

			地球一括計上
課題名	東アジアにおけるハロカーボン排出実態解明のための高頻度・高精度モニタリング研究		
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21-23年度	合計予算額 (当初予算額 ベース)	103,681千円 (うち23年度 33,746千円)
研究体制 東アジアにおけるハロカーボン排出実態解明のための高頻度・高精度モニタリング研究 (独立行政法人国立環境研究所) <研究協力機関>AGAGE(Advanced Global Atmospheric Gases Experiment)			
研究概要 1. 序 (研究背景等) フッ素を含む長寿命のハロカーボンは強力な温室効果気体である。これらの中で、塩素あるいは臭素を含むクロロフルオロカーボン (CFC)、ハイドロクロロフルオロカーボン (HCFC) およびハロンは成層圏オゾン破壊物質でもあるため、オゾン層保護のためのモントリオール議定書による削減対象となっている。一方、塩素・臭素を含まないハイドロフルオロカーボン (HFC)、パーフルオロカーボン (PFC)、六フッ化硫黄 (SF ₆) は二酸化炭素、メタン、亜酸化窒素と共に温暖化防止のための京都議定書による規制対象になっている。現在、大気中のCFCは減少傾向にあるが、CFCの暫定的な代替品であるHCFCと、HFC、PFC、SF ₆ の京都議定書対象ハロカーボンは年々増加している ¹⁾ 。このようなハロカーボン排出に占めるアジアの比率は近年高まっている。しかし、この地域における排出量については、日本などを除くと、信頼できる統計情報が乏しい。そのため、先行の地球一括プロジェクト「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」(H17~H20) ²⁾ において、GC/MSによるハロカーボンの定常的な高頻度観測を波照間島と落石岬で立ち上げ、トップダウン方式による排出量の推定に着手した。 本課題では、これらハロカーボン類の観測を発展的に継続して長期~短期濃度変動を正確に把握すると共に、東アジアにおける地域(国)別ハロカーボン排出量のモデル解析を進めた。観測においては、測定法の精緻化と対象成分の拡張を進めて、最終的にCFC 6種、HCFC 5種、HFC 9種、PFC 4種、SF ₆ 、ハロン 2種を含むハロカーボンの高精度・高頻度モニタリングを定常化した。排出量の解析においては、詳細な観測データと輸送モデルを組み合わせた逆解析手法を用いて、主要なHCFC、HFC、PFCの中国、北朝鮮、韓国、日本、台湾からの地域(国)別排出量を明らかにすると共に、2006~2010年における中国起源排出量の経年変化を推定した。 アジアからのハロカーボン排出が、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中で、我が国が系統的なハロカーボン観測を進めて濃度変動を把握し、その解析によって東アジア地域のハロカーボン排出動向を明らかにすることは、温暖化政策立案のための重要な貢献となる。			
2. 研究目的 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感度・高精度・高頻度の多成分ハロカーボン観測により、それらの大気濃度変動を正確に把握することと、観測・モデルの連携によって東アジア域における地域(国)別のハロカーボン排出実態を定量的に評価することである。			
1) 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、ハロカーボン類 (PFC、HFC、SF ₆ 、CFC、HCFC) の詳細な濃度変動を明らかにする。 2) 観測されたハロカーボン濃度の変動による2005~2011年間の放射強制力の変化を明らかにする。 3) ハロカーボン観測システムの改良によって測定精度を向上させると共に、新規代替フロン ³⁾ の排出に対応して測定対象化合物を拡げる。 4) 波照間島と落石岬におけるハロカーボン観測データと大気輸送モデルを使って、東アジアにおける地域(国)別ハロカーボン排出量を推計する。統計データに基づくボトムアップ推計値を検証すると共に、統計でカバーされない化合物と地域についても排出量の推定を可能にする。 5) 国際的な共同研究とデータの一般公開によって、グローバルなハロカーボン排出量分布の解明に寄与する。 6) 最終的には、京都議定書およびモントリオール議定書に関わるハロカーボン類について日本~東アジア~グローバルレベルの対策立案に必要な知見を提供する。			

3. 研究の内容・成果

(1) 波照間島と落石岬におけるハロカーボン観測とトレンド

波照間島と落石岬においてCFC (CFC-11, CFC-12, CFC-113, CFC-114, CFC-115)、HCFC (HCFC-22, HCFC-141b, HCFC-142b, HCFC-123, HCFC-124)、HFC (HFC-23, HFC-134a, HFC-152a, HFC-32, HFC-125)、PFC (PFC-116, PFC-218, PFC-318)、SF₆、ハロン (H-1301, H-1211)の毎時間測定を継続すると共に、新たにHFC-227ea、HFC-143a、HFC-245fa、HFC-365mfcとCFC-13を測定対象に追加した。測定システムは当観測のために開発したもので、小型冷凍機内に置いたトラップに大気を濃縮して、その加熱脱着成分をGC-MS(Agilent、6890/5973)で分析する。小型冷凍機の使用によって液体窒素などの寒剤を使用せずに低沸点成分を濃縮することが可能になっている。すべての操作は自動化されており、また国立環境研究所に設置したPCからのリモート制御が可能である³⁾。

本研究期間中(2009年4月～)に両ステーションでそれぞれ17,000組以上のデータセットを得て、前期プロジェクト開始時点から観測しているハロカーボンについては、7年以上のデータが蓄積された。その一部を図1に示す。HCFC、HFC、SF₆については増加傾向が、CFCについては減少傾向が続いていることが明らかとなった。以下、それらの変動の特徴について述べる。

①HCFC：本研究期間中に波照間と落石で観測されたHCFC-22、HCFC-141b、HCFC-142bの平均年増加率は、それぞれ3.4%/y、4.0%/y、3.5%/yであった。HCFC-142bについては増加の鈍化傾向が見られた。これらの季節変動は、落石では余り顕著でないが、波照間では冬のベースライン濃度が夏よりも高く、汚染イベントも多くなる傾向が見られた。冬の波照間島には中・高緯度から気団が流入し、アジア大陸の影響を受けやすいことが、夏に比べて高濃度のベースライン濃度をもたらしているものと考えられる。このような両ステーションにおける季節変化の違いは、HFCやSF₆の場合にも観測された。

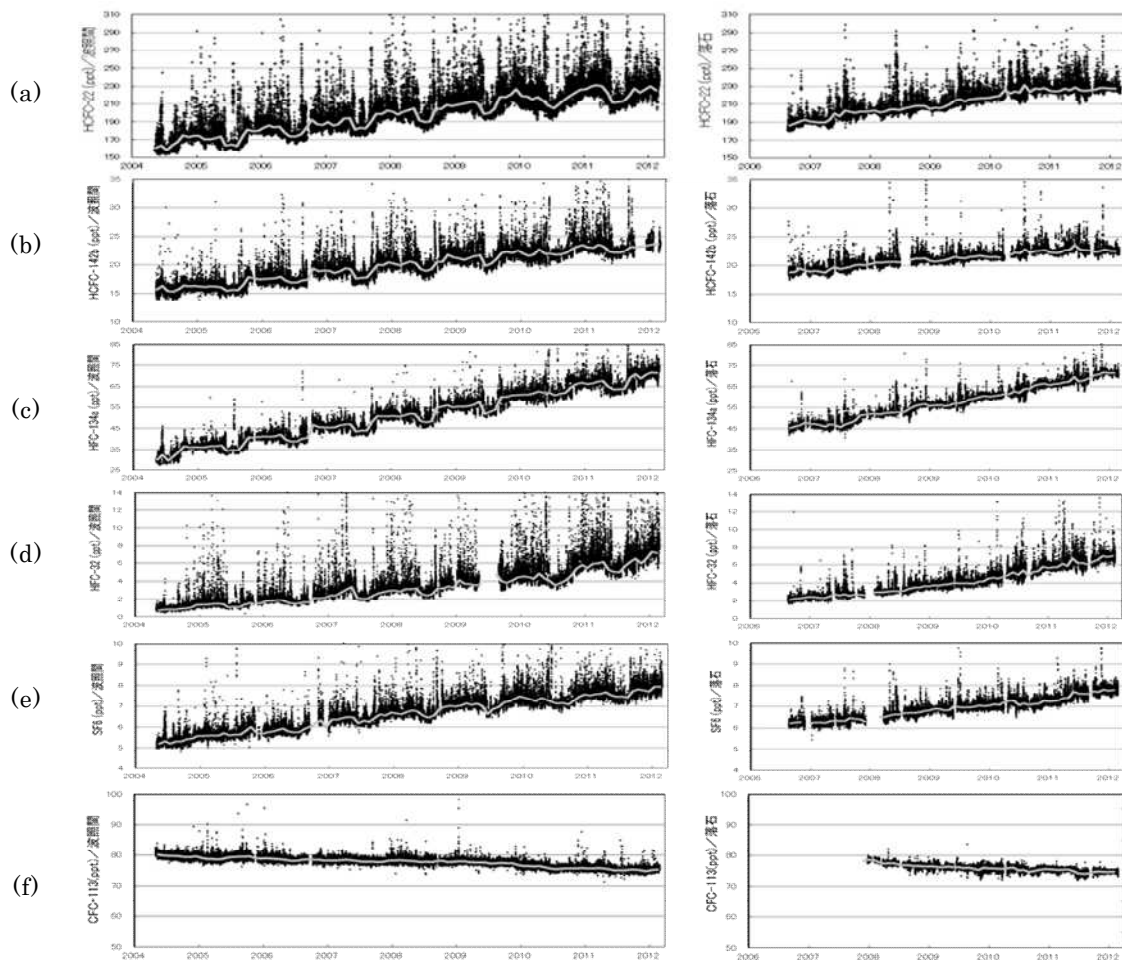


図1. 波照間島と落石岬における大気中ハロカーボン濃度の観測例

(a)HCFC-22、(b) HCFC-142b、(c)HFC-134a、(d)HFC-32、(e) SF₆、(f)CFC-113

左：波照間島(2004年5月～2012年2月)、右：落石岬(2006年9月～2012年2月)

- ② **HFC**：波照間島と落石岬で複数年の観測を行ったHFCはいずれも増加傾向を示し、HFC-134aは2005年の37pptから2011年には66.9pptにほぼ倍増し、HFC-32は2005年の1.5pptから2011年には6.2pptと4倍以上になった。2008～2009年に観測を開始したHFC-125とHFC-227eaも年10%以上の増加を示し、2011年の平均ベースライン濃度はそれぞれ12.0pptと0.88pptであった。新規測定対象化合物のうち、HFC-143a、HFC-245fa、HFC-365mfcについては、新たに測定条件を整えて、2011年から測定を開始した。これらの波照間島・落石岬における平均ベースライン濃度は、HFC-143a：14.0ppt、HFC-245fa：1.75ppt、HFC-365mfc：0.95pptに達しており、次々と開発される代替フロンが大気中で蓄積を始めていることが分かった。HFC濃度の季節変動はHCFCと同様に波照間では冬の方が夏よりも高く、落石では顕著な違いは見られなかった。年平均のベースライン濃度は、ほとんどのHFCについて、波照間よりも落石において高かったが、HFC-23の場合は逆であった。これは、(3)節のモデル解析で示されるように波照間に近い中国がHFC-23の最大排出国であることと整合している。
- ③ **SF₆**：波照間島と落石岬における2011年の平均ベースライン濃度はいずれも7.6pptで、過去3年間の増加率は3～5%/yであった。
- ④ **CFC**：現時点ではフッ素を含むハロカーボン全体の60%以上（モル換算）を占めている。主要なCFCであるCFC-11、CFC-12、CFC-113、CFC-114とCFC-115はいずれも減少傾向を示した。CFC-113の減少率が最も大きく（-1.2%/y）、CFC-11がこれに続いた（-0.6%/y）。CFC濃度は波照間においても夏と冬でほとんど差がなく、HCFC、HFC、SF₆のような増加傾向を示すハロカーボンとは異なり、南北の濃度差が小さいことが示唆された。
- ⑤ **PFC**：PFC-116、PFC-218、PFC-318はいずれもわずかな上昇傾向にあり、2011年のベースライン濃度と過去3年間の年変動率（波照間と落石における平均）は、PFC-116：4.1ppt（+1.9%/y）、PFC-218：0.6ppt（+2.6%/y）、PFC-318：1.4ppt（+2.1%/y）であった。2011年から定常観測を開始したPFC-14については、落石岬で79.5pptが観測された（(2)節参照）。
- ⑥ **ハロン**：2011年のベースライン濃度と過去3年間の年変動率（波照間と落石における平均）は、H-1301：3.4ppt（+0.4%/y）、とH-1211：4.2ppt（-1.8%/y）であった。大気寿命の比較的短いH-1211が顕著な減少傾向を示した。

これらの観測を基に、波照間で観測されたベースライン濃度と各成分の放射効率（IPCC 第4次評価報告書⁴⁾の表2.14）を使って、ハロカーボンによる放射強制力が過去6年間にどのように変動したかを算出した。その結果、2005年～2011年のハロカーボン変動による放射強制力の増減を積算すると、ネットで+0.013W/m²を上回ることが分かった。その主な内訳は、HCFC増加による+0.012 W/m²、CFC減少による-0.007 W/m²、HFC増加による+0.007 W/m²で、その他のハロカーボンの増減による寄与は小さい。CFC減少の効果をHCFCとHFCの増加の効果が上回っている。今後、CFCの減少は続き、HCFC濃度は頭打ちになると予想されるので、HFCの動向がハロカーボン全体の放射強制力の増減を支配することになると考えられる。

(2) ハロカーボン高頻度モニタリングの高精度化

ハロカーボン測定法の精緻化に向け、異なる液相や固相を持つカラムについてハロカーボン類の分離特性を調べて最適カラムを検索すると共に、それらを組み合わせたマルチディメンジョナルGCによるハロカーボンの測定について検討を行い、新しいシステムを構築した。

分離能の検討を以下のカラムについて行った：(1)アルミナ（Al₂O₃/KCl）PLOT（0.32mm × 50m）、(2)GS-GasPro（0.32mm × 50m）、(3)InertCap-1（0.32mm × 5μm × 60m）。これら3種のカラムを従来のカラム（PoraBOND-Q）と比較したところ、アルミナPLOTカラム及びGS-GasProカラムは、完全にハロゲン化された炭化水素（CFCs、PFCs、Halon）について、PoraBOND-Qを凌ぐ良好な分離能を持つことが示されたが、トリクロロエタンなど一部の成分が分解することがわかった。InertCap-1カラムについては、四塩化炭素など高沸点成分の分離がPoraBOND-Qより優れていることがわかったが、HFC-23などの一部の低沸点成分に不十分な分離が認められた。そのため、分離不十分なピークを性質の異なるカラムに導入して再分離を行うマルチディメンジョナルGCによるハロカーボン類の測定について検討を行った（図2）。マルチディメンジョナルGCにおける複数本のカラムの切り替えには、圧力差で流路の切り替えを行うディーンズスイッチを用い、2nd検出器には、ハロゲン（フッ素を除く）に対して高感度な電子捕獲型検出器（ECD）

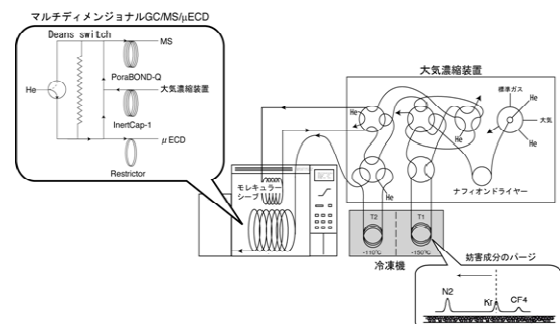


図2. マルチディメンジョナル GC/MS/mECD システムの概略図

を採用した。マルチディメンショナルGCによるハロカーボン類の分離特性については、膜厚5 μm 以上のInertCap-1とPoraBOND-Qを組み合わせることで、従来PFC-14の測定を行う上で妨害となっていたクリプトン (Kr) のピークをPFC-14と分離できることがわかった。

測定法の評価のため、再現性や直線性に関する実験や実大気の連続観測などを行った。その結果、相対標準偏差 (RSD) はほとんどの成分について2%以下であり、PFC-14 (RSD=0.23%) や四塩化炭素 (RSD=0.53%) などについてマルチディメンショナルGCを用いたことによる改善が認められた。試料量を1 Lとした場合の検出限界 (S/N=2) はMSで検出される成分については従来法と同程度であるが、ECDで検出される成分には改善が見られた (例えば、四塩化炭素の検出限界は約1pptから0.02pptに改善した)。

平成23年6月に、落石ステーションの測定システムを改修し、大気濃縮装置/マルチディメンショナルGC/MS/ECDシステムに更新した。当初、PFC-14の妨害成分となるKrとの分離を確認するためにKr ($m/z=84$) をモニターしていたことにより、PFC-14のピークの後ろにわずかなうねりが生じ、PFC-14のピークを精緻に積分する上で障害となっていた。9月末にKrのモニターを取りやめたことにより、この問題は解決された。観測されたPFC-14の変動は小さく、その濃度は約79.5pptで安定していた。この平均濃度は、落石と同緯度帯に位置するAGAGEステーション (Trinidad Head, 米国カリフォルニア州) における値 (2008年の大気濃度と平均的な経年増加率に基づく2011-2012年の推定値) と一致している。また、トリクロロエタンと四塩化炭素については、マルチディメンショナルGCによる分離とECDによる高感度な検出により、定量結果のばらつきが著しく低減され、より精緻な観測が可能となった。

(3) 国際共同研究による東アジアにおけるHFC、HCFC排出量の解析

(ノルウェー大気研究所、ソウル大学、中国気象アカデミー他との共同研究)

国際共同研究として、2008年時点で代替フロンを含むハロカーボン類の高精度・高頻度モニタリングを実施している東アジアの4ステーション (日本の波照間島と落石岬、韓国のGosan (33.3°N、126.2°E)、中国のShangdianzi (40.7°N、117.1°E)) の観測データを利用して、排出量分布のモデル解析を行った。対象ハロカーボンはHCFC-22, HCFC-141b, HCFC-142b, HFC-23, HFC-134a, HFC-152aの6成分とした。逆モデル解析は、ノルウェー大気研究所のDr. Andreas Stohlにより、ラグランジュ粒子拡散モデルFLEXPARTを使った20日間のバックワードシミュレーションに基づいて行われた。FLEXPARTのアウトプットとして得られるemission sensitivityは、そのまま逆アルゴリズムに取り込むことができる。観測値とモデルによる計算結果が最もよく合う排出分布を見つけ出す逆計算は、Stohl et al. (2009)⁵⁾と同様に行った。HCFCとHFCに対するa priori排出量については、文献情報とUNEP、EDGAR、日本のPRTRなどのデータベースおよび人口分布を組み合わせることで最適値を推定した。HCFC-22濃度の観測値と計算値の時系列 (3時間毎) を比較した結果、計算結果は最もリモートサイトにある落石の汚染エピソードをよく捉えており、両者の間に非常に高い相関がみられた (a prioriとa posteriori排出量を使った場合にそれぞれ $r_a^2=0.63$ 、 $r_b^2=0.70$)。波照間の場合にも相関は高く (特に、a posterioriの結果)、 $r_a^2=0.43$ 、 $r_b^2=0.63$ であったが、Gosanでは $r_a^2=0.25$ 、 $r_b^2=0.44$ 、Shangdianziでは $r_a^2=0.19$ 、 $r_b^2=0.26$ と、低い相関がみられた。

各成分について水平分解能が $1^\circ \times 1^\circ$ のa prioriとa posterioriの排出マップが得られた。HFC-23の排出分布の計算結果 (図3) にはこの化合物の主要な排出源であるHCFC-22生産工場所在地との対応も見られた。最適なa posteriori排出量を国/地域 (中国、北朝鮮、韓国、日本、台湾) 別に集計した結果、いずれのガスも中国からの排出量が群を抜いて大きく、東アジアにおける中国の寄与は67% (HFC-134a) ~ 93% (HFC-23) に上った。日本の寄与は3% (HFC-23) ~ 19% (HFC-152a) であった。また、グローバルな排出量見積もりと比べた場合でも、中国からの排出量は、HCFC-22: 17%, HCFC-141b: 22%, HCFC-142b: 17%, HFC-134a: 9%, HFC-152a: 7%, HFC-23: >50%と大きな割合を占めた。

日本のHCFC排出量については、HCFC-22とHCFC-142bのa priori排出量に2007年のPRTR (Pollutant Release and Transfer Register)

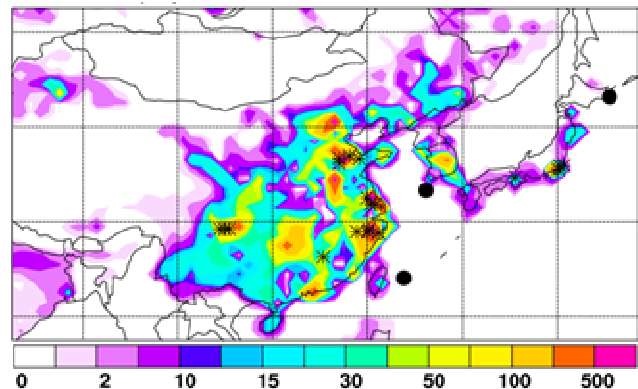


図3. 東アジアにおけるHFC-23排出マップの計算結果
米印は中国と日本における既知のHCFC-22製造工場所在地を示す (原図はカラーである。米印付近を中心に高めの地域が点在する。)

統計値を用いたが、最適a posteriori排出量としてこれらに近い値が得られたことから妥当な推定値であったと考えられる。一方、HCFC-141bのPRTR排出量は6.6kt/年で、本研究の結果に比べて6倍と過大な推定になっている。また、日本のHFC排出量については、HFC-23がGIOによる2007年の見積もり(19t/y)より相当多く排出されていること、HFC-134aについてはUNFCCCへの2007年報告値(2.8kt/y)と近く、HFC-152aはUNFCCCへの2007年報告値(1.6kt/y)に比べて半分近くになっていることなどが明らかになった。

(4) 東アジアにおけるPFC排出量分布の解析

波照間島及び落石岬のモニタリングステーションにおいて、大気中PFC類(PFC-116, PFC-218, PFC-318)の高頻度・高精度観測を実施し、観測されたデータ(～2009年9月)について、(3)節と同様の手法で、東アジア(中国、日本、北朝鮮、韓国、台湾)における国別排出量の推定を行った。A priori排出量分布は、UNFCCCによるインベントリ、全球のPFC排出量(後述)、人口分布などを組み合わせて推定した。

大気観測によって得られたPFC類ベースライン濃度の年増加率(年1～3%)を基にそれらの全球排出量を推定し、PFC-116、PFC-218、PFC-318についてそれぞれ 2.2 ± 0.3 kt/y、 0.4 ± 0.1 kt/y、 0.6 ± 0.2 kt/yを得た。観測データを逆問題法によって解析した結果、posterioriの排出量分布にはa prioriと比べて上海や台北などの都市域における排出量の増加が認められた。この結果は、都市域やその周辺に半導体工場などのPFC排出源が集積している実態を、波照間島と落石岬におけるモニタリングデータと逆問題法がうまく捉えたことを示していた。

計算されたa posteriori排出分布を各国毎に集計した結果、東アジア(中国、日本、北朝鮮、韓国、台湾)におけるPFC排出量は、PFC-116: 0.859kt/y、PFC-218: 0.310kt/y、PFC-318: 0.562kt/yと推定された。これらは、前述のグローバルなPFC排出量の40%(PFC-116)から75%以上(PFC-218、PFC-318)に相当したことから、東アジアはPFC類の非常に大きな排出域となっていることが初めて明らかになった。中でも中国は東アジア全体におけるPFC排出量の半分以上を占める最大の排出国であった。中国は世界最大のアルミニウム生産国であるが、これに由来するPFC類の排出(アルミニウム生産量の統計値と生産量当りのPFC排出量から推定)は、PFC-116排出量の約3割に過ぎず、中国からのPFC類の排出には半導体産業などアルミニウム産業以外の寄与が大きいと考えられた。中国に次いで排出量の多かった日本については、アルミニウム産業による排出は無視できるほど小さく、PFC排出量の大部分が半導体産業などに由来すると考えられた。一方、世界の半導体産業を担っている日本、韓国、台湾によるPFC排出量は、全世界の16%(PFC-116)から35%(PFC-218)と比較的小さいことがわかった。この結果は、これらの国の半導体産業による自主的なPFC削減プログラムが奏功していることを示唆する。

PFC-116とPFC-218については、その後、韓国のGosanステーションの観測結果に基づいて同様の排出量解析が報告されたが⁶⁾、国別排出量の推定値は本研究の結果と概ね一致している。

(5) カップルド輸送モデルと逆解法を用いたハロカーボン排出量経年変化の解析

波照間島と落石岬で観測されたHCFC(HCFC-22, HCFC-141b, HCFC-142b)とHFC(HFC-23, HFC-134a, HFC-152a)のデータを基に、ラグランジュ型モデルであるFLEXPARTとオイラー型輸送モデルNIES輸送モデルに基づくカップルド輸送モデル⁷⁾を使って、東アジア域におけるハロカーボン排出量とその経年変化を調べた。まず、EDGARによる排出量データベースver. 4.2と各化合物のOH反応速度定数およびOH濃度の分布(Transcom-CH₄ intercomparison⁸⁾)を用いて、グローバルな濃度変動を計算した。これを観測値のトレンドに合わせて補正して、バックグラウンド濃度を求めた。次に、波照間島における観測値からこのバックグラウンド濃度を差し引き、短期間の輸送と放出のみに関係する成分を抽出した。HCFC-22とその他の化合物のバックグラウンド補正濃度はいずれも高い相関を示し、その回帰線の傾きの平均を次の逆モデル解析においてHCFC-22以外の成分のa priori排出量を与える際に利用した。

HCFCとHFCのフラックスを推計するための逆モデル解析にはベイズ手法を用いた。ベーシックな手法では、マトリックスの対角行列を仮定するが、本研究では空間的なグラジエントを表現するための非対角項も考慮した。A prioriの放出分布については、まずEDGARのフラックスを検討したが、領域レベルのフォワードシミュレーションでよい結果が得られなかったため、CO₂の化石燃料排出の分布をプロキシパターンとして利用した。フラックスの逆計算は各成分、各年(2006～2010)について行った。HCFC-22のa prioriフラックスは(3)節の結果およびKim et al. (2010)⁹⁾の結果を基に70kton/yとして、他の化合物に対しては上で述べたHCFC-22に対する回帰直線の傾きからa priori排出量を決めた。逆モデルの範囲は東経100～130度、北緯20度～50度で、フラックスは年中一定であるとみなして、個々のグリッドと各年における平均フラックスを推定した。この逆計算されたフラック

スを国別に積算して、中国のフラックスを推定した。2008年の排出量について(3)節の結果と比較すると、HFC-23とHFC-152aについては、約2倍の放出量となり、その他については比較的よく一致した。HCFC-22の排出量は2008年に一旦減少したもののその後増加して2010年には75kton/yに上っている。一方、HFC-23とHFC-152の排出量は2007年の極大後減少傾向にあり、HCFC-141bとHCFC-142bは極大が1～2年遅れている。HFC-134aは2006年から2009年までに40%近く増えたのち、2010年には前年の20%近く減少している。各化合物の排出量のHCFC-22に対する比は、平均では、観測濃度の回帰線の傾きに近くなっているが、年によってはかなり異なる場合もあり、今後、さらに解析を進める予定である。各年のフラックス分布から、上海、台北、ソウルを含むグリッドが大きなHCFC-22排出地域であり、ソウルからのHCFC-22排出は2009年、2010年に増えていることなどが示唆された。

4. 考察

波照間島と落石岬におけるハロカーボン類の高頻度観測を続け、それらの東アジアにおけるベースライン濃度の経年変動を明らかにした。HCFC、HFC、SF₆の大気中濃度には引き続き顕著な増加傾向が見られた。これらのハロカーボン濃度の変動は2005年～2011年に少なくとも0.013W/m²の放射強制力の増加をもたらしたことを示した。マルチディメンショナルGC/MS/ECDシステムの導入によって四塩化炭素とPFC-14の測定精度を大きく向上させると共に、測定対象を拡張して最終的にPFC4種、HFC9種、SF₆、HCFC5種、CFC6種を含む31種類のハロカーボン高精度モニタリングを定常化した。観測と輸送モデルを組み合わせた国際共同研究では、東アジアにおけるフッ素系温室効果気体(HCFC-22, HCFC-141b, HCFC-142b, HFC-23, HFC-134a, HFC-152a)の排出量を、初めて国/地域(中国、北朝鮮、韓国、日本、台湾)別に推計した。いずれのガスも中国からの排出量が群を抜いて大きく、世界的に見ても相当の割合を占めていることが分かった。PFC-116、PFC-218、PFC-318についても、波照間/落石における観測結果とモデル解析により東アジアにおける国別排出量を推定し、中国の寄与が特に大きいことを明らかにした。さらに、NIES輸送モデルとFLEXPARTを組み合わせたカップルド輸送モデルを使って、中国からのハロカーボン排出量の経年変化を解析し、HFC-23, HFC-152a, HCFC-142bについては、2008年以降減少している可能性の高いこと等を示した。

本研究では、高精度の観測とモデル解析によって、東アジアにおけるハロカーボンの排出実態を明らかにすることができた。波照間・落石における観測データはグローバルなハロカーボン研究にとっても重要であり、各国からデータを求められている。今後も、高精度な観測を継続し、グローバル～アジア～日本におけるハロカーボン排出の対策に活かしていくことが必要である。

引用文献

- 1) WMO(World Meteorological Organization) (2007) Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2006, Global Ozone Research and Monitoring Project – Report No. 52, 572pp., Geneva, Switzerland.
- 2) 横内陽子, 齊藤拓也, 向井人史, 白井知子, 菅田誠治 (2009) 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. 環境省地球環境局総務課研究調査室著, 地球環境保全試験研究費(地球一括計上)平成20年度終了研究成果報告集, 環境省地球環境局総務課研究調査室, 245-299.
- 3) 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.
- 4) IPCC第4次評価報告書第1作業部会報告書
- 5) Stohl, A., Seibert, P., Arduini, J., et al. (2009) 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
- 6) Li, S., J. Kim, K.-R. Kim, J. Mühle, et al. (2011) Emissions of Halogenated Compounds in East Asia Determined from Measurements at Jeju Island, Korea, *Environmental Science & Technology*, 45(13): 5668-5675.
- 7) Ganshin, A., Oda, T., Saito, M., Maksyutov, S., et al. (2012) A global coupled Eulerian-Lagrangian model and 1 × 1 km CO₂ surface flux dataset for high-resolution atmospheric CO₂ transport simulations, *Geosci. Model Dev.*, 5, 231-243, 2012.
- 8) Patra, P. K., Houweling, S., Krol, M., et al. (2011) TransCom model simulations of CH₄ and related species: linking transport, surface flux and chemical loss with CH₄ variability in the troposphere and lower stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 12813-12837, doi:10.5194/acp-11-12813-2011.
- 9) Kim, J., S. Li, K.-R. Kim, A. Stohl, J. Mühle, S.-K. Kim, M.-K. Park, D.-J. Kang, G. Lee, C. M. Harth, P. K. Salameh, and R. F. Weiss (2010) Regional atmospheric emissions determined from measurements at Jeju Island, Korea: Halogenated compounds from China, *Geophys. Res. Lett.*, 37(12), L12801.