

			地球一括計上
課題名	東アジアにおけるハロゲン系温室効果気体の排出に関する観測研究		
担当研究機関	独立行政法人国立環境研究所		
研究期間	平成17-20年度	合計予算額 (当初予算額 ベース)	111,084千円 (うち20年度 25,284千円)
研究体制	<p>東アジアにおけるハロゲン系温室効果気体の排出に関する観測研究 (独立行政法人国立環境研究所) &lt;研究協力機関&gt;AGAGE(Advanced Global Atmospheric Gases Experiment)</p>		
研究概要	<p>1. 序 (研究背景等)</p> <p>過去数十年にわたって、様々なハロカーボン類が溶媒、冷媒、発泡剤などとして利用され、その一部が大気中に放出されてきた。それらの中で、フッ素を含む長寿命の気体は強力な温室効果ガスであり、また、フッ素に加えて塩素あるいは臭素を含むものは同時に成層圏オゾン破壊ガスであることが知られている。このような人為起源のハロゲン系温室効果気体による温暖化への寄与は二酸化炭素の約20%に匹敵している<sup>1)</sup>。この内、CFC(クロロフルオロカーボン)類とHCFC(ハイドロクロロフルオロカーボン)類はモントリオール議定書によって、HFC(ハイドロフルオロカーボン)類、PFC(パーフルオロカーボン)類とSF<sub>6</sub>(六フッ化硫黄)は京都議定書によって規制されているが、多くのHCFC類、HFC類の大気中濃度は増加を続けている。また、先進国ではハロカーボン排出の規制が進む一方、発展途上国では急速な経済成長と工業化によって排出量が増えているため、排出の分布パターンにも大きな変化が起きている。特に、中国におけるHCFC使用量が急増し、2006年には全世界の使用量の50%近くに上ると推定されている<sup>2)</sup>。そのため、東アジアからのハロゲン系温室効果ガスの排出が、それらのグローバルな存在量や将来の濃度トレンドを大きく左右する状況にある。しかし、排出量の信頼できる統計情報が得られるのは、一部の地域の一部の成分に限られているため、ハロカーボン排出の実態には不明な点が多い。</p> <p>このような状況を踏まえて、本課題では以下の研究を実施した。(1)中国の影響を見るのに適した沖縄県波照間島(北緯24° 3'、東経123° 3')と日本の影響を捕らえやすい北海道落石岬(北緯43° 10'、東経145° 30')の観測ステーションに自動大気濃縮/ガスクロマトグラフ-質量分析計を設置して、PFC、HFC、SF<sub>6</sub>を含むハロカーボン類の高感度・高精度・高頻度モニタリング観測を実施する(落石岬については、本研究期間中の平成18年度に立ち上げる)、(2)東アジア域におけるハロゲン系温室効果気体の経年変化を明らかにする、(3)ハロゲン系温室効果気体のベースライン濃度の季節変動とその要因を解析する、(3)汚染イベントの解析により周辺国からのハロカーボン排出実態を推定する、(4)大気輸送モデルを利用して中国からのHCFC-22とHFC-134a排出を推定する、(5)国際的な観測ネットワークと連携してグローバル/リージョナルなハロカーボン排出量推定のための国際共同研究を実施する。</p> <p>アジア域におけるハロゲン系温室効果気体の観測については国際的な関心も高く、わが国が十分な観測体制をとって、その排出動向を把握することが求められている。</p> <p>2. 研究目的</p> <p>本研究の目的は、東アジアの影響を検出するのに適したバックグラウンドステーションにおける高頻度・高精度の観測と大気輸送モデルの結合によって、東アジア域におけるハロゲン系温室効果気体の排出動向を定量的に把握することである。</p> <p>(1)波照間島、落石岬におけるハロゲン系温室効果気体の高頻度モニタリング： 波照間島と落石岬において自動連続大気濃縮/GC-MS測定を実施し、ハロゲン系温室効果気体(PFC類、HFC類、SF<sub>6</sub>、CFC類、HCFC類)の詳細な濃度変動を明らかにする。これによって、東アジアにおける各種ハロゲン系温室効果気体の経年変化を的確に把握すると共に、詳細な濃度変動データを解析して、それらの排出実態を明らかにすることを旨とする。</p> <p>(2)東アジアにおけるハロゲン系温室効果気体排出量のモデル解析： 東アジア域に限定した数値シミュレーションを高空間分解能で行い、ハロカーボン類の観測濃度との比較により地域別排出量を明らかにする。</p> <p>(3)国際的な共同研究によって、グローバル/リージョナルスケールのハロゲン系温室効果気体排出量分布の解明に寄与する。</p>		

### 3. 研究の内容・成果

#### (1) 波照間島、落石岬におけるハロゲン系温室効果気体の高頻度モニタリング

国立環境研究所の波照間観測ステーションおよび落石観測ステーションにおけるHFC等ハロゲン系温室効果気体の観測を実施した。波照間では2004年4月から観測用タワー（高度40m）上部からステンレス製配管を通して引き込んだ大気を低温濃縮/GC-MSシステムによって1時間に1回測定している。このシステムは本観測のために開発したもので、全自動運転と国立環境研究所からの遠隔制御が可能である<sup>3,4)</sup>。測定対象ハロカーボンは、CFC類5種（CFC-11, CFC-12, CFC-113, CFC-114, CFC-115）、HCFC類5種（HCFC-22, HCFC-141b, HCFC-142b, HCFC-123, HCFC-124）、HFC類5種（HFC-23, HFC-134a, HFC-152a, HFC-125, HFC-32）、PFC類3種（PFC-116, PFC-218, PFC-318）、SF<sub>6</sub>、その他11種（トリクロロエタン、トリクロロエチレン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロメタン、テトラクロロエチレンなど）である。落石では、さらにPFC-14の測定も可能にした新システムを使って、2007年年8月下旬から毎時間観測を続けている。また、標準ガスのクロス分析によってNIESスケールを確立すると共に、AGAGEとのインターキャリブレーションを実施し、ハロゲン系温室効果気体についてよい一致をみた。

観測されたハロカーボン類の中で、HCFC類とHFC類は大きな濃度変動を示した。図1に波照間島（2004年5月～2008年12月）と落石岬（2006年9月～2008年12月）で観測されたHFC-134a、HFC-152a、HFC-23、HCFC-22、HCFC-142bの測定結果を示す。各化合物は、ベースライン濃度の季節変動と共に、数時間～数日の短期的な濃度増加を示している。ベースライン濃度は、各月の全データセットの平均値と標準偏差（ $\sigma$ ）を計算し、平均から $\pm 1\sigma$ 以上離れたポイントを除き、このプロセスを残りのデータに対して繰り返し、2度目に残ったものの平均をその月のベースライン濃度として求めた。波照間島では過去4年間にHFC-134aのベースライン濃度は、37pptから52pptへ、HFC-152aは4.8pptから7.1pptへ、HFC-32は1.5pptから3pptへ、HCFC-22は173pptから201pptへ上昇するなど、HFC類を中心に代替フロン類の顕著な増加が認められた。また、波照間におけるハロカーボン濃度の季節変動は南北両半球のベースライン濃度の間を振幅しており、緯度方向の濃度差を反映していることも明らかになった。落石岬では、波照間島に比べてHFC類、HCFC類濃度の季節変化は小さく、初夏には波照間島よりも高濃度になる傾向が見られた。

2004年～2005年の観測からHCFC類、HFC類に見られた短期の濃度増加（汚染イベント）を、三次元輸送モデルSTAGの計算によって得られたタグ付きシミュレーション<sup>5)</sup>との比較によって排出地域を特定した。その結果、中国のみの影響を受けたイベントでは、HFC-23の増加が顕著で、HFC-134a濃度にはほとんど変化がないこと、中国以外の台湾、日本、韓国の影響を受けたイベントでは、HFC濃度の増加の大半がHFC-134aによることが明らかになった。これはそれぞれの地域から排出されるHFC類の組成を反映するものと考えられる。中国起源汚染イベント時のハロカーボン濃度と同ステーションで観測されている一酸化炭素（CO）濃度の増加分の比および中国からのCO排出量見積もりに基づいて、中国からのハロカーボン排出概算量を試算した結果、HCFC-22：52（ $\pm 34$ ）Gg/y、HFC-134a：3.9（ $\pm 2.4$ ）Gg/y、HFC-23：10（ $\pm 4.6$ ）Gg/y、HFC-152a排出量：4.3（ $\pm 2.3$ ）Gg/yが得られた。さらに対象を拡げて、2005年～2008年中の16例の中国起源汚染イベントを対象に全ハロカーボン濃度の増加割合を調べた。それらの平均は図2に示すようにモル比ではHCFC-22が最大の45%を占めて、これにHFC-23（14%）、HCFC-141b（9%）が続き、SF<sub>6</sub>やPFCの寄与は1%以下であった。HCFC-22の推定排出量を使えば、基本的に全成分のおよその排出量を試算することが可能になった。また、温暖化係数（GWP）を乗じて温暖化に対するインパクトとして比較した場合、HFC-23が全体の4割を占め、それにHCFC-22が次ぎ（19%）、PFC類やSF<sub>6</sub>の寄与率が大きくなった。中国の場合、ハロゲン系温室効果気体の削減を考える上で、HFC-23が重要な意味を持つと言える。

これまで観測例が少ないPFC類についても系統的なデータが得られた。それらの濃度レベルは波照間島と落石岬で同程度であり、2008年におけるPFC-116、PFC-218、PFC-318のベースライン濃度はそれぞれ、3.9ppt、0.6ppt、1.3pptであった。落石岬で観測されたPFC-14は、2006年9月～2007年1月の平均濃度が76.0ppt、2008年12月～2009年3月の平均濃度が77.8pptであり、+0.84ppt/年の顕著な経年増加が認められた。他のPFC濃度の経年変化は非常に小さいが、波照間島におけるPFC-116に+0.07ppt/年のわずかな増加傾向が見られた。波照間島で観測された汚染イベントの多くは中国起源と同定され、台湾起源イベントがそれに続いたが、落石岬の汚染イベントのほとんどが日本起源であった。上記と同様の手法で、汚染イベント時におけるPFCとHCFC-22の濃度増加の比および中国、日本、台湾におけるHCFC-22の年間排出量の既報値を用いてPFCの排出量を計算すると、PFC-116の排出量は、中国：0.69 Gg/yr、日本：0.23 Gg/yr、台湾：0.19 Gg/yrと推定された。これら東アジアの国々からのPFC-116の排出量（計：1.1 Gg/yr）は、PFC-116の経年増加から推定されるグローバルな年間排出量（約1.6Gg）の約2/3を占めている可能性が示された。この結果は、PFC-116の主要な排出源である半導体工場が中国、日本、台湾などの東アジア地域に集中していることに加え、中国が世界のアルミニ

ウム生産の約 1/3 を占める最大の生産拠点であることを反映したものと考えられる。

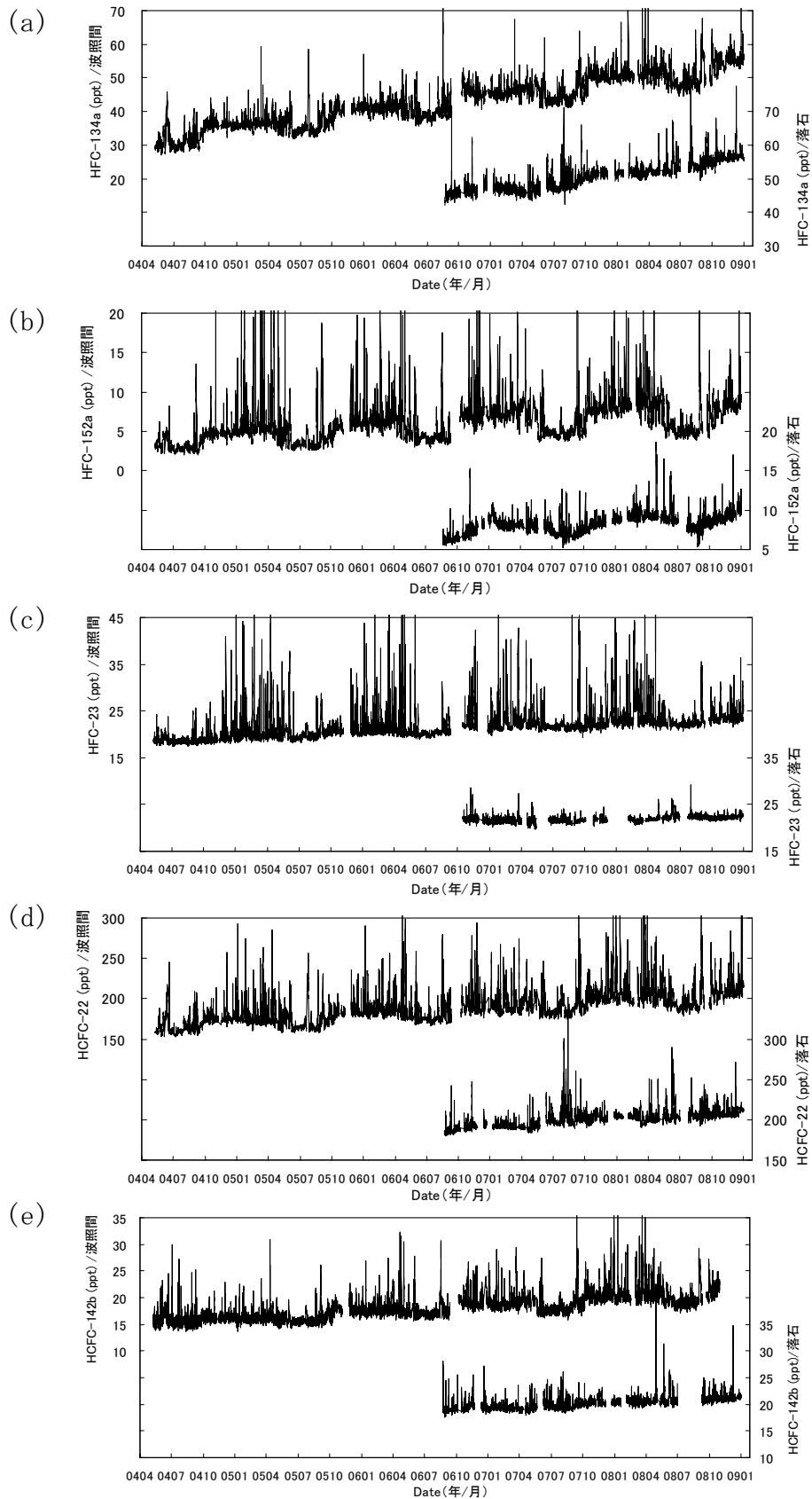


図 1. 波照間島 (2004 年 5 月～2008 年 12 月、左軸) と落石岬 (2006 年 9 月～2008 年 12 月、右軸) で観測された (a)HFC-134a、(b)HFC-152a、(c)HFC-23、(d)HCFC-22、(e)HCFC-142b の濃度変動。

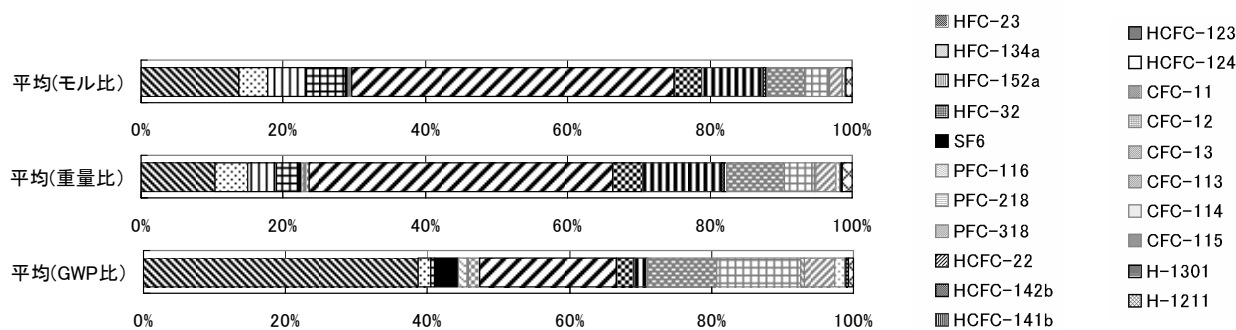


図 2. 2005～2008 年中の 16 例の中国起源汚染イベント時に観測されたハロゲン系温室効果気体の相対比の平均 [上から、モル比、重量比、温暖化ポテンシャル比]

## (2) 東アジアにおけるハロゲン系温室効果気体排出量のモデル解析

ハロゲン系温室効果気体の東アジアにおける地域別排出源を推定するために、領域気象モデル RAMS (Regional Atmospheric Modeling System) にオンライントレーサーモデルを組み込み、東アジア各地域からのトレーサー排出による日本周辺域のトレーサー濃度を計算した。排出源分布を仮定して濃度分布の計算を行い、HCFC-22 および HFC-134a について、波照間および落石における観測結果との比較を行った。

観測された HCFC-22 の濃度変動と計算による濃度変動の比較を行ったところ、ところどころ合わない期間もあるものの、ピークのタイミングは計算でも概ねよく再現できていることがわかった。モデルで計算された波照間における風向・風速の時間変動は実測値とよく合っていたが、汚染気塊の輸送過程において重要な領域での風向のずれが観測値と計算値が大きく離れる要因となり得ることがわかった。トレーサーとして用いる排出源領域区分についても検討を行い、細かく区切っても観測地点に到達するまでの輸送過程で混合してしまう領域同士をまとめることで、最適な 12 領域を設定した。また、ベースライン変動の影響を調べるために、全球輸送モデル NIES\_TM (National Institute for Environmental Studies Transport model) を用いての計算領域外の排出源からの寄与を調べた。その結果、HFC-134a に関しては、領域外排出源からの寄与によるベースラインの変動が高濃度ピークフィッティングに与える影響を無視できないことがわかった。落石においては、フォワード計算結果によれば、高濃度イベントのほとんどが北海道・東日本等の近接した排出領域に由来していること、観測値と比べ、濃度増加を過大評価する傾向があることがわかった。

波照間における 2005 年～2007 年冬季におけるタグ付きシミュレーション結果を用いて、HCFC-22 および HFC-134a についてベイズ最小二乗法を用いて逆計算を行った。その結果、得られた HCFC-22 の領域別排出量の事後推定値と事前推定値およびそれらの不確実性の減少度を図 3 に示す。なお、図 3 で示した相対標準偏差 (%) は、2005 年、2006 年、2007 年の各年のデータのみを用いて年毎の逆計算を行った場合の結果のバラつきから、不確実性の減少度 (%) は、 $(1 - \sigma_{\text{a priori}} / \sigma_{\text{a posteriori}}) \times 100$  として求めた。図 3 に示すように、逆計算の前と後で大きく値が変わったのは、中国由来の排出値であった。これは、HCFC-22 の中国からの排出量については、初期値 (統計値) に対し、地域に応じて約 8 倍～21 倍程度が排出されているという推定結果である。一方、北海道や東日本、沖縄、台湾などでは、事前と事後の値が変わらないという結果になったが、これは、それらの領域由来の高濃度イベントが観測期間に少なく、あっても他の領域からのイベントと重なり合って情報がうまく抽出できなかったことが原因と考えられる。中国由来の推定結果には、3 年間のデータを年ごとに用いて逆計算を行った場合、地域により 28～56% のバラつきが見られた。このバラつきの原因を調べた結果、年ごとの輸送の違いに由来していると考えられたため、排出量推定においては、各領域に対する実測と計算の残差の不確実性を最小にすることを最優先にして、3 年間まとめた形での解析を行った。その結果、2005 年～2007 年の中国からの HCFC-22 平均年間排出量は、 $32 (\pm 5)$  Gg、HFC-134a 年間排出量が  $3 (\pm 1)$  Gg と推定された。この値は、上述の汚染イベントを利用したトレーサー比法の結果と概ね一致した。

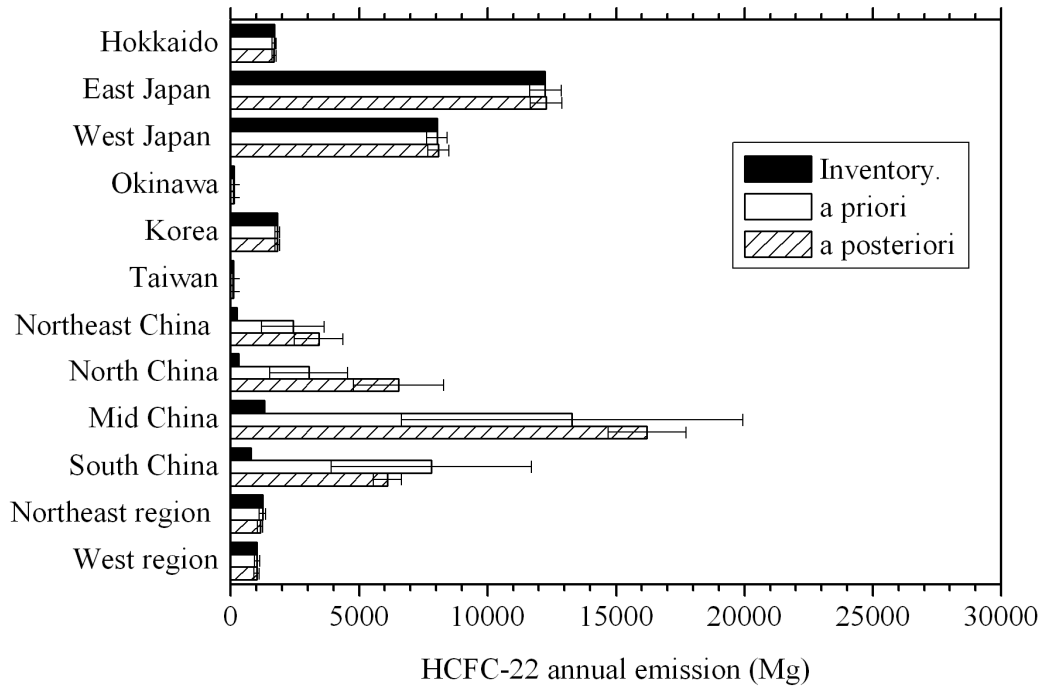


図3. 2005年～2007年冬季の波照間観測値を用いたHCFC-22の年間排出量についての逆計算結果。(黒：フォワード計算に用いた初期値(統計値)、白：逆計算に用いた事前推定値、斜線：逆計算後の事後推定値、エラーバーは共分散値。)

### (3) グローバル/リージョナルスケールのハロゲン系温室効果気体排出量分布の解明<sup>6)</sup> (国際共同研究)

AGAGE、SOGE (the System for Observation of Halogenated Greenhouse Gases in Europe)、ノルウェー大気研究所との共同研究として、グローバルな地域別ハロカーボン排出量のモデル計算に参画した。波照間を含む世界の9ステーションの高頻度モニタリングデータを基に、ラグランジュ粒子拡散モデルと逆計算を使って、グローバル/リージョナルスケールのハロゲン系温室効果気体排出量を推定した。例えば、HCFC-22の日本および中国からの排出量はそれぞれ10.2Gg(2005年)、7.8Gg(2006年)と59.8Gg(2005年)、70.7Gg(2006年)と求められた。中国からのHCFC-22排出量は世界最大で、2位のアメリカ合衆国の2倍以上であった。また、HFC-152aについては、従来の推定値は世界的に相当過小評価であったことなどが明らかになった。

### 4. 考察

アジアにおける最初のハロゲン系温室効果気体の高頻度モニタリング観測を続け、それらの詳細な濃度変動データを得ることができた。多くのHFC類、HCFC類とSF<sub>6</sub>が経年増加を続け、本研究期間中(2005～2008年)にHFC-134aは約40%増え、HFC-152aとHFC-32はほぼ倍増したことなどを明らかにした。また、波照間におけるハロカーボン濃度の季節変動(冬>夏)は北半球低緯度～中緯度の濃度分布を反映したものであることが分かり、波照間の定点観測からある程度緯度分布に関する情報も得られる。短期間の汚染イベントを利用した周辺地域からの排出量解析では、これまで統計量などの全くないものを含めて測定対象全成分の排出量の試算を行った。たとえば、HCFC-22製造の副産物であるHFC-23の年間排出量はおおよそ10Gg/yに上り、中国起源ハロカーボン類の中で温暖化に対する寄与は約40%に上ることなどが分かった。PFC-116の排出量は、中国：0.69Gg/yr、日本：0.23Gg/yr、台湾：0.19Gg/yrと推定され、東アジアからの排出が世界全体の約2/3を占めている可能性が示された。また、オンライントレーサーモデルを組み込んだ輸送モデルと観測結果を基にHCFC-22およびHFC-134aの排出量推定をおこなった。波照間における2005年～2007年冬季におけるタグ付きシミュレーション結果を用いて、HCFC-22およびHFC-134aについてベイズ最小二乗法を用いて逆計算を行い、2005年～2007年の中国からのHCFC-22年間排出量は、32(±5)Gg、HFC-134a年間排出量が3(±1)Ggという結果を得た。逆問題法は、推定に用いる情報量を増やし、誤差を小さくするのに最も効果的であり、総排出量のほかに、領域ごとの排出量分布も導出することができる等のメリットを確認した。さらに、国際共同研究として、欧米豪の観測ネットワークと連携し、HCFC-22、HFC-134a、HFC-152aのグローバルな地域別排出量をモデル計算により推定した。

本研究は東アジア域におけるハロゲン系温室効果気体の濃度と排出の実態把握という本来の目的を十分達成し、また国際共同研究によってグローバルな問題解決にも寄与することができた。

#### 引用文献

- 1) IPCC第4次評価報告書第1作業部会報告書
- 2) UNEP (2008), Ozonaction Newsletter, Special issue dedicated to HCFC Phase out: Convenient Opportunity to Safeguard the Ozone Layer and Climate., September, 2008, p.8.
- 3) 榎本孝輝, 横内陽子, 泉克幸, 稲垣敏治(2005), PFC,HFCを含むハロカーボン分析システムの開発と大気観測への応用, 大気環境学会誌, 40, 1-8.
- 4) 横内陽子(2005), “東アジアにおけるハロカーボン排出実態解明のためのモニタリングシステム構築に関する研究”, 平成14~16年度環境省地球環境研究総合推進費終了研究成果報告書(横内陽子代表著、環境省地球環境局研究調査室), 53pp.
- 5) 田口彰一、鷲見栄一(2005), 環境省地球環境研究総合推進費終了研究成果報告書(平成14年度~平成16年度)、B-6 東アジアにおけるハロカーボン排出実態解明のためのモニタリングシステム構築に関する研究 (2)化学輸送モデルを用いた東アジアにおけるハロカーボン排出量の推定に関する研究、p.39-53.
- 6) Stohl, A., Seibert, P., Arduini, J., Eckhardt, S., Fraser, P., Grealley, B.R., maione, M., O’Doherty, S., Prinn, R.G., Reimann, S., Saito, T., Schmidbauer, N., Simmonds, P.G., Vollmer, M.K., Weiss, R.F. and Yokouchi, Y. (2009), A new analytical inversion method for determining regional and global emissions of greenhouse gases: Sensitivity studies and application to halocarbons, Atmos. Chem. Phys. 9, 1597-1620.