混合セルロース・エステルもそうであれば、いったん有機溶媒に溶かし出したものを石英繊維フィルターなどの耐熱性フィルターに濾過し直して熱・光学分析に供す、すなわち雪・氷からの分析で使われてきた第2世代の方法にもっていけるかもしれない。はたして翌日、有機溶媒にブランク・フィルターを浸けてみたところ、溶けてくれた。

6.4. 気にならない人は何もしないが、私は気になる炭酸塩を徹底除去

こうして分析方針は決まったのだが、それまでの雪・氷サンプルから熱・光学分析を行った論文を読んでいて気になったのは、土壌粒子中の炭酸塩として代表的な物質である炭酸カルシウム(CaCO_3)の扱いである。熱・光学分析法では、どのような昇温プロトコルでも最終的に800~900℃程度の含酸素気流中でサンプルを燃焼させて、出てきた CO_2 （あるいはそれを変換した CH_4 ）をECの主体とする(IMPROVEプロトコルではEC2と呼ぶ)が、このとき土壌粒子中の CaCO_3 由来の炭酸も同時に CO_2 として出てきてしまう。雪やアイスコア・サンプルは少なからず、と言うより季節や年によっては、降下したEC量に匹敵する量の土壌粒子由来 CaCO_3 を含むことは想像に難くない

が、なぜか CaCO_3 のアーティファクトを考慮して分析したと書いてある論文は少なく、せいぜい 0.1N 程度の薄い HCl 数 $10\ \mu\text{L}$ をサンプルに数回滴下した程度でよしとしている (e.g., Wang et al., 2012). 不思議である.

そこで筆者は、まず 2 N の HCl を入れたビーカーにサンプル (土壌粒子+炭素系粒子) の載った混合セルロース・エステル・フィルターを沈め、ヒーターでゆっくり加熱して煮詰め、HCl 水溶液がなくなる直前まで蒸発させて、最終的には室温で完全に乾燥させた. こうすることで HCl 水溶液は共沸により 6N 程度の濃度を保ったまま減っていく. この過程は、石英繊維フィルターに採取したエアロゾル中から金属成分を測定するために、HF や HNO_3 の混酸で煮詰める方法に似ている. いっそ HF も使って土壌粒子を完全に分解すればよいじゃないか、という声も聞こえそうだが、HF は遠い昔の学生時代に扱っていてその厄介さに音を上げたので、その方針はさっさと消えた. さらに、この HCl 処理済みのフィルターをアセトンに溶かした後、巨大な土壌粒子を物理的に取り除くため、目開き $5\ \mu\text{m}$ のプランクトン・ネット (ナイロン製、アセトンに不溶) で濾し、最終的な液相抽出サンプルを得た. ここまで徹底的に CaCO_3 対策をやっておけば文句は少なからう.

この液相抽出サンプルを石英繊維フィルターに再濾過し、熱・光学分析法により TOT-EC (IPMROVE-like プロトコル) として定量を行って、札幌市における約 20 年分の TOT-EC の月間沈着フラックス・レコードを復元することができた. また、期間は限られているが、北海道の北端に位置する利尻島で採取された沈着サンプルも存在し、こちらの分析も行った. なぜ IMPROVE なのかというと、雪やアイスコア・サンプルの第 2 世代の分析は比較的これによるものが多かったため、本測定とのデータと比較して解釈できると考えたためである. また、雪やアイスコア・サンプル分析例では Cachier et al. (1989) の酸素中の酸化分離法によるデータも比較的多いことから (例えば前出の Ming et al., 2008), それらのデータとの比較を考慮して、いくつかのサンプルでは Cachier et al. (1989) の分析法での測定値も同時に取得してある.

6.5. さて、その結果は？

既に何回か気象学会で口頭発表しているが、ここに図を載せると prior publication として引っかかる可能性もあるので、別の誌上で示すことになる予定である. ごく要点を述べると、2000 年代最初期に札幌・利尻ともに非常に大きな TOT-EC 沈着量が記録されたが、2003 年の大規模なシベリア森林火災の際にはさほど大きな沈着はみられていない. また、札幌と利尻の沈着量の差は予想外に小さく、札幌の都市域内で発生したディーゼル車排気や、札幌ではかつて結構使われていた家庭暖房用の石炭燃焼排煙は “その場” ではあまり沈着していない. そんなのあたりまえだろう、という人にはつまらない研究かもしれないが.

7. 北海道内の PM_{2.5} 中 BC 濃度の変動について

主に粒径が 2.5 μ m (1 μ m は 1000 分の 1mm) 以下の微粒子である PM_{2.5} は(第 1 章参照), 呼吸器や循環器系に対し有害性が疑われるとして(第 2 章参照), 2009 年 9 月に環境基準が告示された新しい環境問題の一つである. PM_{2.5} は様々な物質の集合体であるが, その中でも炭素成分は主要な構成成分である. 炭素成分は無機炭素と有機炭素(OC)に大きく分けられ, 無機炭素は元素状炭素(エレメンタルカーボン(EC))と炭酸塩炭素とからなる. EC は黒色粒子であることからブラックカーボンとも呼ばれ, いわゆる「煤」としてよく知られている. EC はディーゼルエンジンの排気ガス, 石炭の燃焼, 森林火災, 薪等のバイオマス燃料の燃焼など, 炭素を主成分とする燃料が燃焼した際に主に発生する. 現在, 北海道内での常時監視による PM_{2.5} の成分測定は, 札幌市が行っている 1 地点のみで, 北海道内の大気中 EC 濃度の状況を知るには測定地点が不足している状況にある. こうした中, 筆者らは PM_{2.5} の長期的な濃度変動傾向や季節的, 地域的な特徴の把握を目的として, 2001 年から道内多地点において同一手法による PM_{2.5} の採取を進めてきた. ここでは, 北海道内で採取している PM_{2.5} と EC の濃度変動と地域特性等について紹介する.



図 7.1. 試料採取地点図.

7.1. 試料採取及び分析

試料採取地点として, 都市部(札幌, 旭川, 室蘭, 釧路)と, 地域的な汚染源の少ない遠隔地(江差, 根室市落石:以下「落石」という)の計 6 地点を選定した(図 7.1). 採取期間は 2007~2015 年度である. 石英繊維ろ紙(PALLFLEX)上に吸引流量 20 または 25L/min の条件で 2 週間または半月の連続採取を行った. 粒子の分級にはインパクタ(東京ダイレック)を用いた.

成分分析は全測定地点の試料が得られた 2009~2013 年度分を対象とした(札幌, 落石は 2014 年度まで). 炭素成分(EC, OC)の分析はカーボンアナライザ(DRI Model 2001)を用いて, Improve プロトコルによる熱分離光学補正法により行った. また, PM_{2.5} の組成状況を把握するため, 水溶性成分(硫酸イオン等 7 成分)の分析もイオンクロマトグラフ法により行った.

7.2. 結果および考察

図 7.2 に地点ごとの PM_{2.5} 濃度経年変化を示す. 各地点の年度平均濃度の変化率は, -0.62 ~ -0.06 μ g/m³/year でいずれの地点もマイナスとなり, 札幌, 旭川, 室蘭, 江差では有意な減少

傾向を示す結果が得られた。6 地点の中で $\text{PM}_{2.5}$ 濃度が高い旭川、室蘭では、いずれも変化率が -0.62 , $-0.50 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{year}$ と他の地点よりも強い減少傾向を示していることから、都市域内発生源の影響が減少傾向にあるものと推測される。

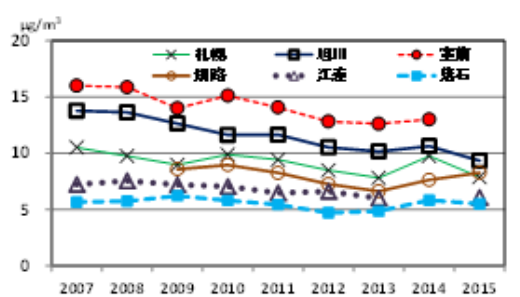


図 7.2. $\text{PM}_{2.5}$ 濃度の変動(年度平均)。

図 7.3 に地点別の $\text{PM}_{2.5}$ 及び含有成分の年平均濃度の変動を、図 7.4 に地点別の各成分含有率の変動を示す。各地点とも硫酸イオン、炭素成分が主要な構成成分であり、両者で 5 割程度を占めている。都市域では炭素成分の含有率が遠隔地よりも高く、EC では遠隔地で数%程度の含有率なのに対し、都市域では 10%を超える地点もみられた。各成分の大気中濃度の年変動傾向を見ると、硫酸イオン、EC は全地点で減少傾向を示したが、それ以外では成分濃度に顕著な変動傾向はみられなかった。EC 濃度の減少幅は遠隔地よりも都市部で大きく、ディーゼル車規制などの効果によるものと推察される(秋山ら, 2015, 2016)。

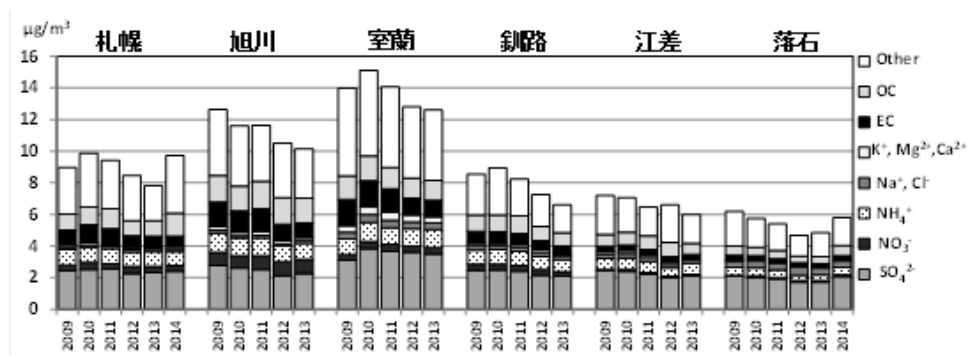


図 7.3. 地点別の $\text{PM}_{2.5}$ 及び含有成分の年平均濃度の変動。

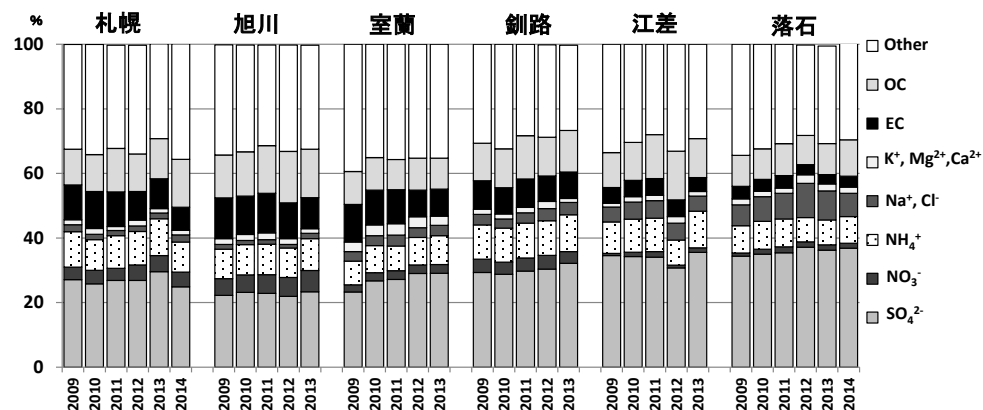


図 7.4. 地点別の各成分含有率の変動。

季節的な EC 濃度の特徴としては、夏に低く、冬に高い傾向を示し、旭川でその傾向が顕著に見られた。旭川においては、冬における燃料使用量の増加と、盆地地形であるため逆転層が生じやすいことが冬の EC 濃度上昇の要因と考えられる。

7.3. おわりに

EC 濃度は遠隔地と比べ都市域の濃度が高く、地域内発生源の影響が大きいことがわかった。また、冬に濃度が上昇することから EC 濃度の削減、ひいては $PM_{2.5}$ 濃度の削減には冬季の対策が重要となる。EC を含め各成分の含有状況から、どの発生源からどの程度の影響を受けているのかを推定することが可能であることから、今後は、各都市の発生源寄与についてさらに検討を進める予定である。

8. 雪の BC とその雪氷変動及び気候への影響

雪とブラックカーボン(BC)というのを思い浮かべらるだろうか？BC と雪が関係しているとはいったいどういうことなのか？そのことが、気候と関連するとはどういうことか？この章では、積雪中の BC の役割と、その雪氷変動や気候へ与える影響について、せつかくの日本気象学会北海道支部の解説記事でもあるので、北海道(札幌)の話も含めて出来るだけわかりやすく説明をしたいと思う。キーワードは、雪の反射率(アルベド)と BC などの積雪不純物の関係である。一般的に、雪のアルベドが下がると太陽光をより吸収するため、雪をより融かしやすくする方向へ働くことにつながる(e.g., Wiscombe and Warren, 1980; Aoki et al., 1999). この雪のアルベドと積雪不純物の関係の説明から始めたいと思う。尚、積雪中 BC の近年の観測的研究や気候モデルを使った研究については、第 1 章で話を出したように、Qian et al. (2015) の総説論文に大変良くまとまっているので、この章の内容に興味を持たれた方は是非参照して頂ければ幸いである。

8.1. 雪のアルベドと太陽光吸収性エアロゾル

雪自身が時間を経て劣化する(古くなる)ことで雪のアルベドは下がるが(英語では, snow aging effect, 日本語では, 「積雪のエージング効果」と言う: 青木, 2009, の新用語解説を参照), その影響は雪の粒径に依存し, 特に近赤外域で顕著であることが知られている(e.g., Wiscombe and Warren, 1980; Aoki et al., 1999; 図 8.1). 大気中にある大気汚染微粒子(エアロゾル)の中には太陽の光を吸収する性質があるものがあり, これらは Light-Absorbing Aerosol (LAA) もしくは Light-Absorbing Particles (LAP) と呼ばれ, 砂漠の砂である鉱物粒子(ダスト)や上記 BC などがこれらに該当する(e.g., Qian et al., 2015). この LAA が雪に落ち, 雪が汚れて黒ずむことで, 特に可視域のアルベドが低下することがこれまでの研究からわかっている(e.g., Qian et al., 2015, and references therein). Warren and Wiscombe (1980) はその雪のアルベドと積雪不純物のパイオニア的論文の一つである。図 8.1 を見ていただくとわかるが, ダストと BC では可視域のアルベドの下がり方で形が異なる。BC は可視域で比較的なだらかなカーブをしているが, ダストは紫外域に近いほど, アルベドの下がり方が大きくなる。これは, ダストと BC の質量吸収係数の特徴が異なるからである(e.g., 青木と田中, 2008, and references therein). ダストの濃度が極端に大きくなるとそのアルベドの下がり方の形は, より強調される(図 8.1b)。また, BC は硫酸塩に被覆(sulfate-coated)されることで(親水性 BC となる), 質量吸収係数が増加するため(e.g., Flanner et al., 2007), 同じ量の BC 濃度であっても BC そのものよりも可視域のアルベドがより下がる(図 8.1a)。図 8.1 の雪の BC 濃度 200 ppbw とダスト濃度 4 ppmw は, Kuchiki et al. (2015) の図 11a に示された札幌の 2007-2012 年の表面雪観測データの中央値を参考に, 札幌に近い濃度を設定したものである。図 8.1 より, 雪の物理的状態, LAA の濃度や, BC の被覆の状態などによっても雪のアルベドは大きく変わることがわかる。では何故, この積雪アルベドが減少することが大事かと言うと, 青木と田中(2008)の図 2 に示されるように, 積雪不純物による可視光のアルベド低下が起こると, 雪が吸収する日射量が増え, それにより雪の劣化(結晶の粗大化)が起こり, 近赤外のアルベドが低下し, そのことで, 更に日射量の吸収増加

やアルベド低下を招くという循環(雪の正のアルベドフィードバック)が働くからである。

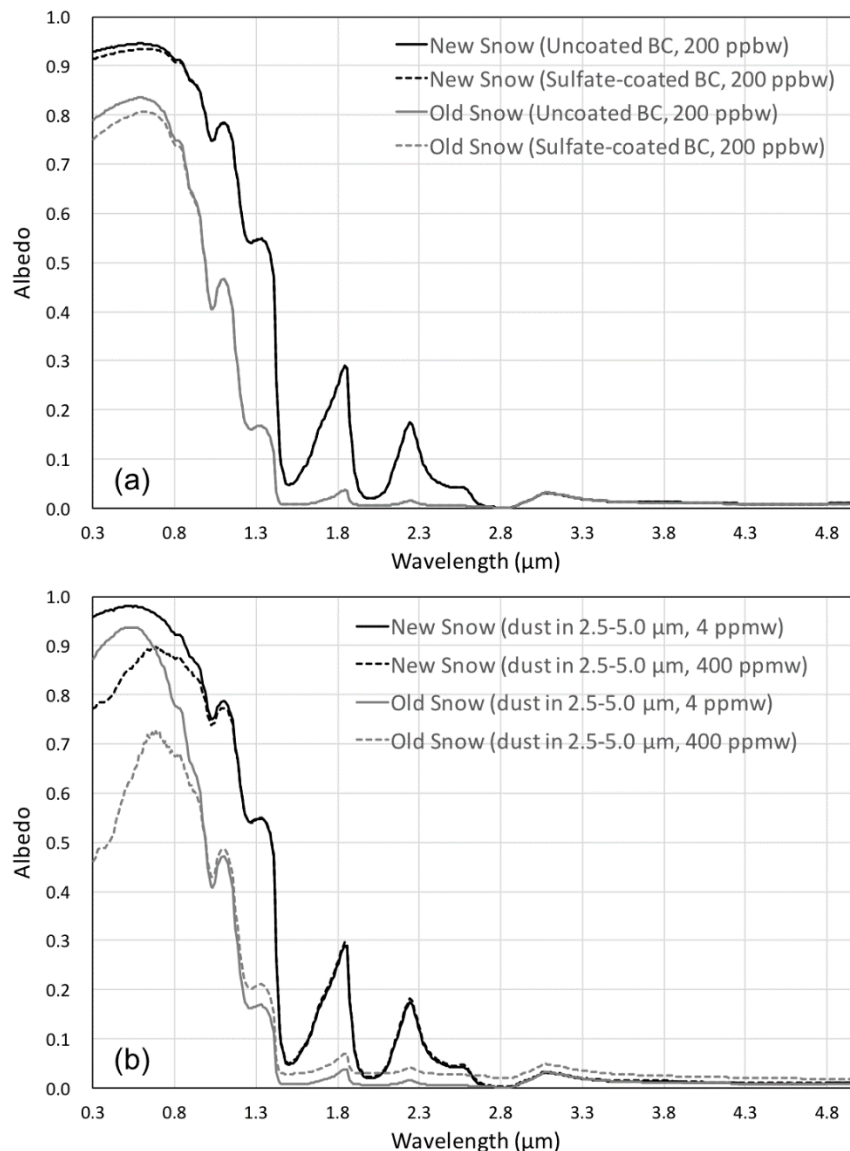


図 8.1. SNICAR-Online (<http://snow.engin.umich.edu/>; Flanner et al, 2007) で計算された中緯度冬季快晴条件かつ太陽天頂角 60 度の時の可視から近赤外域の波長ごとの雪のアルベド (0.305-4.995 μm の範囲); (a) BC を含む雪のアルベド (そのまの BC と硫酸塩で被覆された BC の二種類を仮定; 200 ppbw の濃度を仮定); (b) ダストを含んだ雪のアルベド (2.5-5.0 μm のサイズのダスト粒子が 4 ppmw と 400 ppmw で雪に含まれた場合を仮定); 新雪 (New Snow; 積雪密度 200 kg m⁻³ と仮定) と時間経過した古い雪 (Old Snow; 積雪密度 450 kg m⁻³ と仮定) は有効積雪粒子径が 100 μm と 1000 μm で定義。

8.2. 札幌の雪と積雪不純物

札幌では、雪の中の LAA に関する観測的研究は、著者の安成が北海道大学(北大)の大学院生であった 2003 年から、気象研究所のグループと北海道大学低温科学研究所の共同研究によって北大内で活発に研究が行われ始めた(e.g., Aoki et al., 2006, 2011; Kuchiki et al., 2015). 北大で

の積雪不純物の観測項目としては、熱光学的に測定された黒色炭素 (Elemental Carbon: EC) と有機炭素 (Organic Carbon: OC), 重量濃度から EC と OC の濃度を引いた鉱物粒子の濃度を算出しており, おおまかには冬季に一番濃度が低く, 春先にかけて濃度が上昇する傾向にある (Aoki et al., 2011; Kuchiki et al., 2015). 札幌では大雑把には, EC と OC の濃度は (OC の方が EC より高い) は主に 10-1000 ppbw の範囲で (OC は 10000 ppbw まで), ダストは 0.1 から数百 ppmw (1 ppmw = 1000 ppbw) である (Kuchiki et al., 2015). 気象研究所や NASA Goddard Space Flight Center の全球 (気候) モデルに組み込まれた陸面モデルの雪中 LAA と積雪アルベドの関係の計算性能は, この札幌の観測データを使ってこれまで良く検証がされている (Niwano et al., 2012; Yasunari et al., 2011, 2014). Yasunari et al. (2014) は, 気象条件が変化しないと仮定した場合に, 札幌の大気から BC をすべて取り除くと (大気が綺麗になったと仮定), 4 日ほど積雪期間が延びるという結果を陸面モデルの感度数値実験から報告している. また, Niwano et al. (2012) と Yasunari et al. (2014) では, 2007-2008 年の同じ札幌において, 積雪不純物の効果を異なる陸面モデル用の積雪モデルを使って議論した数少ない比較可能なケースとなっている. Niwano et al. (2012) では, 札幌ではダストと BC の二種の積雪不純物の存在で 19 日積雪期間が短くなると算出しており, Yasunari et al. (2014) では, ダスト・BC・OC の三種の存在効果で 7 日間積雪期間が短くなると見積もっている (彼らのダスト・BC の沈着量補正を行った Exp 2 のケースと積雪不純物なしの Exp 0 のケースの比較; 彼らの表 3 参照). これらの研究では, 結果にバラツキがあるものの, 札幌の積雪不純物の状態では, 積雪不純物の効果によって 1 週間から 3 週間弱の積雪期間を変える能力があるだろうということは示唆される.

8.3. 気候モデルと雪の BC

気候モデルでは, IPCC の第4次報告書 (IPCC, 2007) に使用された Hansen and Nazarenko (2004) 及び Hansen et al. (2005) による NASA/GISS の気候モデルを使った研究以降, 雪の BC の気候への影響が気候モデルを使用して活発に議論されるようになってきた (e.g., Flanner et al., 2007; 青木と田中, 2008; Yasunari et al., 2015). Qian et al. (2015) によれば, 2015 年の論文出版時には (論文の出版を考えると 2014 年当時の状況では), 世界各国で開発されている気候モデルのうち 9 の研究機関 (NASA Goddard Space Flight Center, NASA/GSFC, と NASA Goddard Institute for Space Studies, NASA/GISS, は分けている) のモデルで雪の中の BC による積雪アルベドへの効果が考慮されているとの報告がある (彼らの表 1 参照). Yasunari et al. (2015) では, 雪に人為起源・自然起源を含めた LAA が存在していること自体の北半球春季の気候への影響について NASA の全球モデル GEOS-5 を用いて積雪不純物汚染 (snow-darkening) 感度数値実験を行っている (NASA 作成の動画: <https://goo.gl/hzbxVK>). 彼らの報告によれば, 雪の中に BC・ダスト等の LAA が存在していることが, 春季東アジアの水循環を活発化し (夏季は更にヒマラヤ周辺域ではこの積雪汚染効果が存在していることで降水量が増加する), ヨーロッパから中央アジア (特に中央アジア) では, 乾燥状態を強化する役割があると結論づけている. つまり, BC を含む LAA は, 大気中でも気候に影響

響を与え (IPCC, 2007, 2013), 雪の中にあっても気候に影響を与えることが (e.g., Flanner et al., 2007; 青木と田中, 2008; Yasunari et al., 2015), これまでの研究からわかってきている. また, Yasunari et al. (2015) の図 2 を見ると, 北半球のダスト・BC・OC の可視域での吸収への寄与が相対的に高い地域がわかる (ダスト: 中央アジアからタクラマカン・ゴビ砂漠周辺・北極圏; BC: ヨーロッパ・東アジア・北米・カナダの一部; OC: 北東中国からシベリア・カナダの一部).

しかしながら, 気候モデルでの雪中 BC など LAA の影響の見積もりには不確定な要素が未だ多い. その大きな不確定要素の一つが, 例えば雪の中に液体の水 (融解水・降水) が存在した際に, どれくらい雪から流されるかということがはっきりとはわかっていないということがあげられる (Qian et al., 2015). Qian et al. (2015) では, その流出 (除去) 効率効果の考慮の有無, 効果の大小によって (Qian et al., 2014 の結果), 気候モデル間で雪の中の BC 濃度が大きく変わることが議論された (Qian et al., 2015, の図 2 を参照: 中緯度の地域によってはモデル間や同じモデルでも流される効果の設定で雪中 BC 濃度の 1 桁変わるほどの差があり得る). この Qian et al. (2015) の図 2 に示されるような, 1 桁異なる雪の BC 濃度の差がどれくらい雪のアルベドに影響が大きいものか少し議論してみたい. ここでは, 彼らの図 2c と 2d で, Qian et al. (2014) で計算されたバイカル湖の西の地域における雪の中の BC が液体水で効率良く流された場合と (黄色の地域; 50-100 ppbw), 流す効率が悪い場合 (オレンジ色の地域; 200-500 ppbw) に注目してみる. Qian et al. (2015) の論文の図によれば, この地域では, 50-500 ppbw と最大で一桁程度の BC 質量濃度の差があり得るということであるが, その場合, 春の時期の雪の状況を仮定して波長別アルベドを図 8.1 使用した SNICAR-Online (Flanner et al., 2007; <http://snow.engin.umich.edu>) で計算すると図 8.2 のようになる. 図のキャプションに述べたように広域バンドでのアルベドでも 0.1-0.12 以上アルベドが異なり (Uncoated BC よりも更に Sulfate-coated BC の方が差が大きくなる), 図 8.2 の可視域の特定の波長に注目すれば, 例えば, 被覆なしの BC の場合, 405 nm の波長では 0.17, 硫酸塩の被覆ありの BC の場合, 375 nm では 0.20 以上のアルベドの差がこの 1 桁の BC 濃度の差から起こりうる. これは, この流出効率の不確定要素だけで, 同じ日射量があった時に, 雪の太陽光の吸収効果が広域アルベドで 10% 以上 (特定の波長なら 17-20% も) 地域によって変わりうるというとても大きな不確定性の存在を示している. このように, 流出 (除去) 効率だけみても, 気候モデルで雪の BC 濃度の計算からアルベドの 10% 以上の誤差 (不確定性) が生まれる可能性があるのが気候モデルにおける現状である. Flanner et al. (2007) や Yasunari et al. (2014) などの気候モデル用の積雪 BC 計算において, Conway et al. (1996) を元にした限られた dust や BC の液体水による流出効果の議論を元に流出効率を考慮しているが, 残念なことに, まだ信頼できるほど多くの雪の中の太陽光吸収性エアロゾルの液体水による流出効率はない. 最近, 米国ニューハンプシャー州における鉛直方向の日雪サンプリングと BC 分析から BC の流出効率を詳細に議論するような研究がようやく出てきたという状況で, この研究では, 24% の積雪水量の減少で最大 62% と大きな BC ロスが見られたと報告している (Lazarcik et al., 2017). 今後, 様々な地域において, このような積雪層内の液体水による不純物流出効果の研究が活発に行われれば, 気候モデルを使った積雪不純物の計算におけるこの大き

な不確定性の一つを減らすことが可能になると考えられる. IPCC の第 4 次 (IPCC, 2007), 第 5 次報告書 (IPCC, 2013) に取り上げられるほど雪の BC は気候影響を議論する上でも大事な要素の一つであるにも関わらず, 残念ながら上記の例で説明したように, 積雪内での積雪不純物の挙動一つとっても不確実性がまだ非常に高いのが現状である.

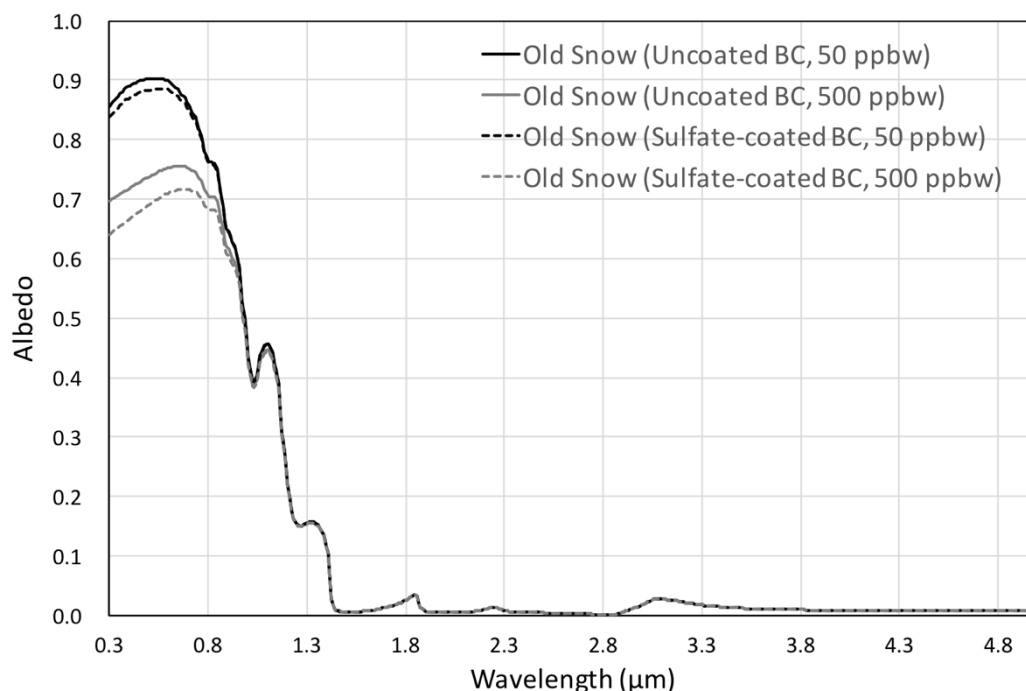


図 8.2. SNICAR-Online (<http://snow.engin.umich.edu/>; Flanner et al, 2007) で計算された融雪期を仮定した積雪における中緯度冬季曇天条件の可視から近赤外域の波長ごとの雪のアルベド (0.305-4.995 μm の範囲) と異なる BC の被覆 (被覆なし: Uncoated BC; 硫酸塩被覆: Sulfate-coated BC) 及び異なる BC 濃度. 被覆なし (Uncoated BC), 硫酸塩被覆 (Sulfate-coated BC) で BC 濃度を 50 ppbw から 500 ppbw に変更してこの図の条件で上記オンライン計算を行うと, 広域バンドでの雪のアルベドはそれぞれ 0.740 から 0.635, 0.729 から 0.603 (小数点第4位を四捨五入) と変化する. これらの計算では, 積雪密度は 350 kg m^{-3} , 積雪有効粒径は $1000 \mu\text{m}$ に設定した.

8.4. 今後の展望

今後の地球温暖化がほぼ確実である中 (IPCC, 2013), 雪への BC やその他 LAA の気候への将来的影響をより確かに議論すること (気候モデルの積雪不純物のプロセスの一つをとっても 10%以上の誤差が起こり得る状況が十分と言えるだろうか?), また気候や健康影響も踏まえて LAA の大気中への発生・越境輸送が今後どうなるかを踏まえた適応策が必要となってくる. 雪の中の LAA の観測的プロセス研究が増えないことには上述のモデルの不確実な部分の改善は行えない. また, 大気側の対策 (越境大気汚染を含む) を考えるためには, 個々の地域へ輸送される BC 等 LAA の起源がはっきりわからなければ難しい. 最新の研究では, ヒマラヤの氷河では, 化石燃料とバイオマス燃焼による BC の貢献がおおよそ半々であることが炭素の同位体比を使った研究で明らかになっており (Li et al., 2016), こういった手法も今後起源分別のために有効であろう. また, 今回は BC の話が中心であったので割愛しているが, 積雪や氷河・氷床のアルベドへの影響を議論する際には,

雪氷生物活動やダストと雪氷生物活動から形成されるクリオコナイトによるアルベドへの影響も大事であることわかってきており(e.g., Takeuchi et al., 2001; 大沼, 2016; Cook et al., 2016, 2017), グリーンランド氷床でその影響が議論されていることから(e.g., Lutz et al., 2014; 大沼, 2016; 島田ら, 2016), そろそろしっかりとしたプロセスモデルとして気候モデルにおいても LAA と合わせて取り入れなければいけない時期になってきている. いずれにしても, 雪の中の BC を含んだ LAA (積雪不純物) と気候の研究は, まだまだわからないことだらけの状態であると言って良いだろう.

9. まとめ

この解説記事は、2016 年 11 月 25 日に札幌市内で行われた「第4回大気エアロゾルシンポジウム－ブラックカーボン－」(<https://goo.gl/md4Mtk>)の講演予稿集を加筆・修正をした内容もしくは新たに書き下ろしてもらった講演に関連した BC の内容について講演者らで再度まとめたものである。読んでいただければわかるかと思うが、BC と言っても非常にローカルなことからグローバルな話までつながっている。また内容も第 1 章、第 2 章にまとめられたように気候から健康影響まで様々である。BC 研究の面白さの一つはこのような多岐分野に亘って直接・間接的に BC の影響が及ぶ部分ではないかと思う。BC は二酸化炭素とメタンの温室効果の次に大気を暖める効果が高く(IPCC, 2013), 気候的観点から今後も目が離せない。そんな中、BC にも関わる環境省の最新の推進費のプロジェクト「SLCP (Short-Lived Climate Pollutants: 短期寿命気候汚染物質)の環境影響評価と削減パスの探索による気候変動対策の推進(環境省環境研究総合推進費戦略的研究開発領域課題(S-12))」(<http://157.82.240.167/~S12/moej-s12/index.html>)が現在行われている。この S-12 の第3回公開シンポジウム「地球温暖化と大気汚染による影響の軽減に向けた新たな取り組み－短期寿命汚染物質(SLCP)の影響評価とその削減対策－」が2017年1月17日に東京大学で行われた(http://157.82.240.167/~S12/moej-s12/20170117_S-12.pdf)。このシンポジウムの講演の中で、研究代表者でもある宇宙航空研究開発機構(JAXA)・地球観測研究センター(EORC)の中島映至センター長は、国連環境計画(UNEP)のBCや対流圏オゾンなどの報告書(2011年)などを話に出して、SLCP(BC, 対流圏オゾン, メタンなど)自体を削減することで将来的には0.5℃ほどの冷却が可能となり2℃目標が達成できるとして、日本を含む世界51ヶ国が削減のために活動をおこなっていることを説明した(中島, 2017)。中島センター長の話の中で特に興味深かったのが、このS-12のプロジェクトの研究を進めていくうちに最近、上記の説明とは逆に、BCを削減しても実は期待するほどの冷却効果がBC自体の削減からは得られなさそうだとわかってきた、という話であった(中島, 2017)。これは、シンポジウムで同じく講演をされた東京大学の鈴木健太郎准教授の話によると、BCの大気上層での加熱から大気の安定化が起こり、その結果、高層の雲が減り、低層の雲が増える日傘冷却効果により、BC自体の加熱効果をBC自身が雲の生成(水循環)を通して関与することで正味の加熱効果を弱めている可能性があるということであった(鈴木, 2017)。この事実は大変驚きであった。本解説記事においても、非常にローカルなモンゴルの話から、北海道のPM_{2.5}に関わる話や分析に関連したよもやま話まで様々なBCの内容がまとまっており、中には他ではあまり聞かない話も含まれている。この解説記事を読んでいただき、BCに関わる研究トピックの広さ、そして気候から健康影響まで関連するという面白い研究対象物質であるということが少しでも読者の皆さんに伝わったならば幸いである。今後のBCに関連した国内外の研究にも是非注目していただきたい。

謝辞

本解説記事は、「第4回大気エアロゾルシンポジウム-ブラックカーボン-」の講演予稿集を著作権が個々の著者に帰属することを確認した上で、著者らによって必要に応じて加筆・修正、もしくは新たに書き下ろしを行った上で、再構成を行ってまとめ、解説記事としたものである。尚、各担当著者は本解説記事でも著者となってもらうことで著作権の問題がないようにした。

第3章の内容に関わる研究は、JSPS 科研費 25340022 および 15K00529 の助成を受けて行われた。また、第3章の調査に際して協力いただいた北海道大学の天塩および雨龍研究林、国立環境研究所、弟子屈町などの各機関に感謝いたします。第4章の内容に関わる研究は、JSPS 科研費 24651028 および 15K00568 の助成を受けて行われた。第7章の研究の一部は国立環境研究所委託事業として行われた。第8章は、大気エアロゾルシンポジウムの講演要旨の段階で青木輝夫教授(岡山大学)に読んでいただいた。

参考文献

- 秋山雅行, 大塚英幸, 芥川智子 (2015), 北海道における PM2.5 の組成の特徴について, *環境科学研究所報告*, 5, 47-56.
- 秋山雅行, 大塚英幸, 芥川智子 (2016), 北海道における PM2.5 成分組成の地域特性について, *第57回大気環境学会年会講演要旨集*, 470.
- 青木輝夫 (2009), 積雪のエージング効果, *天気*, 56(6), 73-74.
- 青木輝夫, 田中泰宙 (2008), 1. 大気エアロゾルの沈着が積雪アルベドに与える影響, *天気*, 55(7), 538-547.
- Aoki, T., T. Aoki, M. Fukabori, and A. Uchiyama (1999), Numerical simulation of the atmospheric effects on snow albedo with a multiple scattering radiative transfer model for the atmosphere-snow system, *J. Meteorolo. Soc. Jpn.*, 77(2), 595-614.
- Aoki, T., H. Motoyoshi, Y. Kodama, T. J. Yasunari, K. Sugiura, and H. Kobayashi (2006), Atmospheric aerosol deposition on snow surfaces and its effect on albedo, *SOLA*, 2, 13-16, doi:10.2151/sola.2006-004.
- Aoki, T., K. Kuchiki, M. Niwano, Y. Kodama, M. Hosaka, and T. Tanaka (2011), Physically based snow albedo model for calculating broadband albedos and the solar heating profile in snowpack for general circulation models, *J. Geophys. Res.*, 116, D11114, doi:10.1029/2010JD015507.
- Atkinson, J. D., B. J. Murray, M. T. Woodhouse, T. F. Whale, K. J. Baustian, K. S. Carslaw, S. Dobbie, D. O'Sullivan, and T. L. Malkin, (2013), The importance of feldspar for ice nucleation by mineral dust in mixed-phase clouds, *Nature*, 498, 355-358, doi:10.1038/nature12278.
- Bond, T. C., and R. W. Bergstrom (2006), Light absorption by carbonaceous particles: An investigative review, *Aerosol Sci. Technol.*, 40(1), 27-67, doi:10.1080/02786820500421521.
- Bond, T. C., D. G. Streets, K. F. Yarber, S. M. Nelson, J.-H. Woo, and Z. Klimont (2004), A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion, *J. Geophys. Res.*, 109, D14203, doi:10.1029/2003JD003697.
- Bond, T. C., E. Bhardwaj, R. Dong, R. Jogani, S. Jung, C. Roden, D. G. Streets, and N. M. Trautmann (2007), Historical emissions of black and organic carbon aerosol from energy-related combustion, 1850–2000, *Global Biogeochem. Cycles*, 21, GB2018, doi:10.1029/2006GB002840.
- Bond, T. C., et al. (2013), Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 5380–5552, doi:10.1002/jgrd.50171.
- Burnett, R. T. et al. (2014), An integrated risk function for estimating the Global Burden of Disease attributable to ambient fine particulate matter exposure, *Environ. Health Perspect.*, 122, 397–403, doi:10.1289/ehp.1307049.
- Cachier, H., M. P. Bremond, and P. Buat-Menard (1989), Determination of atmospheric soot carbon with a simple thermal method, *Tellus B*, 41(3), 379-390, doi: 10.1111/j.1600-0889.1989.tb00316.x.

- Clarke, A. D., and K. J. Noone (1985), Soot in the Arctic snowpack - A cause for perturbation in radiative transfer, *Atmos. Environ.*, 19(12), 2045-2053, doi: 10.1016/0004-6981(85)90113-1.
- Conway, H., A. Gades, and C. F. Raymond (1996), Albedo of dirty snow during conditions of melt, *Water Resour. Res.*, 32(6), 1713–1718, doi:10.1029/96WR00712.
- Cook, J., A. Edwards, N. Takeuchi, and R. Irvine-Fynn (2016), Cryoconite: The dark biological secret of the cryosphere, *Prog. Phys. Geogr.*, 40(1), 66-111, doi: 10.1177/0309133315616574.
- Cook, J. M., A. J. Hodson, A. J. Taggart, S. H. Mernild, and M. Tranter (2017), A predictive model for the spectral “bioalbedo” of snow, *J. Geophys. Res. Earth Surf.*, 122, doi:10.1002/2016JF003932.
- Griffin, D. W., C. A. Kellogg, V. H. Garrison, J. T. Lisle, T. C. Borden, and E. A. Shinn (2003), Atmospheric microbiology in the northern Caribbean during African dust events, *Aerobiologia*, 19 (3), 143–157, doi:10.1023/B:AERO.0000006530.32845.8d.
- Flanner, M. G., C. S. Zender, J. T. Randerson, and P. J. Rasch (2007), Present-day climate forcing and response from black carbon in snow, *J. Geophys. Res.*, 112, D11202, doi:10.1029/2006JD008003.
- Hansen, J., and L. Nazarenko (2004), Soot climate forcing via snow and ice albedos, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 101(2), 423–428, doi: 10.1073/pnas.2237157100.
- Hansen, J., et al. (2005), Efficacy of climate forcings, *J. Geophys. Res.*, 110, D18104, doi:10.1029/2005JD005776.
- IPCC (1996), Climate Change 1995: The Science of Climate Change, Contribution of Working Group I to the Second Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Edited by Houghton, J. T., L. G. Meira Filho, B. A. Callander, N. Harris, A. Kattenberg, and K. Maskell, Cambridge, Cambridge University Press, 572 pp. (available at: https://www.ipcc.ch/ipccreports/sar/wg_I/ipcc_sar_wg_I_full_report.pdf)
- IPCC (2007), Climate Change 2007: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.)], Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 996 pp.
- IPCC (2013), Climate Change 2013: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P. M. Midgley (eds.)], Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp.
- Iwasaka, Y., G.-Y. Shi, M. Yamada, F. Kobayashi, M. Kakikawa, T. Maki, T. Naganuma, B. Chen, Y. Tobo, and C. S. Hong (2009), Mixture of Kosa (Asian dust) and bioaerosols detected in the atmosphere over the Kosa particles source regions with balloon-borne measurements: possibility

- of long-range transport, *Air Qual. Atmos. Health*, 2(1) 29-38, 2009, doi:10.1007/s11869-009-0031-5.
- Janssen, N. A. H., M. E. Gerlofs-Nijland, T. Lanki, R. O. Salonen, F. Cassee, G. Hoek, P. Fischer, B. Brunekreef, M. Krzyzanowski (2012), Health effects of black carbon, edited by R. Bohr, WHO, WHO Regional Office for Europe, DK-2100 Copenhagen Ø, Denmark, pp.96 (available at: http://www.euro.who.int/_data/assets/pdf_file/0004/162535/e96541.pdf).
- 兼保直樹(執筆分担)(2012),「ブラックカーボン」, *地球と宇宙の化学事典*, 193-194, 朝倉書店.
- 環境省(2005), 2.1. 黄砂の分類と定義, *黄砂問題検討会報告書 2015* (available at: <http://www.env.go.jp/air/dss/report/02/index.html>).
- Kuchiki, K., T. Aoki, M. Niwano, S. Matoba, Y. Kodama, and K. Adachi (2015), Elemental carbon, organic carbon, and dust concentrations in snow measured with thermal optical and gravimetric methods: Variations during the 2007–2013 winters at Sapporo, Japan, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 868–882, doi:10.1002/2014JD022144.
- Kurosaki, Y., M. Shinoda, and M. Mikami (2011), What caused a recent increase in dust outbreaks over East Asia?, *Geophys. Res. Lett.*, 38, L11702, doi:10.1029/2011GL047494.
- Lazarcik, J., J. E. Dibb, A. C. Adolph, J. M. Amante, C. P. Wake, E. Scheuer, M. M. Mineau, and M. R. Albert (2017), Major fraction of black carbon is flushed from the melting New Hampshire snowpack nearly as quickly as soluble impurities, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 122, 537–553, doi:10.1002/2016JD025351.
- Li, C., C. Bosch, S. Kang, A. Andersson, P. Chen, Q. Zhang, Z. Cong, B. Chen, D. Qin, and Ö. Gustafsson (2016), Sources of black carbon to the Himalayan–Tibetan Plateau glaciers, *Nat. Commun.*, 7, 12574, doi:10.1038/ncomms12574.
- Lelieveld, J., J. S. Evans, M. Fnais, D. Giannadaki, and A. Pozzer (2015), The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale, *Nature*, 525, 367–371, doi:10.1038/nature15371.
- Lu, Z., Q. Zhang, and D. G. Streets (2011), Sulfur dioxide and primary carbonaceous aerosol emissions in China and India, 1996–2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 9839–9864, doi:10.5194/acp-11-9839-2011.
- Lutz, S., A. M. Anesio, S. E. J. Villar, and L. G. Benning (2014), Variations of algal communities cause darkening of a Greenland glacier, *FEMS Microbiol. Ecol.*, 89(2), 402-414, doi: 10.1111/1574-6941.12351.
- 松田和秀, 佐瀬裕之, 村尾直人, 林健太郎, 野口泉, 高橋章, 高木健太郎 (2010), 東アジアの森林生態系におけるエアロゾルの沈着量と動態の評価, 文部科学省研究費補助金 新学術領域研究 東アジアにおけるエアロゾルの植物・人間系へのインパクト, 平成21年度研究成果報告書, 87-94.

- 松本 利恵, 野口 泉, 横山新紀, 木戸瑞佳, 山神真紀子 (2016), 光学的方法によるブラックカーボン粒子濃度の全国調査(4), 第57回大気環境学会講演要旨集, 449.
- Ming, J., H. Cachier, C. Xiao, D. Qin, S. Kang, S. Hou, and J. Xu (2008), Black carbon record based on a shallow Himalayan ice core and its climatic implications, *Atmos. Chem. Phys.*, 8(5), 1343-1352, doi:10.5194/acp-8-1343-2008.
- Mori, I., M. Nishikawa, T. Tanimura, and H. Quan (2003), Change in size distribution and chemical composition of kosa (Asian dust) aerosol during long-range transport, *Atmos. Environ.*, 37(30), 4253-4263, doi:10.1016/S1352-2310(03)00535-1.
- 中島映至(2017), S-12 による SLCP の排出シナリオと気候・環境影響の研究, 環境省環境研究総合推進費戦略的研究開発領域課題 S-12 第3回公開シンポジウム「地球温暖化と大気汚染による影響の軽減に向けた新たな取り組みー短寿命気候汚染物質(SLCP)の影響評価とその削減対策ー」要旨集, 6-7.
- National Statistics Office of Mongolia (2011), Mongolian Statistical Information Service (available at: <http://www.1212.mn/en/>).
- Niwano, M., T. Aoki, K. Kuchiki, M. Hosaka, and Y. Kodama (2012), Snow Metamorphism and Albedo Process (SMAP) model for climate studies: Model validation using meteorological and snow impurity data measured at Sapporo, Japan, *J. Geophys. Res.*, 117, F03008, doi:10.1029/2011JF002239.
- 能田淳(2016), バイオエアロゾルと PM2.5 の関係 健康への影響について, クリーンテクノロジー, 26(9), 36-40.
- 野口泉, 山口高志, 秋山雅行, 川村美穂, 村尾直人, 高木健太郎, 柴田英昭, 福澤加里部, 本多宏充 (2012), ブラックカーボンとカリウムの相関について: バイオマス燃焼の影響, 第53回大気環境学会講演要旨集, 297.
- Ohara, T., H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan, and T. Hayasaka (2007), An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419-4444, doi: 10.5194/acp-7-4419-2007.
- Ohta, S., and T. Okita (1984), Measurements of particulate carbon in urban and marine air in Japanese areas, *Atmos. Environ.*, 18(11), 2439-2445, doi: 10.1016/0004-6981(84)90014-3.
- 大沼友貴彦(2016), 積雪観測に基づいた雪氷藻類の繁殖とそのアルベド効果に関する研究, 千葉大学大学院理学研究科博士論文, pp.242.
- Qian, Y., H. Wang, R. Zhang, M. G. Flanner, and P. J. Rasch (2014), A sensitivity study on modeling black carbon in snow and its radiative forcing over the Arctic and Northern China, *Environ. Res. Lett.*, 9, 064001, 10 pp., doi:10.1088/1748-9326/9/6/064001.
- Qian, Y., T. J. Yasunari, S. J. Doherty, M. G. Flanner, W. K. M. Lau, J. Ming, H. Wang, M. Wang, S. G. Warren, and R. Zhang (2015), Light-absorbing particles in snow and ice: measurement and

- modeling of climatic and hydrological impact, *Adv. Atmos. Sci.*, 32(1), 64-91, doi: 10.1007/s00376-014-0010-0.
- Rodó, X., et al. (2014), Tropospheric winds from northeastern China carry the etiologic agent of Kawasaki disease from its source to Japan, *Proc. Natl. Acad. Sci. U S A.*, 111(22), 7952-7957, doi: doi: 10.1073/pnas.1400380111.
- 島田利元, 竹内望, 青木輝男 (2016), グリーンランド氷床裸氷域および暗色域の衛星観測, *雪氷*, 78(6), 391-400. 鈴木健太郎 (2017), SLCP と地球の水循環, *環境省環境研究総合推進費戦略的研究開発領域課題S-12 第3 回公開シンポジウム「地球温暖化と大気汚染による影響の軽減に向けた新たな取り組み-短寿命気候汚染物質 (SLCP) の影響評価とその削減対策-」要旨集*, 14-15.
- Takeuchi N, Kohshima S and Seko K (2001), Structure, formation, darkening process of albedo reducing material (cryoconite) on a Himalayan glacier: a granular algal mat growing on the glacier, *Arct. Antarct. Alp. Res.*, 33(2), 115-122, doi: 10.2307/1552211.
- Tamamki, M., T. Hiraki, and M. Akikawas (2000), Progress in acid deposition monitoring technology in Japan, *Global Environ. Res.*, 4(1), 25-38 (available at: http://www.airies.or.jp/attach.php/6a6f75726e616c5f30342d31656e67/save/0/0/04_1-04.pdf).
- Textor, C., et al. (2006). Analysis and quantification of the diversities of aerosol life cycles within AeroCom, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1777-1813, doi:10.5194/acp-6-1777-2006.
- 外岡豊, 寧亜東, 章新東, 許雷, 高偉俊, 周璋生, 三浦秀一 (2008), 中国の住宅におけるエネルギー多消費実態と諸対策に関する調査研究, *住宅総合研究財団研究論文集*, 35, 369-378.
- U.S. EPA (2012), Report to congress on black carbon, United States Environmental Protection Agency, *EPA-450/R-12-001*, Office of Air and Radiation & Office of Air Quality Planning and Standards, Research Triangle Park, NC, USA, pp. 388 (available at: <https://www3.epa.gov/airquality/blackcarbon/>).
- Wang, M., B. Xu, H. Zhao, J. Cao, D. Joswiak, G. Wu, and S. Lin (2012), The influence of dust on quantitative measurements of black carbon in ice and snow when using a thermal optical method, *Aerosol. Sci. Technol.*, 46(1), 60-69, doi:10.1080/02786826.2011.605815.
- Warren, S. G., and W. J. Wiscombe (1980), A Model for the Spectral Albedo of Snow .II: Snow Containing Atmospheric Aerosols, *J. Atmos. Sci.*, 37(12), 2,734-2,745.
- Wiscombe, W. J. and S. G. Warren (1980), A Model for the Spectral Albedo of Snow. I : Pure snow, *J. Atmos. Sci.*, 37(12), 2,712-2,733.
- Yasunari, T. J., R. D. Koster, K.-M. Lau, T. Aoki, Y. C. Sud, T. Yamazaki, H. Motoyoshi, and Y. Kodama (2011), Influence of dust and black carbon on the snow albedo in the NASA Goddard Earth Observing System version 5 land surface model, *J. Geophys. Res.*, 116, D02210, doi:10.1029/2010JD014861.

- Yasunari, T. J., K.-M. Lau, S. P. P. Mahanama, P. R. Colarco, A. M. da Silva, T. Aoki, K. Aoki, N. Murao, S. Yamagata, and Y. Kodama (2014), The GOrddard SnoW Impurity Module (GOSWIM) for the NASA GEOS-5 Earth System Model: Preliminary comparisons with observations in Sapporo, Japan, *SOLA*, 10, 50–56, doi:10.2151/sola.2014-011.
- Yasunari, T. J., R. D. Koster, W. K. M. Lau, and K.-M. Kim (2015), Impact of snow darkening via dust, black carbon, and organic carbon on boreal spring climate in the Earth system, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 5485–5503. doi: 10.1002/2014JD022977.