

発表論文 1 :

東アジアにおけるハイドロクロロフルオロカーボンとハイドロフルオロカーボン排出量の決定 (Hydrochlorofluorocarbon and hydrofluorocarbon emissions in East Asia determined by inverse modeling)

Stohl, A.; Kim, J.; Li, S.; O'Doherty, S.; Mühle, J.; Salameh, P. K.; Saito, T.; Vollmer, M. K.; Wan, D.; Weiss, R. F.; Yao, B.; Yokouchi, Y.; Zhou, L. X., *Atmos. Chem. Phys.* **2010**, 10(8), 3545-3560.

1. 背景

成層圏オゾン破壊物質であるクロロフルオロカーボン (CFC) 類やトリクロロエタン、ハロン類の排出はモントリオール議定書による削減計画に従い、過去 10 年の間に大幅に減少した。暫定的な代替物質である HCFC 類の排出も削減対象となっているが、発展途上国では排出量が増え続け、その結果大気中濃度は増加している¹⁾。この HCFC 類はさらにオゾンを壊さない HFC 類への代替が進んでいるが、これらは強力な温室効果気体である。そのため、地球温暖化防止のための京都議定書において、HFC 類は、二酸化炭素、メタン、亜酸化窒素、パーフルオロカーボン (PFC) 類、六フッ化硫黄 (SF₆) と共に削減対象となり、先進国では排出実態の報告が義務付けられている。(なお、CFC 類と HCFC 類も温室効果気体であるが、すでにモントリオール議定書で規制されているため、京都議定書では規制対象とされていない。)

一般に人為汚染物質の排出量の推定については、経済データなど排出源側の調査に基づくボトムアップ方式と、大気中濃度の分布・変動を解析するトップダウン方式がある。東アジアにおける HCFC 類や HFC 類の排出量については、地域や化合物によって排出統計量がなかったり、信頼性に問題があるためボトムアップ方式で全容を把握することは困難であり、トップダウン方式の排出源解析に期待がかかっていた。そのため、国立環境研究所では 2004 年にアジア初のフッ素系温室効果気体の高頻度観測を波照間島で開始し²⁾、次いで 2006 年から落石岬で観測を開始した。中国では同年北京近傍の Shangdianzi で、韓国では 2007 年に済州島の Gosan で同様の観測が開始された。

これまで、東アジアにおけるフッ素系温室効果気体排出量のトップダウン解析例は、汚染の影響を受けた気塊中の化合物濃度比を使うトレーサー比法によって、波照間島の観測から特定成分の中国からの排出量を推定したものと²⁾、相模湾上空の観測から日本の排出量を推計したもの³⁾だけであった。しかし、トレーサー比法では、汚染の影響を直接受ける地域以外に適用することは難しいという限界があり、詳細な排出分布を得るためには、モデルを活用することが必要になる。2009 年に初めて東アジアを含んだ観測とモデルの融合研究が報告されたが⁴⁾、対象成分が限られ、またアジアの観測点として波照間島のデータのみが使われたため、中国と日本以外の地域からの排出実態は明らかにされなかった。

このような背景の下、本国際共同研究では、東アジアの 4 ステーションのデータとモデルを

使ったトップダウン解析が可能になり、HCFC 類と HFC 類について日本、中国、韓国、北朝鮮、台湾からの国別排出量と、地域内の排出分布を明らかにすることができた。

2. 方法

東アジアにおいて、HCFC 類、HFC 類を含む大気中ハロゲン化合物の高精度・高頻度モニタリングを実施している 4 ステーション（日本の波照間島ステーションと落石岬ステーション、韓国の Gosan ステーション、中国の Shangdianzi ステーション）のデータを利用して排出量分布の解析を行った。本研究の解析対象化合物は HCFC-22, HCFC-141b, HCFC-142b、HFC-23, HFC-134a, HFC-152a の 6 成分とした（ただし、Shangdianzi ステーションでは HCFC-22 と HCFC-142b のみ）。

モデル計算では、まず、それぞれの化合物について、現時点で最良と考えられる排出源分布を仮定する。次に、この排出源分布を基に大気輸送モデル FLEXPART^{5,6)}によって各ステーションにおける各成分の時系列データを計算する。この計算結果が、実際に観測された濃度変化に近づくように排出源の分布を変化させながら繰り返し計算を行い、最終的に実測値と最もよく合う排出源分布を導き出す。モデル計算の水平解像度は $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ である。

3. 結果と考察

大気輸送モデルは各ステーションにおける濃度変化を概ね再現し、特に落石と波照間のデータについては、計算結果と観測値の間に非常に良い一致が見られた。対象とした 3 種の HFC と 3 種の HCFC について、排出分布マップが得られた。図 1 には HFC-23 の例を示す。HFC-23 は大気寿命が長く (246 年)、単位重量当たりで二酸化炭素の 14300 倍という非常に強い温室効果を持つ。この化合物は、大半が HCFC-22 生産の副産物として非意図的に放出されている⁸⁾。先進国では排ガスの加熱処理やプロセスの最適化などによって排出はかなり低く抑えられているが、発展途上国ではまだ十分な対応ができていない所がある。図 1 で HFC-23 の排出量が特に多い地域は、中国の HCFC-22 生産工場（米印）と一致していることが分かる。このことは、本研究に用いた観測データとモデル解析が非常に精度の高い排出源マップを与えていることを示すものである。

国別に 2008 年の排出量最適見積もりを集計したところ、東アジアでは中国の寄与が 67% (HFC-134a) ~93%(HFC-23)を占め、日本の寄与が 3%(HFC-23)~19% (HFC-152a) を占めた。中国からの 2008 年における排出量の最適見積もりは HCFC-22: 65.3 ± 6.6 kt/年 (世界の 17%), HCFC-141b: 12.1 ± 1.6 kt/年 (22%), HCFC-142b: 7.3 ± 0.7 kt/年 (17%), HFC-134a: 12.9 ± 1.7 kt/年 (9%), HFC-152a: 3.4 ± 0.5 kt/年 (7%), HFC-23: 6.2 ± 0.7 kt/年 (>50%)であった。

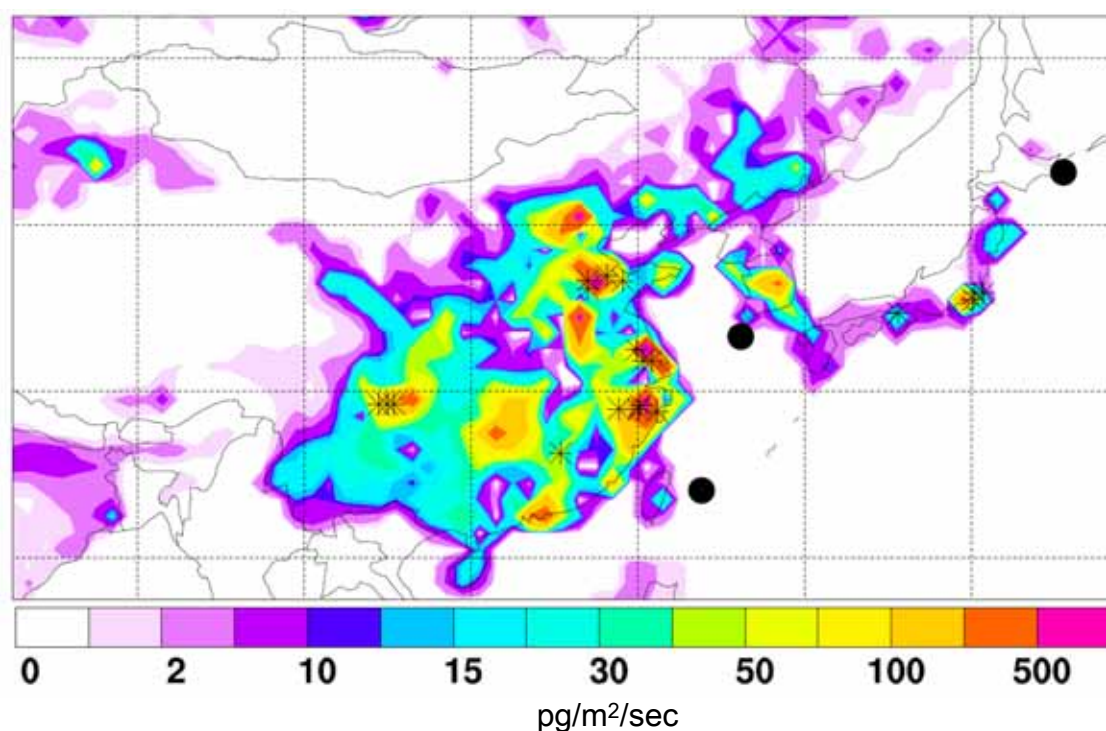


図1．2008年のHFC-23排出量分布の最適見積もり

黒丸は観測ステーション、米印は中国と日本国内におけるHCFC-22の生産工場の位置を示す。なお、Shangdianziでは、HFC-23が測定されていないため、この解析は波照間、落石、Gosanの3ステーションのデータを用いて行った。

4. 今後の課題

本研究で解析対象としたHCFC類、HFC類のほかにも、SF₆、CFC類などのフッ素系温室効果気体が多くあり、これらについても実態解明が急がれる。また、アジアではフッ素系温室効果気体を高精度・高頻度に観測できるステーションは本研究で取り上げた4か所だけであり、この観測網ではインドや東南アジア各国という経済成長著しい発展途上国の排出量について解析することができない。今後はこれらの地域をカバーできる観測体制を構築することが重要である。

参考文献

- 1) Montzka, S. A., Hall, B. D., and Elkins, J. W.: Accelerated increases observed for hydrochlorofluorocarbons since 2004 in the global atmosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L03804, doi:10.129/2008GL036475, 2009

- 2) Yokouchi, Y., Taguchi, S., Saito, T., Tohjima, Y., Tanimoto, H., and Mukai, H.: High-frequency measurements of HFCs at a remote site in east Asia and their implications for Chinese emissions, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L21814, doi:10.1029/2006GL026403, 2006.
- 3) Yokouchi, Y., Inagaki, T., Yazawa, K., Tamaru, T., Enomoto, T., and Izumi, K.: Estimates of ratios of anthropogenic halocarbon emissions from Japan based on aircraft monitoring over Sagami Bay, Japan, *J. Geophys. Res.*, 110, D06301, doi:10.1029/2004JD005320, 2005.
- 4) Stohl, A., Seibert, P., Arduini, J., Eckhardt, S., Fraser, P., et al.: An analytical inversion method for determining regional and global emissions of greenhouse gases: Sensitivity studies and application to halocarbons, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1597–1620, 2009.
- 5) Stohl, A., Hittenberger, M., and Wotawa, G.: Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data, *Atmos. Environ.*, 32, 4245–4264, 1998.
- 6) Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G.: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2., *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2461–2474, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/2461/2005/>.
- 7) IPCC, *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge Univ. Press: Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2007; p 996.
- 8) McCulloch, A., Lindley, A. A.: Global emissions of HFC-23 estimated to the year 2015, *Atmos. Environ.*, 41, 1560–1566, 2007.