

課題代表者：(独)国立環境研究所化学環境領域主任研究官 横内陽子(yokouchi@nies.go.jp)

1. 研究の目的

フロン等の長寿命ハロカーボン類は強力な温室効果気体であり、その温暖化への寄与は二酸化炭素(CO₂)全量の約25%に匹敵している(IPCC第三次評価報告書2001)。このうち、HFC(ハロフルオロカーボン)、PFC(ハロフルオロカーボン)とSF₆(六フッ化硫黄)については地球温暖化防止の観点から京都議定書によって先進国における削減が求められている。わが国では、二酸化炭素については様々な観測・動態解明研究が行われているが、PFC等ハロカーボン類の系統的な観測研究は皆無で、グローバルなモニタリングプログラムでもアジアが空白域となっている。このような状況のもと、高精度のハロカーボンモニタリングシステムを開発し、東アジア/日本におけるハロカーボン排出の実態解明とそのトレンド把握の基礎を確立することが必要になっている。本研究の目的は、東アジアの影響を検出するのに適した波照間観測ステーションにおいてHFC等ハロカーボン類の連続観測を実施すると共に日本沿海上空における航空機観測を実施して東アジア/日本におけるこれらのガス濃度のトレンドとその影響を把握し、さらに化学輸送モデルを用いた解析によってハロカーボン排出量を推定することである。

2. 研究の方法

2.1 波照間におけるハロカーボンの連続観測と発生源解析に関する研究

HFC、PFC、SF₆を含むハロカーボン類をガスクロマトグラフ/質量分析計によって自動連続測定するための大気濃縮装置開発を行った。遠隔地の使用に対応するため寒剤の代わりに極低温冷凍庫内を利用し、またトラップのプログラム昇温によってこれまで分析が困難であったPFC類の測定を可能にした。さらに通信ネットワークを利用したりリモート制御システムを構築し、無人ステーションに設置する装置の調整を可能にした。2004年2月に、本装置を波照間観測ステーションに移設し、観測タワー(地上40m)から取り込んだ大気中ハロカーボンの毎時間連続測定を開始した。測定対象化合物は、PFC 3種、HFC 4種、CFC 6種、HCFC

5種、SF₆、ハロン2種、その他8種として、1時間毎に測定を行った。測定開始後、MSの感度はわずかず低下したが、直線的な変化であるため、定量には問題なく、2-3週間に1回程度行うMS調整により感度を回復させた。

3.2 日本沿岸上空におけるハロカーボンの鉛直分布モニタリングに関する研究

航空宇宙技術研究所の所有する小型航空機(ビーチクラフト機)を利用して毎月1回相模湾上空の大気を高度500m~7000mで6サンプル採取した。狭い機内でサンプリングを簡便にするため、バルブの開閉はリモート制御とし、ライン内のページ/サンプリング操作を自動化した。サンプル中ハロカーボン類の分析は低温濃縮/GC-MSを用いて行った。

3.3 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

産総研の大気輸送モデル(STAG, 1.125x1.125, L60)を気象データで運用しHCFC-22(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)の濃度を計算した。フラスコサンプリングにより波照間と相模湾上空で観測された大気中濃度および米国海洋大気庁(CMDL)が観測した濃度と比較した。HCFC-22の発生源分布には反応性塩素排出量調査(RCEI)の値を、年間排出量には代替フロン環境適合性試験(AFEAS)の値を用いた。対流圏の消滅過程は月別に東西平均で推定したOHラジカルとの反応を使用し、成層圏での消滅は約10hPa以上で定率として計算を行った。

3. 研究の成果

3.1 波照間におけるハロカーボンの連続観測と発生源解析に関する研究

新たに開発した装置によりPFC、HFC、SF₆を含むハロカーボン類約30成分の高精度自動連続測定が可能になった。検出限界(S/N=2)は、HFC-32を除く全ての対象化合物について1ppt以下であり、HFC-32の検出限界は約1.7pptであった。本年2月に本装置を波照間に設置して、完全自動化運転を

開始した後も良好に作動し、5回のサンプル分析をはさんだ標準ガス濃度の変化は-0.2%～-0.4%以内であった。

観測開始から2004年9月末までの間に約4000データが得られた。そのうち、2004年5月～9月に観測されたHFC-134a、HFC-23およびテトラクロロエチレンの濃度変化を例として図1に示す。これらの濃度変動と気団のバックトラジェクトリー解析結果との比較により、波照間で観測される高濃度ハロカーボンは、上海、台北などの大都市の影響を受けたものであることが明らかとなった。一方、気団が太平洋側から流入した時期には、バックグラウンドレベルの濃度で推移していた。

今後、測定体制をさらに充実させて、東アジアにおける地域別ハロカーボン排出量解析とアジア域における濃度トレンド把握のための観測を継続する。

3.2 日本沿岸上空におけるハロカーボンの鉛直分布モニタリングに関する研究

相模湾上空で観測されたハロカーボン濃度は境界層内にある高度500～2000mでは大きな変動を示したが、自由対流圏にある高度4000～7000mではほぼ一定であった。この自由対流圏における観測データから、HCFC-141bとHCFC-142bの濃度増加は鈍化し、HFC-134aは直線的な増加を続け、2003年の間に約16%増えていることが分かった。また、PFC類やHFC-23、HFC-32のような極低沸点の代替フロン類について、日本上空における最初の観測値を得た。

西日本を縦断した気団が流入した2003年8月22日に観測された鉛直分布を基に、高度7000mと500mにおける濃度差とHCFC-22国内排出量の報告値（年間9.1キロトン）を基準にした計算を行い、

各ハロカーボン類の国内排出量を求めた（HFC-134a：4.7キロトン/年、SF6：150トン/年など）。この排出量に地球温暖化係数（GWP）を乗じて、温室効果気体としての排出量を計算したところ、対象としたPFC類とHFC類の排出量はそれぞれCO₂換算400万トン/年、900万トン/年に匹敵することが分かった。京都議定書の規制対象となっていないCFCとHCFCの排出量（CO₂換算）はこれらを大きく上回っており、温室効果気体の排出源として現時点ではCFC、HCFCの影響が大きいことが示された。航空機による鉛直分布の観測に基づく排出量解析は二酸化炭素や他の重要な温室効果気体の排出量を推定する上でも有用なツールになると考えられる。

3.3 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

HCFC-22を対象に、1979年1月1日を初期として全球でゼロの濃度から積分し24年目の濃度を解析したモデルの計算結果とフラスコサンプルによる観測値の差はアラスカのバロウ岬（NOAA報告値）および相模湾の1km以下以外は5pptv以内となり、STAGモデルの有効性が確認された。しかし、バロウ岬の濃度は計算値が観測値を約18ppt上回り、相模湾の下層濃度は観測値を約180pptv下回ることがあった。相模湾の下層濃度の食い違いはモデルが表現できない局地循環と関連していると考えられたが、アラスカの濃度が観測と一致しないことから、バロウ岬の濃度が観測と一致するように発生源分布に修正を施す必要があることが分かった。今後、サブテーマ1で進められるハロカーボンモニタリングの成果を基に、アジア域における排出源解析に取り組む。

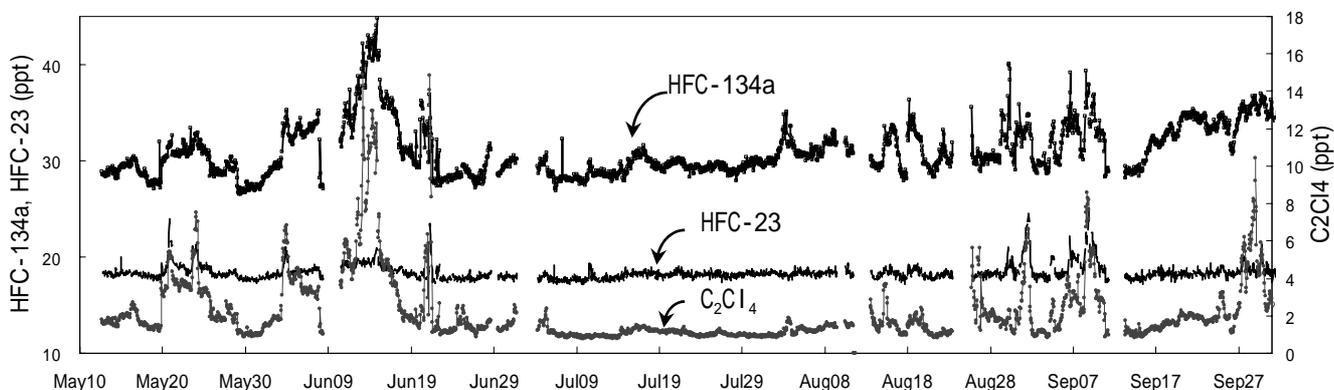


図1 . 波照間における大気中 HFC-134a、HFC-23 と C₂Cl₄ の濃度変動（2004年5月～9月）