

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

(3) 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

独立行政法人産業技術総合研究所

環境管理研究部門 地球環境評価研究グループ 田口彰一・鷺見栄一

平成14～16年度合計予算額（予定） 15,798千円
（うち、平成16年度予算額 5,000千円）

〔要旨〕ハロカーボンの一種で冷蔵庫の冷媒として利用されているHCFC-22の東アジアからの排出量の推定を試みた。HCFC-22の濃度を産総研の大気輸送モデル(STAG)を用いて計算し、相模湾上空で採取された大気中濃度(2002年、月1回)および波照間島で観測された濃度(2004年、1時間間隔)を用いて考察した。STAGの濃度は相模湾の高度1-7kmの観測と5ppt以内で一致したが、高度1km以下の濃度については食い違いが見られた。波照間の観測には、季節変動、一週間程度の時間スケールの変動、一日程度のスケールの時間変動が含まれている。観測された濃度の時系列の低濃度側については、STAGの計算結果と観測の差は5ppt以下であった。このことからSTAGで用いた、発生源分布、全球排出量の経年変化、大気中OHラジカル量、HCFC-22とOHラジカルの反応速度、反応速度の計算に用いた気温などは妥当なものと判断した。STAGの低濃度は季節的な時間スケールのももの一日の時間スケールで発生するものも南半球大気が波照間を覆うことにより発生していた。一方180 ppt以上の最大濃度をともなう一日から一週間の時間スケールの高濃度現象は5月から12月までに18回検出されたがSTAGは観測濃度より低く、その差は最大で90pptに達した。18領域に分割した発生源を与えた計算結果から、高濃度事象をもたらす排出源の定性的な推定を行ったところ起源と思われる大都市を多くの場合複数特定することができた。また発生量が一定であると仮定した場合について、最小二乗法を用いた定量的な推定を試みたところ幾つかの地点の推定値は負となった。高濃度現象の中にSTAGの空間分解能では表現が困難な事例が含まれている可能性と、定常的な排出によってもたらされているわけではない可能性が示唆された。

〔キーワード〕ラドン222、HCFC-22、波照間、相模湾、逆問題

1. はじめに

ハロカーボン類は冷媒、洗浄剤、発泡剤などとして利用されている。モントリオール議定書によって成層圏のオゾン層を破壊する効果を持つCFC類が生産も使用も禁止されたために、その代替として広く利用されるようになった。ハロカーボン類は成層圏のオゾン層に対する影響は小さいが赤外線を吸収する性質があるために地球温暖化効果を持ち京都議定書に対応する国内対策の中でも大きな比重を占めている。

東アジアでは経済の発展と共にハロカーボン類を用いた冷蔵庫が急速に普及すると共に、ハロカーボン類を洗浄剤として用いた半導体工場等の稼働も考えられる。ところが東アジアではハロカー

ボンを継続的に観測する施設が無かったためにその排出実態を確認する手段は無かった。二酸化炭素をはじめとする大気中寿命が一週間を超える大気中微量成分の発生源は全球大気輸送モデルを用いればある程度の推定が可能となりつつある。東アジアにおける対流圏上空濃度と地上の連続観測は発生源の推定に拘束を与える有効な情報と考えられる。

2. 研究目的

このサブテーマでは業界団体などが報告したハロカーボン類の排出量とモニタリングにより観測される大気中濃度が矛盾しないかどうかを全球大気輸送モデルを用いて検討し、矛盾があれば排出量の分布を再検討する。このため輸送モデルの精度の検証および改良を第一の目的とした。また、観測と矛盾する計算結果から発生量を推定するための逆問題の定式化を第二の目的とした。また、従来の観測は米国海洋大気庁(NOAA)が継続的に実施している世界の5地点(アラスカ・バロー岬、コロラド・ニューオット尾根、ハワイ・マウナロア山、米国領サモア島、南極点)に限られていたが、サブテーマの1と2によって波照間島(北緯24度2分24秒、東経123度42分12秒)と相模湾(北緯35度00分、東経139度15分付近)で新たにデータが取得された。このデータを用いて東アジアでの排出量について定量的な知見を見出す事が第三の目的である。

3. 研究方法

輸送モデルの検証と改良は天然放射性物質であるラドン222を用いて行った。この物質は土壌や岩石の中のラジウム226から発生する気体で水に溶けることが無く半減期が3.8日と比較的短いために輸送モデルの検証に適している。大気中濃度の観測は大気圏核実験が盛んだった頃から行われており、地震予知の研究、天然放射線が室内で人体に影響を及ぼす問題を解決するため等として実施されてきた。発生源がラジウム226の含有率に依存するため土地が岩盤の露出した状態であるか、湿地であるかなどの影響を直接受けるものの、100km程度の水平スケールとなると土地の被服状態が多様であることから、一様と考えることは低次の仮定として許され、これまでも輸送過程の研究で用いられた⁽¹⁾。

これまでの検証実験から輸送モデルの検証のためには海岸線から離れた場所の一時間間隔の観測が必要なことがわかっていた⁽²⁾。海岸線の観測は発生源の設定方法に任意性が残されるため、つまりラドン222の発生源が輸送モデルの中では升目としてしか表現できないために、結果を輸送モデルの検証や改良に役立てることが困難であった。また、観測の時間間隔が長いと平均的な状態しか比較できないために観測とモデルの食い違いがあってもその原因を何に求めればよいのか不明のままとなるが多かった。本件サブテーマではドイツ南部の内陸部のフライバーク(Freiburg, 47° 59' 56" N, 7° 50' 52" E, 276m)とシャウインスランド(Schauinsland, 47° 54' 57" N, 7° 54' 29" E, 1205m)の観測データをBfS(Bundesamt für Strahlenschutz)より取得した。太平洋上の孤立峰であるハワイのマウナロア山(Mauna Loa, 19° 32' N, 155° 35' W, 3397m)の観測データは豪州ANSTO(Australian Nuclear Science and Technology Organization)より取得した。いずれも2000年から2002年で一時間毎の値である。発生源の強度は世界気象機構(WMO)が相互比較実験で用いた1毎秒1平方センチ当たり1原子という排出と米国・ニューメキシコ鉱山大学⁽³⁾の提案している月別排出量を用いた。

HCFC-22はサブテーマ1と2で観測される物質の中では比較的研究が行われている^(4,5,6)。これは発生源が産業活動に限られ、継続的な観測データが蓄積されており、また反応速度が良く分かっているからである。大気中ではOHラジカルと反応して消滅する。



この反応速度乗数kは温度Tに依存しJPL⁽⁷⁾の推奨値として

$$k = 1.05 \times 10^{-12} \exp(-1600 / T) \quad (2)$$

が与えられている。OHラジカルはSpivakovsky⁽⁸⁾が推定した月ごとの東西平均した値である。年毎の変動は考慮しない。このOHの分量が適当かどうかはメチルクロロフォルムを用いた予備実験で検証しようとしたがSTAGの結果は、観測と大幅に食い違った。この原因についてバイオマス燃焼に伴う発生、報告されていない工業起源排出量の推定⁽⁹⁾、気温や水蒸気量の変動に伴うOHラジカル量の経年変動などを検討したが、原因を特定するには至らなかった。

HCFC-22の排出分布は1990年の推定値として反応性塩素排出調査(Reactive chlorine emission inventory)が公表した値⁽¹⁰⁾を用いた。これは国ごとに推定した排出量を人口の分布に合わせて1x1度の地点に配分して作成された。概略の国別発生量は米国82Gg, ヨーロッパ連合35Gg, 以前のソ連21Gg, 日本13Gg, 中国2Gg, インド3Ggなどである。

HCFC-22の年間排出量は代替フロン環境適合性研究(Alternative Fluorocarbons Environmental Acceptability Study; AFEAS, <http://www.afeas.org>)が公表している1979から2001年の値を用いた。予備実験では2002年以降は2001年と同一とした。波照間の観測を用いた場合は、2002年以降の発生強度を未知数として解く。

HCFC-22の成層圏における消滅量はおよそ10hPa(30km)以上の高度で定率を与えた場合を予備実験として行ったが地表濃度に及ぼす影響が小さかったのでこの報告では対流圏の消滅のみを与えた場合に限定した。

全球大気輸送モデルは産業技術総合研究所が2001年から開発してきたモデル(Simulator of Tracer transport in the Atmosphere of Global scale; STAG)である。このモデルは水平1.125度の間隔で全球を覆う格子点を用いている。鉛直方向には地表から高度約60kmまでを60層に分割している。6時間の間隔(オプションで一時間間隔)で輸送を計算する。境界層の厚みを気象データから推定し地表から放出された物質は6時間の間にこの層の中に均一に拡散するという仮定を置いた。ヨーロッパ中期予報センター(ECMWF)の現業解析データとして公表されているものを境界層の高度、反応係数、輸送の計算に使用する。この気象データは鉛直に60層を持ち、最下層1kmに約10層配置されている。四次元データ同化と呼ばれる手法を用いることにより観測値の品質管理と物理的な整合性の検討を自動的に行って作成しているため、今日最も信頼性の置けるデータと考えられているものである。

実験は29種類行いその条件を表1に示した。発生強度の推定は高濃度事象をもたらす起源を定性的に解析する作業と、観測とSTAGの結果を定量的に評価する作業の二段階で行った。定量的な評価は観測値と事前推定値を用いたSTAGの結果の差の二乗和を極小にする最小二乗法を用いた⁽¹¹⁾。

具体的には18個の発生源が定常であるとして未知数(x)とした。5月1日のOUTCから12月31日の

18UTCまでの980個の値を観測値(y)とした。濃度のデータは5月12日から12月31日までのものであるが欠測時はモデルの結果を観測データとして扱う。最も単純な定式化はこの18個の発生源からの26年目の計算結果が発生強度に比例する関係を使って発生強度xが各時刻に作る濃度を行列Aを使ってAxと表現し、 $y=Ax$ となるようにxを解けばよい。実際は方程式のほうで980個で未知数が18個であるので最小二乗法で解くがこれは特異値分解法を使えば容易に解ける(12)。ところが得られる解はたいいていの場合現実には起こりそうにない大きな発生であったり吸収であったりする。これは観測に含まれる誤差、モデルの計算に含まれる誤差などが考慮されていないためである。そこでベイズ統計が登場する。

ベイズ統計は別名主観的統計法とよばれ、思い込みが解を決める。一見聞こえの悪いこの表現はこの手法が問題を解く側の知識と見通しに強く依存していることを明確に示している。今解いている問題の場合、HCF22が大きく吸収されている現象が報告されていないことから、負の発生源は解としてありえないという知識を取り込むことを意味している。問題を解く側のこのような意図は、観測の誤差や事前推定値の信頼性について任意の設定を行うことで結果に反映される。

$y=Ax$ を最小二乗法で解く枠組みを利用しながら観測の誤差(σ_c)、事前推定値(z)をその信頼性(σ_z)で拘束を与える手法として次の方法が用いられている⁽¹¹⁾。観測濃度の時系列をc、発生強度と波照間の濃度を対応させる行列をG、単位行列をIとして、

$$y = \begin{pmatrix} c \\ z \end{pmatrix} \quad (3)$$

$$A = \begin{pmatrix} G \\ I \end{pmatrix} \quad (4)$$

$$Y = \begin{pmatrix} X0 \\ 0 W \end{pmatrix} \quad (5)$$

としておいて、

$$J_{BLS} = (y - Ax)^T Y (y - Ax) \quad (6)$$

を最小にするように特異値分解法⁽¹²⁾を用いて解くことにより解xを得る。但しXの対角成分を $1/\sigma_c$ 、Wの対角成分を $1/\sigma_z$ としている。この手法はおのおのの観測が独立であること、発生源強度に相関が無いこと、また誤差が正規分布であることを前提としている。

発生源の強度が2004年のみを未知数とする場合、2003年と2004年の二年間を未知数とする場合、および2002年以降の3年間を未知数とする場合の三通りについて解いた。それぞれの問題はベースラインを実験9, 10, 11からいずれを選択するかで定式化した。例として2002年以降の三年間が未知数となる場合は実験9をベースラインとする。これは実験2-8の途中から2001年末の全球分布を取り出し足し合わせたものを初期値とし、発生源を与えないで走らせた三年目をベースラインとして選ぶわけである。こうすると2004年は実験12から29では3年目の計算値を組み合わせることで定式化できる。同様に二年間が未知数の場合は実験10であり、一年が未知数の場合は実験11である。

特異値分解法を用いる前にさらに変形し、実験12-29の和と観測の差を新たに観測値とする「差

形式」とした。また、それぞれ事前推定値はRECIの空間分布にAFEASの2002年の全球排出量を乗じた値であるが、「差形式」とすることにより領域ごとのRCEIの発生量からの差が事前推定値(z)となりその値は0である。事前推定値の不確定性(σz)として事前推定値つまり表1でRCEIの領域相当値と書いた値の最小値を与えた場合、その半分を与えた場合を比較した。この不確定性は排出量が多いと推定されている欧州などにとっては強い拘束条件となり、逆に一番小さい領域12の沖縄には100%または50%の誤差を認めるという設定である。

濃度の観測は1時間間隔で行われているのでモデルの観測を挟む6時間の範囲についてその平均と標準偏差を計算し、これを観測の誤差(σ_o)として与えた。観測がない場合については観測濃度として実験2-8の和の濃度を与え、その場合の観測誤差は全観測期間の標準偏差の最大値(36ppt)とした。

番号	初期値	発生源分布	発生量	積分期間	気象
1	0	RCEI全域	1979-2002(以降同じ)	25年間	2002
2	0	ヨーロッパ	1979-2002(以降同じ)	26年間	2004
3	0	ユーラシア	1979-2002(以降同じ)	26年間	2004
4	0	中国	1979-2002(以降同じ)	26年間	2004
5	0	日本	1979-2002(以降同じ)	26年間	2004
6	0	台湾	1979-2002(以降同じ)	26年間	2004
7	0	北米	1979-2002(以降同じ)	26年間	2004
8	0	熱帯/南半球	1979-2002(以降同じ)	26年間	2004
9	実験2-8の2001年末	0	0	3年間	2004
10	実験2-8の2002年末	0	0	2年間	2004
11	実験2-8の2003年末	0	0	1年間	2004
12	0	1. EUR	RCEIの領域相当量	3年間	2004
13	0	2. IND	RCEIの領域相当量	3年間	2004
14	0	3. MAN	RCEIの領域相当量	3年間	2004
15	0	4. NJP	RCEIの領域相当量	3年間	2004
16	0	5. INN	RCEIの領域相当量	3年間	2004
17	0	6. BEI	RCEIの領域相当量	3年間	2004
18	0	7. KOR	RCEIの領域相当量	3年間	2004
19	0	8. WJP	RCEIの領域相当量	3年間	2004
20	0	9. EJP	RCEIの領域相当量	3年間	2004
21	0	10. CHO	RCEIの領域相当量	3年間	2004
22	0	11. SHA	RCEIの領域相当量	3年間	2004
23	0	12. OKI	RCEIの領域相当量	3年間	2004
24	0	13. KUN	RCEIの領域相当量	3年間	2004
25	0	14. HON	RCEIの領域相当量	3年間	2004
26	0	15. TAI	RCEIの領域相当量	3年間	2004
27	0	16. SAS	RCEIの領域相当量	3年間	2004
28	0	17. NAM	RCEIの領域相当量	3年間	2004
29	0	18. SIU	RCEIの領域相当量	3年間	2004

表1. STAGで行った実験の一覧。初期値、発生源の地理的分布。排出量、積分の期間、用いた気象データを示している。

4. 結果・考察

まず、STAGの精度の確認と改良の結果から述べる。ドイツのフライバーグにおけるラドン222の計算結果と観測濃度の差を境界層の厚みの関数として調べたところ、境界層が薄い場合にSTAGの濃度が観測より高くなることが分かった。境界層が厚い場合にはモデルと観測には大きな差は見出せなかった。夜間の安定層形成時に計算される薄い境界層が輸送計算の行われる6時間の間継続するとする点に問題があると判断した。対策として境界層の厚みには最小値があるとしてこの値以下にはしないようにした。発生の強度は二つの例について計算し、境界層の最小値としてはモデルの2層の場合から6層の場合までを試したところ発生源強度と用いる気象データの年によって若干の差はあるものの3層或いは4層とした場合に系統的な差が最小となることが分かった。これより小さくすると計算濃度は観測より高くなり、逆に大きくすると計算濃度は観測より低くなる。

シャウインスランドの計算では標高に相当するモデル高度は下から10番目であるが観測との系統的な差が最小となるのは9番目と10番目の中間であった。従来のモデルではこのように多くの層を境界層に設定することができなかつたので、このデータを利用することは困難であったが、STAGは60層の鉛直層のうち最下層1kmに10層程度を持っているためこのような比較ができた。シャウインスランドでは風向・風速などでも選択する層を変更し、STAGを観測に近づけることを試みたが有効な方法は見つからなかった。

ハワイのマウナロアにおける計算濃度は観測値より低いことが多かった。マウナロアの観測点は標高3397mの地点にあるが、STAGの地表は約200mとなっている。STAGが推定する境界層の厚みと観測値-計算値の関係をみると、フライバーグの場合とは逆に境界層の厚い場合には差が大きくなっていることが分かった。このことから観測値は島の上で混合層が発達するような場合もしくは海陸風系が発達するような場合に島から放出されたラドン222を観測していることが推定された。このような混合層が発達する場合を取り除くと観測と計算結果はかなり近づくが一致するまでには至らなかった。WMOの発生源とニューメキシコ大学の発生源では後者のほうが近くなった。また、フライバーグの観測から調整した最低境界層の指定をするとさらに近くなった⁽¹³⁾。

従ってSTAGの精度はラドン222に関する発生量の推定誤差の範囲では現実の輸送と拡散をかなり良く表現しているとおもわれるが、当然限界もある。特にマウナロアにおいては春に高濃度が観測されているが、STAGでは再現できていないことがあった。フィラメント状の細い帯となって運ばれてくるものや、薄い層構造の分布で運ばれてくるものが再現できていないのではないかと考えられる。このことは波照間の観測の解釈でも注意する必要がある。

次にHCFC-22の大気中における分布を計算した結果を述べる。

全球で積分した量がどのような関係にあるかを見てみる。図1は実験1の結果をもとに、全球積分した排出量、消滅量、大気中全量、大気中寿命などを示したものである。排出量はAFEASの公表している値で急速に増加した後1997年頃から減少に転じている。全球平均した寿命は大気中総量を消滅量で割って求めた値であり、およそ13年である。消滅量はモデル大気中でのHCFC22の分布と反応係数、およびOHラジカルの分布の相関によって決まるので、積分期間の初期のほんの僅かの間はそれ以降とは異なる分布となるが、その後はほぼ一定に推移している。2003年は積分開始から25年経過し寿命の2倍に達しており、大気中濃度分布は初期条件にほとんど依存しないものと思われる。しかしながら発生と消滅が均衡する状態には達しておらず大気中総量は増大し続けている。

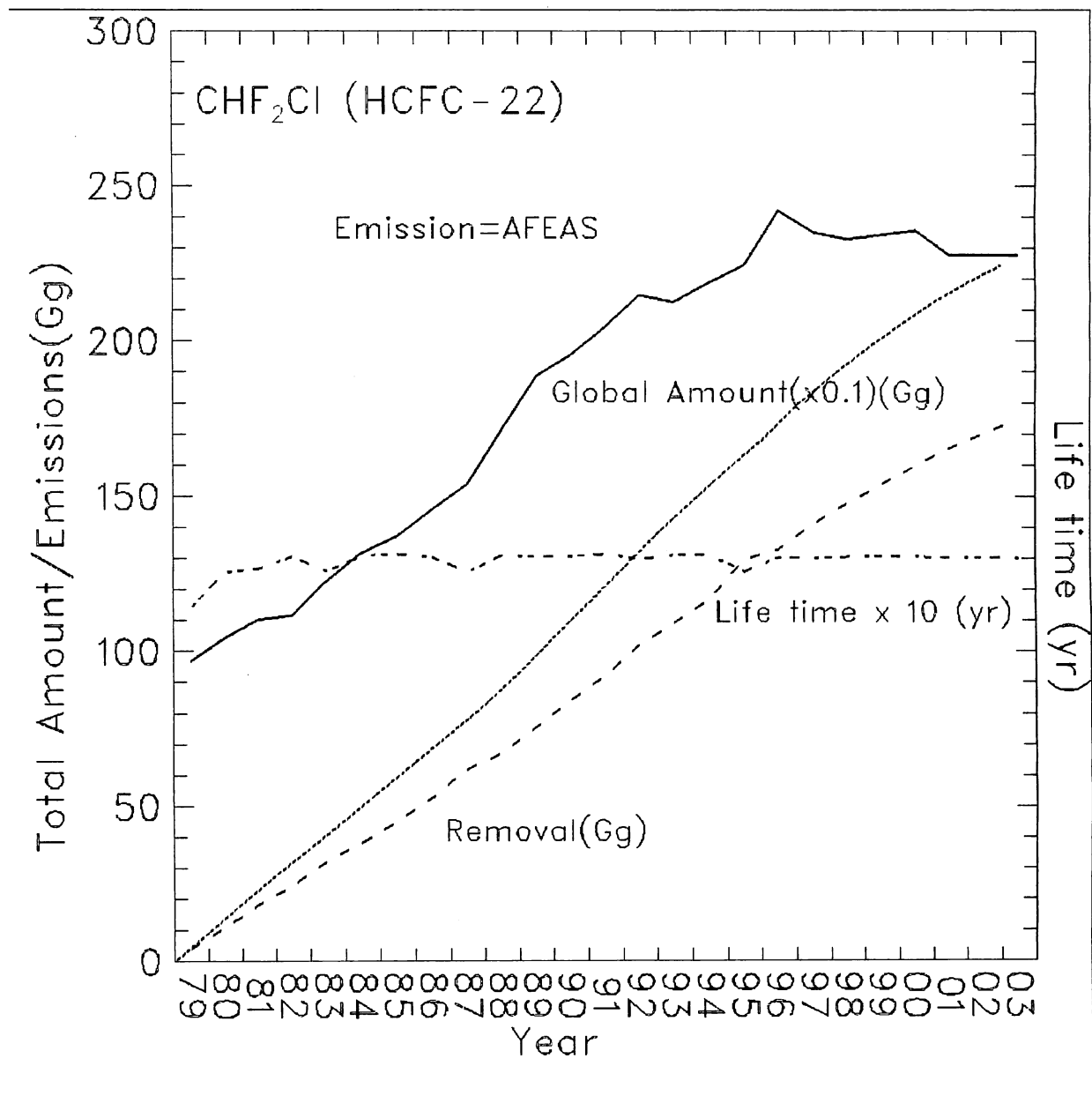


図1. 全球積分したSTAG濃度の収支。実験1の1979年から2003年までの結果。大気中総量は左の目盛りの10倍。寿命の目盛りは10分の一となる。

実験1の2002年4月から12月の相模湾上空濃度と比較したのが図2である。相模湾の上空濃度はこの課題のサブテーマ(2)で実施されたもので観測の詳細はそちらを参照されたい。図2では月に一回の割合で実施された観測日時のSTAGの濃度を示している。観測地点はモデルの格子点の間にあるためどのポイントの濃度と比較するか一意的には決まらない。そこで付近二箇所の濃度を示している。観測時刻も日本時間の正午の前後に30分程度をかけた行うため、午前9時の次は午後3時の濃度しか計算しないSTAGの濃度とは一意的な対応が無い。このため二つの時刻の濃度を示した。結果を見ると高度1kmより上空ではSTAGの濃度は地点に拠らず、時刻に拠らず一定で観測とも一致している。高度1kmより下層では地点と時刻によるSTAG濃度に食い違いがありどの地点、どの時刻

が対応するかは定かではない。この比較の結果として実験1で用いた発生源分布、年別発生総量、消滅量、大気の輸送量は観測と矛盾しないと考えることができる。

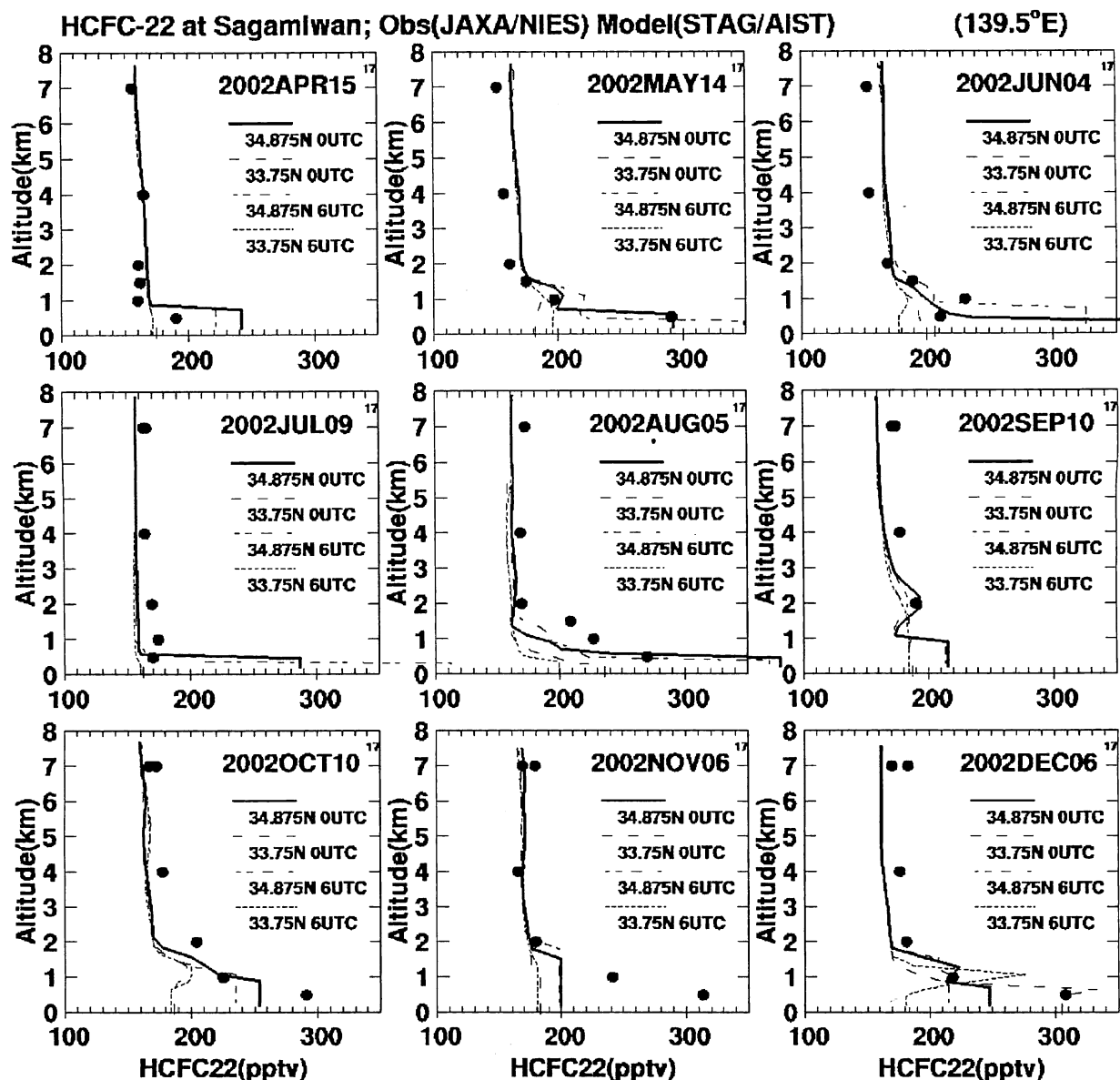


図2. 相模湾上空のHCFC22濃度とSTAGの計算した濃度。実験1の2002年の結果。観測が行われるのは日本時間正午前。STAGの計算結果は午前9時と午後3時を相模湾付近の2点で表示。

図3は2004年の5月から12月までの波照間で観測されたHCFC22の濃度とSTAGの計算結果を比較したものである。最上部には波照間観測点に接近した台風を示した（この年は本州に上陸した台風の数が記録的に多かった）。+印は1時間ごとの観測濃度で、これと重なる太い曲線は全領域から排出された結果を示している。一見して分かるようには6月下旬から8月上旬にかけては比較的低濃度の期間が持続し、その期間については観測とSTAGが5ppt以上はなれた状態が継続する場合は見当たらない。最大値が180ppt以上となる場合を高濃度事象と定義して、その最大値の時刻を縦の点線で示した。この事象は短期間で断続しているものを除いて18回ありSTAGの濃度は観測より低く、

最大で90ppt程度の差(4番, 16番)が認められる。

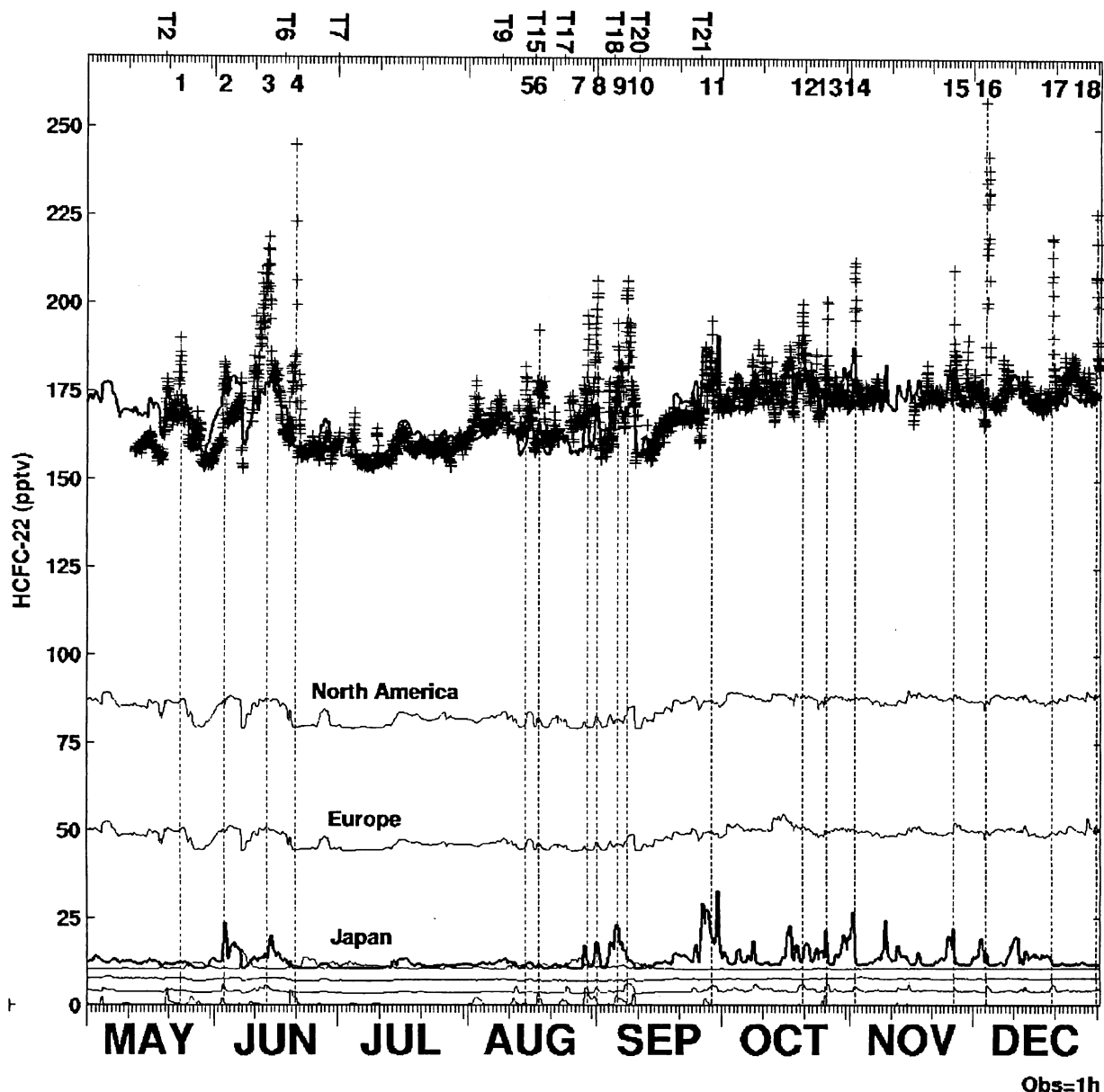


図3. 波照間における観測値(+)とSTAGの結果(実線)。表1の実験2-8およびその総和。観測濃度が180pptを超える場合を高濃度現象として上部に番号を示した。最上部は波照間に接近した台風。

下部に示した曲線は全球を7つの地域に分割した領域からの寄与を示しており、北米(North America)、欧州(Europe)が大きな割合を占めこれは排出量の比率そのものである。ここに混じった太い実線は日本(Japan)からの寄与を示している。その下の細い曲線はその他の4つの地域からの寄与であるがこの詳細については地域分割を変更した実験で検討する。この図では観測の変動幅にSTAGの濃度が埋もれておりもはや手の施しようも無いほどに観測とモデルが一致していることが分かる。問題として設定できることは時々現れる高濃度のイベントである。その解析に移る前に低濃度の現象がどのようにして生じているかを地表付近の濃度分布で見ておく。

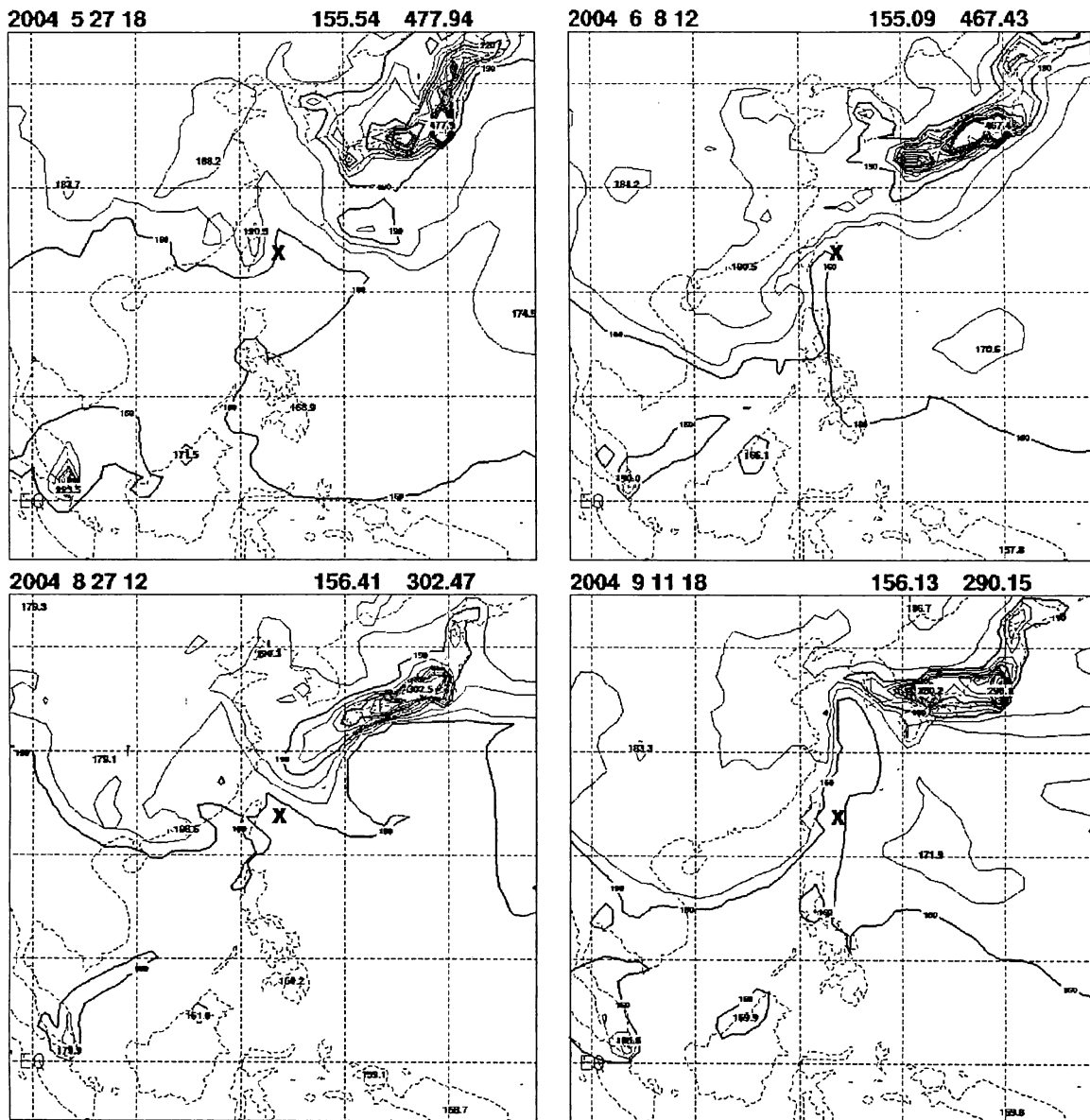


図4. 波照間でHCFC-22の低濃度の観測された時のSTAG(実験2-8の和)。波照間はx印。各図の左上に年、月、日、UTCを記載。等値線の間隔は10ppt.

波照間で短期間の低濃度が観測される場合の地表濃度(図4)は波照間の北側には大きな濃度勾配があり、南側には一様な濃度が広がっていることがわかる。特に6月8日や9月11日の例では低濃度の部分が細い帯のようになって北側に張り出し波照間を覆っている。いずれも台風が接近して強い南風があったものと考えられる。

観測値がSTAGを上回る事例について東アジアの人口密集地の影響を分析するため全球の分割を18個に変更した。東アジアの分割を図5に示した。

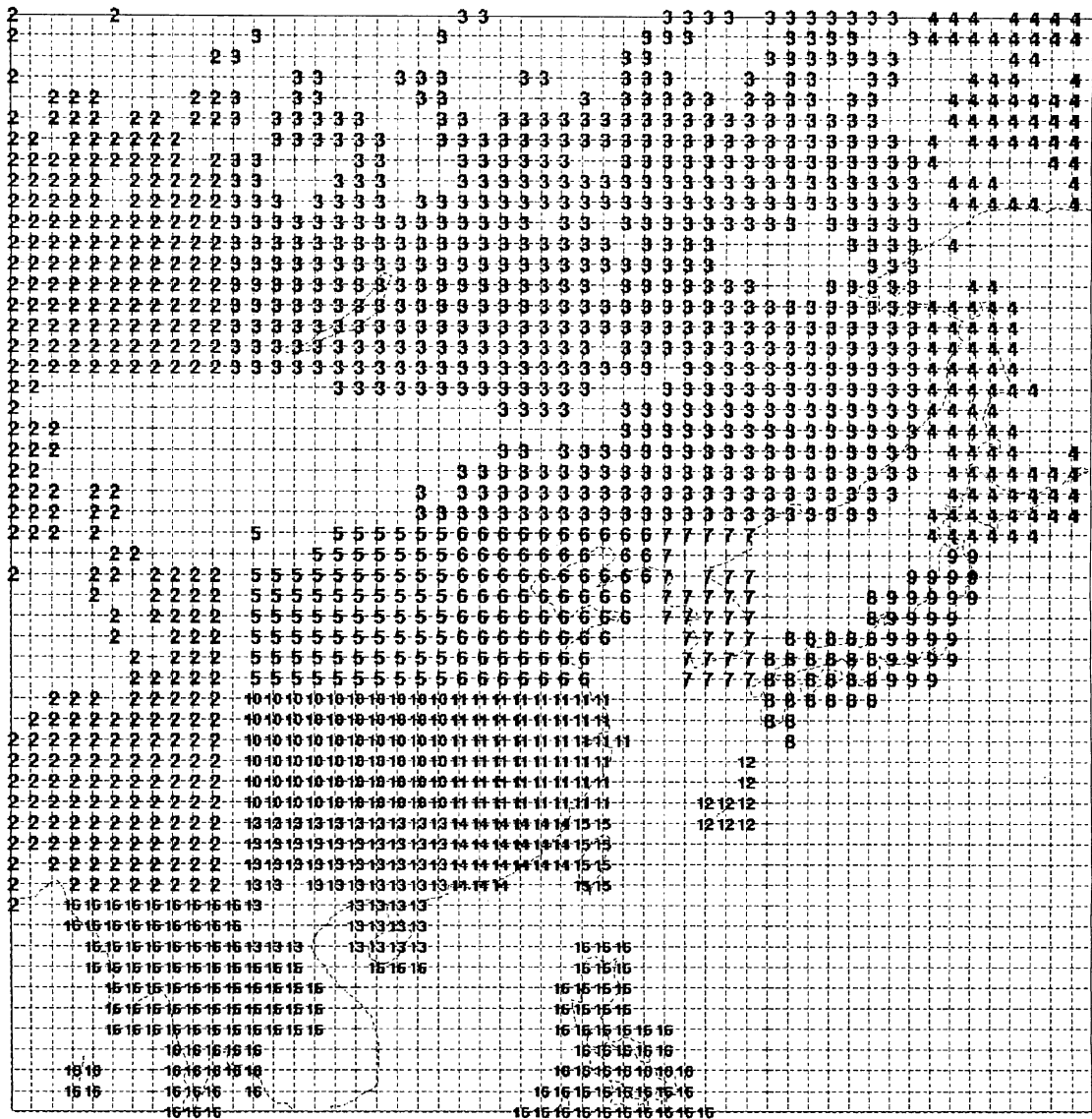


図5. 東アジア域の領域分割。ここに示していない領域については表1を参照。

18に分割した発生源から一定の強度で放出したHCF-22が波照間観測点に作成する濃度を図6に示した。計算は2004年1月から36ヶ月間行ったがここでは5月から12月までを示している。図6では図3と異なり領域別の強度をその最大値で正規化しているために微弱な濃度変化を誇張して表現していることに注意する必要がある。これは潜在的な発生源の可能性を見落とさないため大きな発生源の効果を無視する事は目的ではない。また、この図は一定の放出量を与えた場合の潜在的な観測濃度を示しているだけで、例えば発生が一時的な場合はここに示した濃度上昇は現れない場合もある。観測された高濃度現象と今回の18個の領域別発生源の寄与を比較すると、一つ一つの高濃度現象が複数の地域の排出の可能性があることが分かる。

次にこの18領域の排出実験を用いて最少二乗法によってSTAG濃度と観測を一致させることを考えた。その結果は表2に示す。

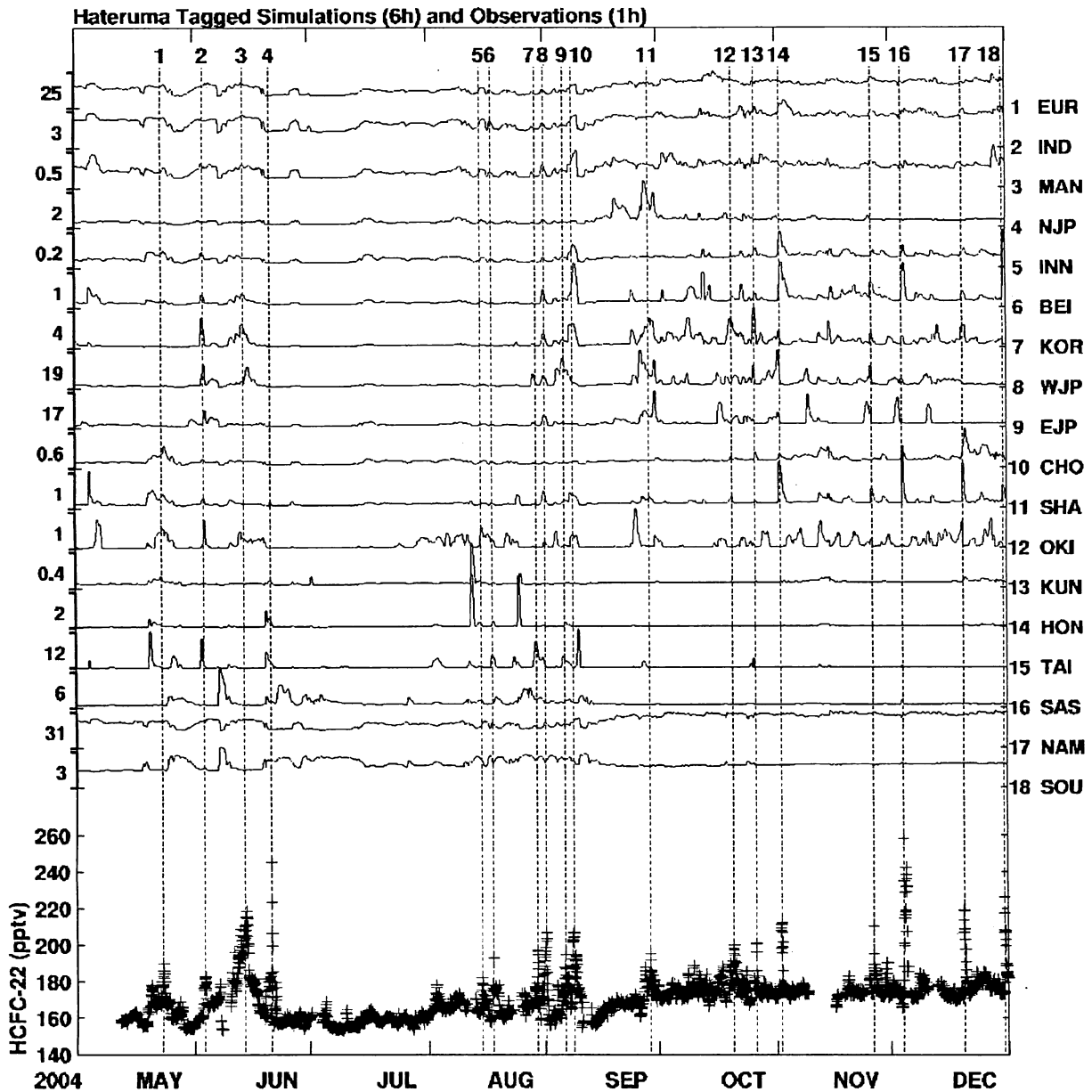


図6. 波照間の観測濃度とSTAG(実験12-29)の濃度。上部には実験12から29の結果の一年目の五月から十二月までをその期間の最大値で正規化して示している。最も縮小して示しているのは北米(17)であり、最も拡大して示しているのは内モンゴル(5)である。高濃度現象については図3と同様に最上部に番号をつけて示した。

波照間のデータのみを用いたので波照間から離れたところはまとめてしまったため事前推定値が領域ごとに大きく異なり最大値(領域17)と最小値(領域12)の間に3桁の開きがある。領域7は朝鮮半島を含む領域であるが、事後推定値が負となる傾向がある。これは図6の7. KORの時系列で10月と12月の観測で高濃度が見えない時に7. KORが高濃度を示しているからではないかと考えられる。北京を中心とする領域6の発生は多めに、日本の発生源を表す領域8, 領域9は小さめに出る傾向があるが、いずれも事前推定値の信頼性やベースラインの採り方に大きく依存しておりさらに検討する必要がある。

	事前推定値	1-1	1-0.5	2-1	2-0.5	3-1	3-0.5
1	66338	69639	68198	62769	64382	64186	65390
2	10901	14985	21914	7408	9063	8850	10064
3	1075	3115	2719	-4308	-1750	-2842	-655
4	1633	3057	3019	-2087	-1331	-1109	-318
5	236	3647	2556	-2682	-1345	-1547	-383
6	697	1541	2417	1791	333	2027	963
7	1314	-747	13	-330	-804	-342	-574
8	6493	614	1698	1081	1323	1451	1766
9	7442	4815	6424	1728	2621	2384	3511
10	501	7737	4314	4166	758	4685	1594
11	551	59	1483	-872	-603	-693	-71
12	117	1619	1995	1424	1324	1453	1444
13	262	6799	3342	-823	-663	882	455
14	352	5726	3789	183	-157	1135	803
15	573	491	603	252	266	300	339
16	2861	13306	11438	5023	4239	6740	6068
17	118543	123210	120633	116937	117267	118623	118312
18	12850	22667	16088	14941	12928	17950	14333
計	232469	282280	263644	206600	207853	224113	223041

表2. 18領域別の事前推定値および事後推定値。3種類のベースライン(1-, 2-, 3-)の選択と事前推定値の信頼性についての2種類の設定(1, 0.5)に対する逆問題解。単位は、年間トン数。

5. 本研究により得られた成果

STAGを用いて計算したHCFC22の濃度と波照間の連続観測を比較することにより今日までに報告された、発生源分布、年間排出量、OHラジカル量、OHラジカルとの反応速度、気温が平均量としてはほぼ妥当なものであることが分かった。一方波照間で観測された高濃度事象のほとんどはその起源とおもわれる大都市を特定することはできるものの定量的には説明できなかった。その原因は高濃度事象の空間スケールがSTAGの取り扱える空間スケール以下となっていることが考えられる。これは大気の輸送では一般的に生ずるフィラメント化と呼ばれる現象で、フィラメントの形状で拡散する微量成分の濃度をその消滅まで正確に再現することは現時点では困難である。そのほか、発生源が実際は定常ではなく工場の稼動状態などに影響されている可能性もある。大気中での拡散がフィラメントの形状で広く広がることから大量の定常的な排出であれば複数の地点で一時間単位の連続観測から検出することは可能であり、このような観測点を増やすことにより解決できると考えられる。

6. 引用文献

- 1) Jacob, D. J. et al., Evaluation and intercomparison of global atmospheric transport models using 222 Rn and other short-lived tracers, J. G. R., 98, 5953-5970, 2004.
- 2) Taguchi, S. et al., Evaluation of the atmospheric transport model NIRE-CTM-96 by using

measured radon-222 concentrations, *Tellus*, 54B, 250-268, 2002.

- 3) Schery, S. D., and Wasiolek, M. A., Modeling radon flux from the earth's surface, Radon and Thron in the human environment, Proceeding of the 7th Tohwa University International Symposium (eds. A. Katase and M. Shimo). World Scientific, Singapore, 207-217, 1998.
- 4) Montzka, S. A. et al., Global tropospheric distribution and calibration scale of HCFC-22, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 703-706, 1993.
- 5) Midgley, P. M. and A. McCulloch, 1997, Estimated national releases to the atmosphere of chlorodifluoromethane (HCFC-22) during 1990, *Atmos. Environ.*, 31, 809-811.
- 6) McCulloch, A., et al., Release of refrigerant gases (CFC-12, HCFC-22, and HFC-134a) to the atmosphere, *Atmos. Env.*, 37, 889-902, 2003.
- 7) Jet Propulsion Laboratory, Chemical kinetics and photochemical data for use in atmospheric studies, Evaluation number 14, JPL Publication 02-35, 2003.
- 8) Spivakovsky, C. M., et al., Three-dimensional climatological distribution of tropospheric OH: Update and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 105, 8931-8980, 2000.
- 9) Krol, M. C., et al., Continuing emissions of methyl chloroform from Europe, *Nature*, 421, 131-135, 2003.
- 10) Aucott, M. L., et al., Anthropogenic emissions of trichloromethane (chloroform, CHCl₃) and chlorodifluoromethane (HCFC-22): Reactive Chlorine Emissions Inventory, *J.G.R.*, 104, 8405-8415, 1999.
- 11) Enting, I. G., Inverse problems in atmospheric constituent transport, Cambridge University Press, pp392, 2002.
- 12) Press W. H., et al., Numerical recipes in Fortran, The art of scientific computing, second edition, Cambridge University Press, pp963, 1992.
- 13) Taguchi, S., et al., Minimum mixing height in a global atmospheric transport model and its implications on the emanation rate of radon-222, (submitted to *Tellus*).

7. 国際共同研究等の状況

国際共同研究との位置付けは行っていないがラドン222の観測データをドイツ放射線防御研究所および豪州核研究所の好意で使用を許可された。ラドン222を大気の輸送モデルの検証に用いることについては世界気象機構(WMO)の全球観測監視(GAW)の枠組みで行われたワークショップ(2003年6月フランス)において議論した。その成果はWMO-Global Atmospheric Watch No. 155 (WMO TD No. 1201)として2004年3月に出版された。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<学術誌(査読あり)>

特に記載すべき事項は無い

<学術誌（査読なし）>

特に記載すべき事項は無い

(2) 口頭発表（学会）

① 田口彰一、横内陽子、藤沼康実：日本気象学会2002年春季大会(2002)

「波照間の観測に基づくハロカーボン類の排出分布の推定可能性について」

② S. Taguchi; IGAC(2002)

“Transport of SF6 and Rn-222 in a global atmospheric transport model”

③ 田口彰一；第13回大気化学シンポジウム(2003)

「対流圏OHラジカルの経年変動」

④ S. Taguchi; ASAAQ(2003)

“Emissions of Methyl Chloroform inferred from a global atmospheric transport model”

⑤ 田口彰一、横内陽子、稲垣敏治；日本気象学会2004年秋季大会（2004）「相模湾上空で観測されたHCFC-22の濃度について」

⑥ 田口彰一、横内陽子、；第15回大気化学シンポジウム(2005)「全球大気輸送モデルで計算した波照間島のHCFC22の濃度」

⑦ Yokouchi, Y., H. Mukai, T. Shirai, T. Shirai and S. Taguchi, NCGG (2005), “In situ monitoring of HCFCs, PFCs, SF6, CFCs, and HCFCs at a remote station in east Asia.

(3) 出願特許

特に記載すべき事項は無い

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

特に記載すべき事項は無い

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項は無い

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

本研究では、高頻度観測データと大気輸送モデルの結合によって、東アジアの大都市から排出されるハロカーボンの定量的解析への足がかりを作った。今後この手法を発展させて、京都議定書に対応したHFC、PFC、SF₆削減のための政策決定に寄与することが期待できる。