



移动扫码阅读

曹颖嘉,王燕,贾聪慧,等.东亚地区 CFC-11 和 CFC-12 排放情况研究进展[J].能源环境保护,2022,36(2):29-36.

CAO Yingjia, WANG Yan, JIA Conghui, et al. Research progresses on CFC-11 and CFC-12 emissions in East Asia[J]. Energy Environmental Protection, 2022, 36(2): 29-36.

# 东亚地区 CFC-11 和 CFC-12 排放情况研究进展

曹颖嘉,王燕,贾聪慧,王进欣\*

(江苏师范大学地理测绘与城乡规划学院,江苏徐州 221116)

**摘要:**针对国际社会对区域尺度氯氟烃(Chlorofluorocarbons)排放的争议,分析了中国工业生产中最主要的 CFC-11 和 CFC-12 气体,论述了中国重点地区 CFCs 研究进展,探讨了 CFCs 的赋存情况,总结了中国政府淘汰 CFCs 的进程。分析认为:CFC-11 和 CFC-12 的大气浓度下降速率分别在 2011 年和 2016 年前后放缓,甚至出现浓度反常增加的情况;东亚地区的淘汰进程落后于世界平均水平,下降速率波动较大;自 2000 年以后,中国的 CFCs 下降速率一直领先于东亚其他国家,但在 2015 年以后大幅变缓甚至出现了浓度反弹。中国的 CFCs 淘汰历程虽然进入中后期,但仍需严格监管;大气环境污染的影响因素很多,应结合各国的发展现状和治理力度进行综合评价。

**关键词:**氟氯化碳;臭氧层;全球变暖;趋势;东亚贡献

中图分类号:X515

文献标识码:A

文章编号:1006-8759(2022)02-0029-08

## Research progresses on CFC-11 and CFC-12 emissions in East Asia

CAO Yingjia, WANG Yan, JIA Conghui, WANG Jinxing\*

(School of Geography, Geomatics and Planning, Jiangsu Normal University, Xuzhou 221116, China)

**Abstract:** Facing the international controversy about the regional scale emission of Chlorofluorocarbons (CFCs), the main gases, CFC-11 and CFC-12, caused by industrial production in China were analyzed. The research progresses on CFCs in key areas of China and the occurrence of CFCs were discussed. The progress of CFCs elimination by the Chinese government was summarized. The analysis showed that around 2011 and 2016, the decline of CFC-11 and CFC-12 concentrations in atmosphere slowed down. Their concentrations even increased abnormally. The elimination progresses in East Asia lagged behind the world's average, and its decline rate fluctuated greatly. Since 2000, the decline rate of CFCs in China had been ahead of other countries in East Asia. However, after 2015, the decline rate in China slowed down significantly, and the concentration even increased. Although the elimination process of CFCs in China has entered the middle and late stage, strict supervision is still required. There are many influencing factors of atmospheric environmental pollution, which should be comprehensively evaluated in combination with the development status and governance efforts of each country.

**Key Words:** CFCs; Ozone layer; Global warming; Trends; East Asian contribution

## 0 引言

包括 CFC-11 和 CFC-12 在内的氟氯化碳化合物(CFCs)是一类具有重要环境意义的挥发性

有机化合物(VOCs),它们传输到平流层后通过光解过程导致臭氧被消耗,具有较高的臭氧消耗潜力(ODP)和较长的大气寿命<sup>[1-2]</sup>。这些化合物作为制冷剂、泡沫发泡剂、气雾剂推进剂、溶剂和清

收稿日期:2021-09-08;责任编辑:蒋雯婷

基金项目:国家自然科学基金资助项目(31870455)

第一作者简介:曹颖嘉(1997-),女,江苏泰州人,硕士生,主要从事自然地理研究。E-mail:1075054064@qq.com

通讯作者简介:王进欣(1971-),男,河北张家口人,博士,教授,主要研究方向为海岸带挥发性气体生物地球化学循环。E-mail:yujianw7125

@163.com

清洁剂在工业上得到了广泛应用<sup>[1,3]</sup>,并在生产、储存和使用过程中释放到大气环境当中。它们向大气的排放已经受到《蒙特利尔议定书》及其后续修正案的限制。另外,这些气体也是重要的人为温室气体,具有很高的全球变暖潜力(GWPs)<sup>[4-5]</sup>。因此,CFC-11和CFC-12对对流层气候和平流层臭氧层破坏具有双重影响。即使在没有生产的情况下,现有设备和产品中残留的存量也会逐渐泄漏到大气环境中,与CFC-11和CFC-12相关联的历史遗留和目前存量的相互叠加,在未来几十年内显示出累积效应。这些臭氧层破坏物质的累积排放量和大气浓度的未来变化将对未来平流层臭氧的恢复具有重要的影响<sup>[7]</sup>。

在全球气体环境的研究中,各类温室气体区域尺度上的排放率一直是国际社会的研究热点<sup>[8]</sup>,而中国CFC-11和CFC-12的排放已引起环境研究和政策制定的更多关注,已经有国际环境学者的研究认为来自中国东部地区的人为排放将会对全球和东亚的CFC-11和CFC-12排放总量产生重大影响<sup>[9-10]</sup>。近年来,一些研究集中在东亚地区,特别是中国大陆东部地区CFCs的时空变化上,发现该地区CFC-11的排放量在不断增加<sup>[11-12]</sup>。一些研究人员认为,CFCs排放量的意外和持续增加可能与东亚相关生产量的增加有关<sup>[11-13]</sup>。

基于全球CFCs背景站点测量的研究也推测了东亚排放量的重要性<sup>[14-15]</sup>,这些结果都是基于韩国Gosan和日本Hateruma的AGAGE附属站点数据的外推,以及全球监测数据和大气化学传输模型模拟<sup>[16-17]</sup>,这些结果与模型集中描述了受工业源影响的亚洲大陆污染气体的向外输送和污染气团的化学形态和丰度<sup>[18]</sup>。然而,仅仅凭借距离可能污染源较远的有限监测站测量网络的数据,对中国大陆东部CFCs变化并不敏感,很难精准地推断出排放源的位置和贡献。中国东部特别是沿海地区CFC-11和CFC-12的来源仍然缺乏研究,特别是正确量化东亚CFC-11和CFC-12排放量的地面观测数据非常稀少<sup>[19]</sup>。全球CFC-11和CFC-12排放量的上升部分归因于和源解析于某一区域,受到在潜在排放区域附近没有具有足够频率和长期测量数据的限制<sup>[14]</sup>。

文章拟通过对世界水平、东亚水平和中国区域水平三个层次上的CFC-11和CFC-12的大气浓度进行比较,回答学术领域对中国东部是否存

在非法排放的疑问。在空间层次上,将其置于全球平均水平和北半球平均水平上对比,并通过与同为东亚国家且设有CFCs监测站点的日本和韩国进行比较来确定中国是否在稳步进行CFCs淘汰。在时间层次上,着眼于CFC-11和CFC-12的年际变化特征,针对2013年前后的反常变化提出合理解释。其次通过比较国内外学者对CFC-11和CFC-12淘汰进程的预测把握CFCs未来发展动向,并与国家GDP总值进行相关分析,判断CFC-11和CFC-12的淘汰历程是否符合中国国情发展。

## 1 世界排放情况

签订《蒙特利尔议定书》之后,全球范围的CFC-11和CFC-12一直在稳定淘汰,但是区域下降率的不平衡一直是学界研究的热点<sup>[13-14]</sup>。这期间全球领域涌现了一些专业组织对CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、N<sub>2</sub>O和氟化物等温室气体进行大气浓度观测(USGS、IFA、GGFR、NOAA、UNFCCC等),其中世界温室气体数据中心(WDCGG)是一个世界数据中心(WDC),由日本气象厅(JMA)根据世界气象组织(WMO)的全球大气观测(GAW)计划运营,为了解温室气体的源汇、浓度及对全球变暖的贡献提供了长期精确观测的数据。本文将WDCGG提供的可视化图形的数据进行转换整理,选取了全球、东亚以及中国三个尺度的CFC-11和CFC-12大气浓度进行比较。

全球CFC-11的对流层浓度在1990年代中期达到峰值270 ng/L,而CFC-12的大气浓度峰值在2000年代初达到545 ng/L,此后大气浓度持续走低<sup>[20]</sup>。因为陆地与人口集中分布在北半球,所以南北半球之间的浓度梯度差异较大,平均浓度差达到50%<sup>[21]</sup>。东亚地区作为北半球人口最稠密发展中国家分布较集中的地区,CFCs对流层浓度并没有出现明显的时间转折点,整体的大气浓度虽然也在下降,但是表现的较为反复,且在部分年份出现了大气浓度反常增加的情况<sup>[20]</sup>,详见图1。

由图1(a)和(b)可知,在世界水平和东亚水平上比较CFC-11和CFC-12的淘汰进程,CFC-12的大气浓度为550 ng/L左右,CFC-11的大气浓度在250 ng/L左右,CFC-12的大气浓度是CFC-11的两倍,这与CFC-12两倍于CFC-11的生命周期有很大关系。自20世纪90年代初以

来,北半球 CFC-11 的浓度开始下降,到 2018 年前后,CFC-11 大气浓度已达到 225 ng/L,同时南北半球间的梯度也有所减小。但是 CFC-12 的浓度继续上升,在 2000 年、2005 年、2015 年都出现

一段时间内的小高峰,大气浓度超过 550 ng/L。尽管排放已经遭到禁止,但早期出厂的冰箱空调化学制品中含有的 CFC-12 仍在缓慢排放持续进入对流层。

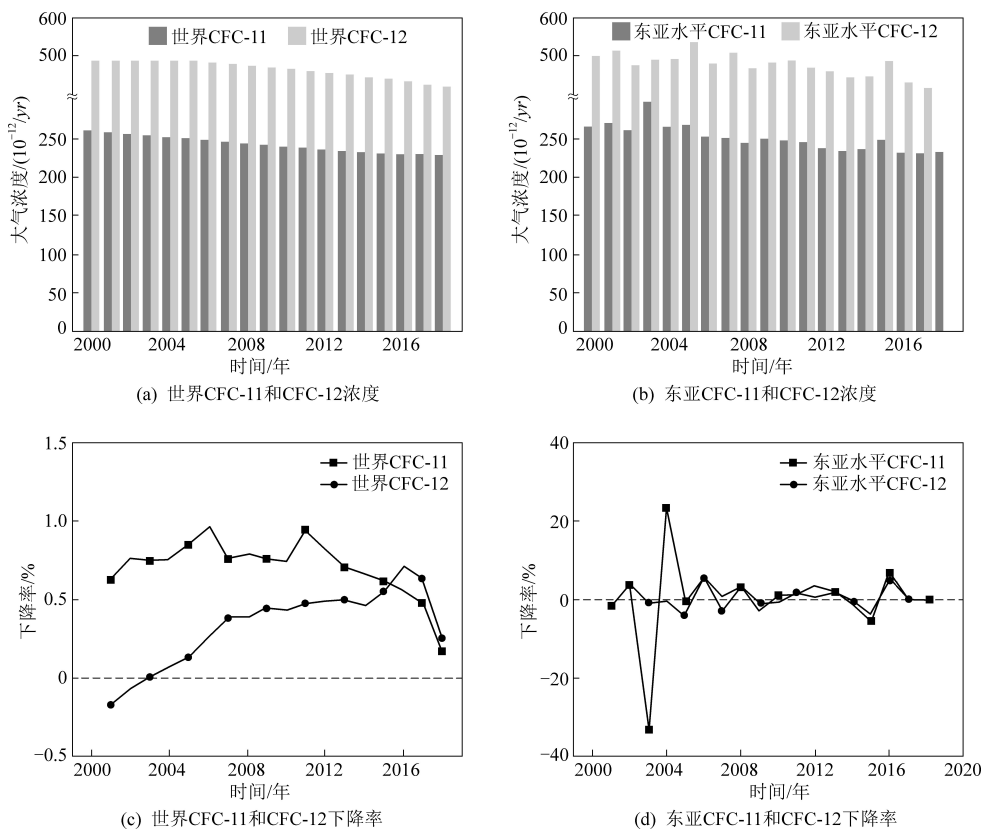


图 1 世界与东亚 CFC-11、CFC-12 大气浓度与年下降率比较图

Fig.1 Comparison of atmospheric concentration and annual decline rate of CFC-11 and CFC-12 in the world and East Asia

根据图 1(c)和(d),在同品类但是不同范围内进行比较,可以发现世界水平的 CFC-11 和 CFC-12 的年下降率都较为稳定,早期世界范围内的 CFC-11 下降率在 0.5% 以上,而 CFC-12 在 2004 年之后下降率才转负为正且年下降率低于 0.5%,2015 年之后,CFC-11 下降率放缓,CFC-12 下降率超过 CFC-11。而东亚水平的 CFC-11 和 CFC-12 的年下降率曲线较为曲折,二者的下降率相差不大,且下降率有正有负,表现极不稳定,这与东亚发达国家与发展中国家并存、淘汰年限各异、国家政策进度不同有很大的关系。

此外,在对世界范围和东亚范围 CFC-11 和 CFC-12 分别进行相关性分析的时候发现均存在良好的相关性。在东亚水平上,CFC-11 和 CFC-12 的显著性水平为 0.036 ( $P < 0.05$ ),CFC-11 和 CFC-12 的大气浓度在东亚差异显著,但相关系数为 0.496,则表明 CFC-11 和 CFC-12 大气浓度之间关系紧密;在全球水平上,这种相关性表现得更

为明显, $P < 0.001$ ,说明 CFC-11 和 CFC-12 大气浓度在世界水平差异极其显著,相关系数达到 0.947,说明世界水平上的 CFC-11 和 CFC-12 大气浓度关系非常紧密。从图 2 中也不难发现 CFC-11 和 CFC-12 的年变化都对照良好,呈现相似的变化趋势。

## 2 东亚排放情况

不可否认的是,在全球范围内,东亚 CFCs 的排放量确实高于其他地区,而在东亚范围内,中国的贡献又首屈一指<sup>[7]</sup>。但是只进行总排放量的比较,显然是忽略了中国作为一个大国拥有的众多人口以及广袤土地,同时,也忽略了中国正处于发展的过程中的事实。各国进行 CFCs 排放量统计时,通常可以概括为两种方法:由各个生产部门向国家提供年生产清单,政府部门汇总的排放量估算方式称为“自下而上”计算法;而通过飞机、大气站点等方式进行的高频大气监测而推演排放量的

方法叫作“自上而下”算法<sup>[15,23]</sup>。在此,分别利用“自下而上”与“自上而下”的数据<sup>[7]</sup>,将同属东亚的发达国家且同样拥有大气观测站点的日本和韩国进行 CFC-11 和 CFC-12 的单位排放量比较,再分别与东亚平均排放量与全球平均排放量对比(图 2),其中图 2(a)和(b)分别是 CFC-11“自下而上”与“自上而下”的方法得到的单位排放量,而图 2(c)和(d)是 CFC-12 两种方法的单位排放量。在国家提供的“自下而上”排放清单中可以发现 CFC-11 单位面积上中国的排放量仅为不到 10 t,日本韩国是中国单位土地排放量的 20 倍,中国虽然略超过了全球单位面积的排放量 5.01 t,但低于东亚平均水平 14.32 t。CFC-12 单位面积排放量的情况更为夸张,日本 CFC-12 单位面积排放量是韩国的 2 倍,中国的 30 倍,中国同样表现为

略高于世界平均水平 8.92 t 而低于东亚平均水平 29.84 t;在人均排放量上,韩国远远超过日本和中国,无论是 CFC-11 还是 CFC-12 的人均排放量都是日本的 10 倍,中国的 20 倍左右,CFC-11 和 CFC-12 东亚人均排放水平和世界人均排放水平相当,均高于中国人均排放量 5.58 t;单位 GDP 上的排放量仍然还是韩国遥遥领先,CFC-11 单位 GDP 排放量是中国的两倍,不到日本的 20 倍,CFC-12 单位 GDP 排放量中韩相近,远高于日本,值得注意的是,中国的单位 GDP 排放量确实是超过了东亚和全球的平均水平。“自上而下”的方法整体预测的排放量均高于“自下而上”提供的清单,除 CFC-12 单位 GDP 排放量高于韩国之外,其他趋势并没有任何变化。

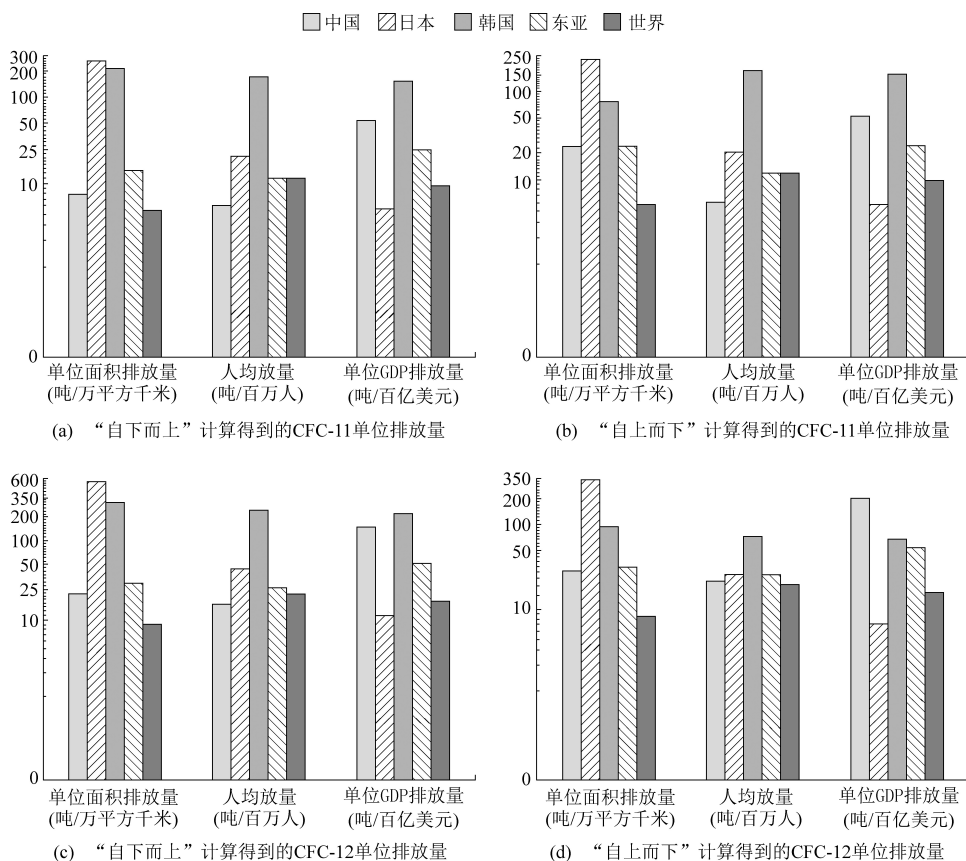


图 2 各区域 CFC-11 和 CFC-12 单位国土面积、单位人口、单位 GDP 排放量对比

Fig.2 Comparison of CFC-11 and CFC-12 emissions per unit land area, per unit population and per unit GDP in each region

综上,东亚的 CFC-11 和 CFC-12 排放量无论是单位面积、人均排放还是单位 GDP 都高于世界排放量 2~5 倍,而中国的单位面积排放量、人均排放量也仅为东亚平均排放量的半数,而中国单位 GDP 排放量确实偏高是东亚平均水平的 2~3

倍。可见国土面积、人口总量和国家发展阶段都是相关的影响因素。东亚国家人口密集、工业发达,发展历程落后于欧洲、美洲等国家。中国在未来工业发展过程中应该加强对清洁能源的开发利用,走低碳低污染的发展道路。



### 3 中国排放情况及其发展历程

中国自加入《蒙特利尔议定书》之后,一直积极履行相关条约,除了每年向联合国提交“自下而上”的气体排放清单外,还拥有 1 个全球大气本地站和 6 个区域大气本地站进行大气监测。此外,还有大量学者在局部地区进行原位监测<sup>[6,9]</sup>,但是不难发现中国主要的氟氯烃气体研究主要集中在东南地区,在东北和西北地区也有零星分布。这些研究更多着眼于影响局地 CFCs 大气浓度变化的影响因子分析以及短时间的日变化或季节变化特征。分析区域 CFCs 浓度变化对全球气候变化的响应及贡献的文章并不多。且因为在 2013 年以前,CFCs 都呈现稳定的下降趋势,故相关研究逐渐减少,直至近几年国际上出现相关质疑,才再一次成为热点话题。

2019 年,中国生态环境部就国际上认为中国东部存在非法排放作出回应,认为通过模型反演

推测得出的排放量和排放源位置等重要结论值得商榷,并且中国尚未发现大规模违法使用 CFC-11 作为发泡剂的情况,中国聚氨酯泡沫行业协会对泡沫产品生产情况、各类发泡剂使用情况的市场应用分析也不支持这些文章的结论<sup>[28]</sup>。

CFC-11 和 CFC-12 属于早期工业产品,大部分行业在 2000 年以前就开始了淘汰计划(《中国消耗臭氧层物质逐步淘汰国家方案(修订稿)》),医用气雾剂、制冷维修行业以及烟草行业的淘汰时间略有落后但效率较高,大部分行业在 2010 年以前就完成了国家淘汰计划<sup>[28-31]</sup>。中国在替代品和应用技术的开发、发展上与某些国家相比还存在较大的差距。作为发展中国家,一方面要积极顺应世界替代品和替代技术发展的趋势,加快替代品开发和应用技术的研究,并迅速形成产业化;另一方面,仍要考虑引进世界先进的生产技术,加快替代步伐,以在短期内提高全面的竞争能力。

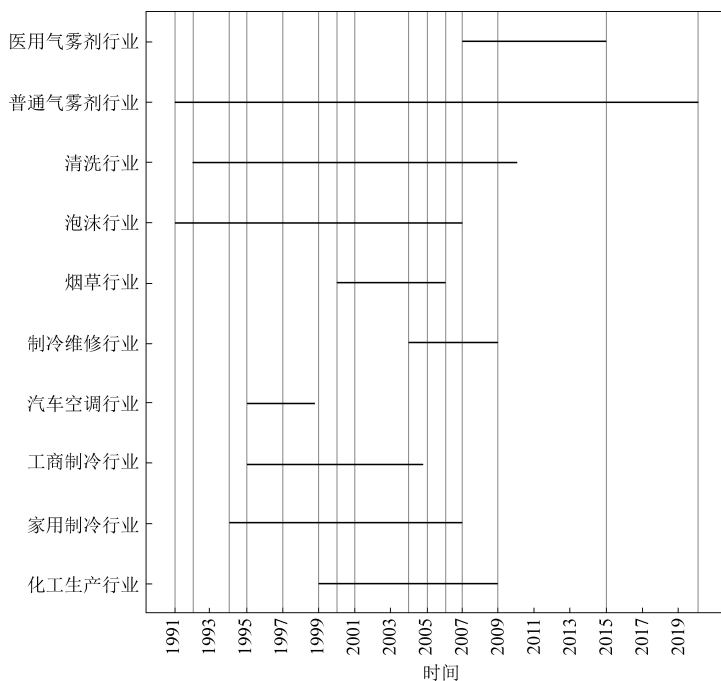


图 3 行业全氟氯烃淘汰表

Fig.3 Phase out table of perfluorocarbons in the industry

与近年来一致认为 CFCs 排放量增加的研究相反,方雪坤研究员课题组最新研究表明 2019 年 CFC-11 排放量恢复到 2013 年之前的水平<sup>[21-22]</sup>。CFC-11 在中国东部出现了快速下降的趋势,贡献了 60% 的全球 CFC-11 减排量。自 2014~2017 年以来每年减少  $10 \pm 3$  千吨。此外,与 CFC-11 生产相关的  $\text{CCl}_4$  和 CFC-12 排放量在 2013 年后高于预期,在 CFC-11 减排前 1~2 年内下降。全球排

放量的下降表明,未报告的 CFC-11 产量大幅减少。如果全球意外排放量和未报告产量持续急剧下降,将不会对臭氧层的恢复产生任何威胁。显然,中国是否存在非法排放以及排放量的多少对全球气候变化举足轻重。在此,对中国政府和科研界对中国 CFC-11 和 CFC-12 的淘汰进程的预测进行了汇总,以期展现 CFC-11 和 CFC-12 的排放量发展历程及最终淘汰时间(图 4)<sup>[23-25]</sup>。

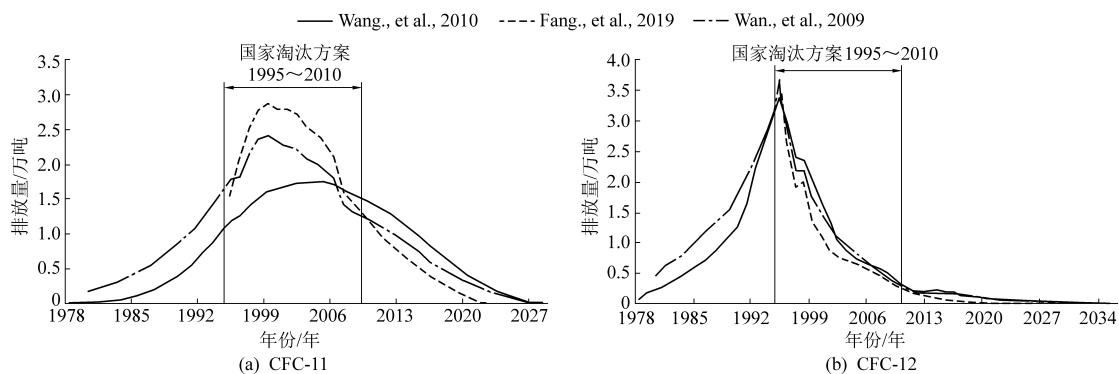


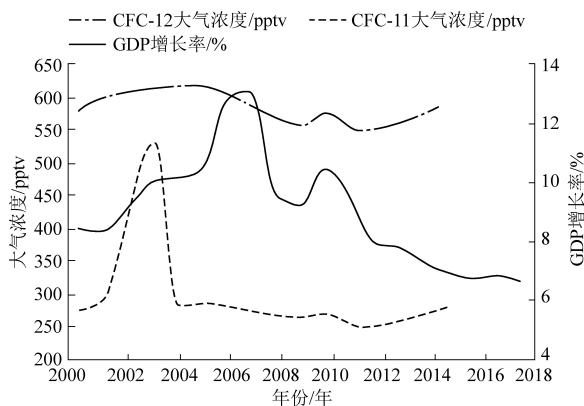
图4 中国 CFC-11 和 CFC-12 未来排放量的预测

Fig.4 Prediction of future emissions of CFC-11 and CFC-12 in China

可以发现王凤等人<sup>[23-25]</sup>对 CFC-11 (图 4(a)) 和 CFC-12 (图 4(b)) 淘汰发展历程的趋势预测基本吻合, CFCs 排放量都在 1990~2000 年达到峰值后便断崖式下跌, CFC-11 的排放量经预测排放量在 1999 年前后达到峰值 3 万吨, CFC-12 在 1995 年前后达到峰值 3.7 万吨。CFC-12 在 2010 年前后已被淘汰, 而 CFC-11 在 2020 年前后才能完全被淘汰。

虽对两种物质的整体预测趋势大致相同。但可以看出, 中国政府制定的 CFC-11 的淘汰计划比王凤等人的预测提前三至五年, 在 2010 年前后排放量削减为零, 且关于排放量峰值的预测也存在七八年的跨度。根据 MP 及中国实际情况, 两种 CFCs 自 2010 年前后就已完全停止消费。CFC-11 和 CFC-12 的排放量均在 1994~2002 年期间达到峰值, 在 1980~1996 年 CFC-12 的排放量占绝对优势, 此后大幅减少, 在 2000 年至今以 CFC-11 的排放为主。根据预测结果, 到 2028 年, CFC-11 和 CFC-12 将不再排放, 中国所消费的 CFC-11 和 CFC-12 要分别到 2027 年和 2036 年才全部排放到大气中。

除在中国东部是否存在 CFCs 的非法排放上的争议以外, 学界还出现了对出现非法排放地区的探讨。国际社会主流认识认为是山东和河北地区出现了新的排放源, 但基于中国本土南岭的现场监测数据来看<sup>[26]</sup>, 认为反常增加主要归因于中部和西南部部分经济落后地区, 认为主导因素是区域经济发展不平衡和对经济落后地区缺乏有效的管制行动造成了氟氯烃排放的意外增长。为探讨 CFCs 的大气浓度与区域经济发展是否存在联系, 将中国 GDP 的年增长率与 CFC-11 和 CFC-12 的大气浓度进行简单比较 (图 5)。

图5 CFC-11 和 CFC-12 排放量与中国 GDP 增长率的关系图<sup>[27]</sup>Fig.5 The relationship between CFC-11 and CFC-12 emissions and China's GDP growth rate<sup>[27]</sup>

由图 5 可知, CFC-11 和 CFC-12 的大气浓度特别是 CFC-11 与中国 GDP 的发展趋势相似, 均呈先升后降的趋势。这与中国国情基本吻合, 中国早期大力发展工业, CFCs 大量投入生产。此时, 中国社会经济增长较为迅速, 属于工业化带来的国家国力的上升期。加入蒙特利尔协定后, 快速对 CFCs 市场作出规范, 大力加快了 CFCs 的淘汰, 此时工业发展也出现了一些产能过剩的情况, 国家经济增长进入一个平缓期。

国家 GDP 增长率的峰值在 2007 年前后略滞后于 CFCs 排放量浓度的峰值 2003 年, 这可能与 CFCs 投入生产到销售再到释放到大气中这一连续过程的时长有关。而中国 2010 年之后 GDP 增长率并没有大幅提升, 因此, 国际社会认为中国经济落后地区存在非法排放并不能在经济增长方面得到体现。

## 4 结论与展望

### 4.1 结论

(1) 目前,国际社会集中在中国东部存在非法排放的争议有待商榷,因为大气污染一直是多重因素辐合的呈现。CFCs 长达百年的生命周期会导致排放时间不确定性;中国也只是在 2013 年出现反差增加,并不是每一年都在稳步攀升,相应的源解析有待深入。

(2) 从国家的 CFCs 淘汰历程可以看出国家在存在 CFCs 排放的相关行业的整改力度以及整改决心。尽管中国的 CFCs 大气排放总量仍然高于世界其他地区,但是不能避开平均谈总量。“自下而上”的研究方法总体排放量要低于“自上而下”,但趋势相同。根据“自下而上”的数据来看,中国是一个人口大国,CFC-12 人均排放量 15.74 t,低于东亚水平 25.01 t,也低于世界人均排放量 21.09 t;CFC-11 人均排放 5.58 t,低于东亚水平 12 t,也低于世界人均排放量 11.84 t。此外中国国土面积广大,CFC-12 单位国土面积 21.15 t,高于世界单位面积 8.92 t,但是低于东亚平均水平,甚至不到韩国的十分之一;CFC-11 单位国土面积 7.5 t,高于世界单位面积 5.01 t,低于东亚水平 14.32 t。

(3) 中国国内包括国外学者进行的大气反演主要落脚点都是中国东南部地区,在中国西南、东北和西北地区均缺乏数据支撑。而关于西南地区的排放量也存在争议,因此完善 CFCs 的监测数据网络至关重要。能够更快地识别未来的排放违规行为,有效回应世界和中国本土 CFC-11 和 CFC-12 大气浓度变化,以及解释和应对 CFC-11 和 CFC-12 全球意外持续增长问题都具有不可估量的重要意义。

(4) 根据预测,CFC-11 和 CFC-12 的排放量分别将于 2027 年和 2034 年清零,加大监管力度以及合理的生产替代方案是保证淘汰的基本。

(5) CFC-11 与 CFC-12 作为工业产品,与中国 GDP 发展存在一定关联,且中国单位 GDP 上 CFC-11 和 CFC-12 的排放量达到日本等发达国家的数十倍。虽然目前中国处于发展阶段,工业发展还需要持续,发达国家在早期已经完成了工业转型并向大气中排放了大量的 CFCs,任何一个国家都同样享有发展的权力,但中国在未来的发展道路上还是更应该践行低污染的发展道路。

### 4.2 展望

目前,大部分的研究集中于中国大陆、韩国、日本和台湾地区,这是因为这些地区积极履行国际责任,研究力量较为强大,台站的布设较为丰富。而现在已经有研究指出越南北部和缅甸西北部也是重要的新兴的 CFCs 的排放来源,此外关于印度排放最近也有很多新的论文,指摘印度大气监测站的布点很不到位,不能提供数据支持,但同时,印度作为人口大国和发展大国相关污染物大量排放,无法确定印度是否履行国际条约<sup>[32-33]</sup>。这些北半球国家因为技术的限制或者对国际责任的逃避,并没有向国际社会提供自下而上的基于生产制造所产生的氟氯烃排放的总结报告,其国内也没有布设专业大气监测布设点,导致数据的空白或是缺失,这对研究氟氯烃的来源和趋势都造成了巨大的挑战。

总之,CFCs 的臭氧消耗潜能和全球变暖潜能决定了对它的研究和替换工作的开展任重道远。各国应该肩负起自己的国际责任,站在保护全球环境的立场上主动公开透明自己对世界排放总量的贡献,国际社会和专业组织也应该在这些地区完善监测台站的布设,使全球形成一个监测网络,才能够更加精确的判断大气物质的发展变化。

### 参考文献

- [1] 林永达, 陈庆云. 大气臭氧层破坏和 CFCs 替代物 [J]. 化学进展, 1998 (2): 119-126.
- [2] Xuekun Fang, John A Pyle, Martyn P Chipperfield, et al. Challenges for the recovery of the ozone layer [J]. Nature Geoscience, 2019, 12 (8): 592-596.
- [3] A Montzka, Geoff S Dutton, Pengfei Yu, et al. An unexpected and persistent increase in global emissions of ozone-depleting CFC - 11 [J]. Nature: International Weekly Journal of Science, 2018, 557 (15): 413-417.
- [4] Stefan Reimann, James W Elkins, Paul J Fraser, et al. Observing the atmospheric evolution of ozone-depleting substances [J]. Comptes Rendus Geoscience, 2018, 350 (7): 384-392.
- [5] 陈立民, 段杨, 乐致威, 等. 大气中氯氟烃类物质浓度变化研究 [J]. 环境科学, 1999 (1): 28-30.
- [6] 张芳. 珠江三角洲地区大气中与全球变化相关的痕量卤代烃的初步研究 [D]. 广州: 中国科学院研究生院 (广州地球化学研究所), 2006: 81-82.
- [7] HENNE Stephan, VOLLMER Martin K. Estimating emissions of HCFC-22 and CFC-11 in China by atmospheric observations and inverse modeling [J]. Science China ( Chemistry ), 2012, 55 (10): 2233-2241.

- [8] Li Shanlan, Kim Jooil, Kim Kyung-Ryul, et al. Emissions of halogenated compounds in East Asia determined from measurements at Jeju Island, Korea [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 45 (13): 5668-5675.
- [9] Gen Zhang, Bo Yao, Martin K Vollmer, et al. Ambient mixing ratios of atmospheric halogenated compounds at five background stations in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, 160: 55-69.
- [10] 刘钊. 中国区域 CFC-12、HCFC-22 和 HFC-134a 排放量反演研究 [D]. 北京: 中国气象科学研究院, 2015: 25-28.
- [11] Li Shanlan, Kim Jooil, Park Sunyoung, et al. Source identification and apportionment of halogenated compounds observed at a remote site in East Asia [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48 (1): 491-498.
- [12] 杜运亭. 《关于消耗臭氧层物质的蒙特利尔议定书》及其实施机制研究 [D]. 北京: 外交学院, 2002: 25-27.
- [13] Yoko Yokouchi, Toshiharu Inagaki, Kenji Yazawa, et al. Estimates of ratios of anthropogenic halocarbon emissions from Japan based on aircraft monitoring over Sagami Bay, Japan [J]. *Composition and Chemistry*, 2005, 110 (D6): D06301.
- [14] Paul I Palmer, Daniel J Jacob, Loretta J Mickley, et al. Eastern Asian emissions of anthropogenic halocarbons deduced from aircraft concentration data [J]. *Composition and Chemistry*, 2003, 108 (D24): 4753.
- [15] A McCulloch, P Ashford, P M Midgley. Historic emissions of fluorotrichloromethane (CFC-11) based on a market survey [J]. *Atmospheric Environment*, 2001, 35 (26): 4387-4397.
- [16] Jooil Kim, Shanlan Li, Jens Mühle, et al. Overview of the findings from measurements of halogenated compounds at Gosan (Jeju Island, Korea) quantifying emissions in East Asia [J]. *Journal of Integrative Environmental Sciences*, 2012, 9 (sup1): 71-80.
- [17] Ronald G Prinn, Ray F Weiss, Jgor Arduini, et al. History of chemically and radiatively important atmospheric gases from the Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE) [J]. *Earth System Science Data*, 2018, 10 (2): 985-1018.
- [18] 刘钊. 中国区域 CFC-12、HCFC-22 和 HFC-134a 排放量反演研究 [D]. 北京: 中国气象科学研究院, 2015: 43-44.
- [19] Li Shanlan, Kim Jooil, Park Sunyoung, et al. Source identification and apportionment of halogenated compounds observed at a remote site in East Asia [J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, 48 (1): 491-498.
- [20] Chen Wang, Min Shao, Daikuan Huang, et al. Estimating halocarbon emissions using measured ratio relative to tracers in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2014, 89: 816-826.
- [21] Montzka Stephen A, Dutton Geoffrey S, Portmann Robert W, et al. A decline in global CFC-11 emissions during 2018-2019 [J]. *Nature*, 2021, 590 (7846): 428-432.
- [22] Park Sunyoung, Western Luke M, Saito Takuya, et al. A decline in emissions of CFC-11 and related chemicals from eastern China [J]. *Nature*, 2021, 590 (7846): 433-437.
- [23] 王凤, 张剑波, 冯金敏, 等. 中国历史上和未来 CFC-11 和 CFC-12 的排放量计算 [J]. *环境科学学报*, 2010, 30 (9): 1758-1765.
- [24] Fang Xuekun, Ravishankara A R, Velders Guus J M, et al. Changes in emissions of ozone-depleting substances from China due to implementation of the montreal protocol [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, 52 (19): 11359-11366.
- [25] Dan Wan, Jianhua Xu, Jianbo Zhang, et al. Historical and projected emissions of major halocarbons in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43 (36): 5822-5829.
- [26] Youjing Lin, Daocheng Gong, Shaojun Lv, et al. Observations of high levels of ozone-depleting CFC-11 at a remote mountain-top site in Southern China [J]. *Environmental Science & Technology Letters*, 2019: 114-118.
- [27] 中华人民共和国统计局. 中国统计年鉴 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2021.
- [28] 万婷婷, 万丹, 王雷, 等. 中国冰箱行业淘汰 CFCs 的环境效益分析 [J]. *北京大学学报 (自然科学版)*, 2011, 47 (3): 499-504.
- [29] 王平, 陈桂良. 我国药用气雾剂 CFC 替代的现状和思考 [J]. *中国医药工业杂志*, 2008 (11): 860-865.
- [30] 雷鸣, 华泽钊. 在臭氧层消耗与全球变暖这两个全球问题的制约下, CFCs/HCFCs 替代技术的新发展 [J]. *制冷技术*, 2000 (3): 15-19.
- [31] 朱明善. CFCs 和 HCFCs 替代制冷剂的趋势与展望 [J]. *制冷学报*, 2000 (1): 2-9.
- [32] A Stohl, J Kim, S Li, et al. Hydrochlorofluorocarbon and hydrofluorocarbon emissions in East Asia determined by inverse modeling [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2010, 10 (2): 3545-3560.
- [33] Yasuji HIMI, Kiyoshi OKIMINE, Tsunehiko OTOSHI. The CFCs Problems in Thailand [J]. *Journal of Japan Society of Air Pollution*, 1993, 28 (1): 44-49.