國立台灣大學理學院大氣科學所

# 碩士論文

Graduate Institute of Atmospheric Sciences College of Science National Taiwan University Master Thesis

大氣長程傳送對台灣背景臭氧之影響:空氣胞逆軌跡線之群



Effects of Air Long-range Transport on Background Ozone

**Concentration in Taiwan: The Cluster Analysis of Air Parcel** 

**Back Trajectories** 

品

彭眾恩

騷

**Chong-En Peng** 

指導教授:柳中明 博士

Advisor: Chung-Ming Liu, Ph.D.

中華民國 98 年7 月

July, 2009

#### 誌謝

研究所的生涯裡即將要畫上句點,兩年說短不短但似乎也一轉眼就過了。很 高興自己能順利完成學業,並朝人生中的下一階段邁進。

首先要感謝指導老師柳中明老師,在這段研究得過程中,不斷耐心的給予指導、建議以及鼓勵,使我對於科學研究從一開始的不了解,慢慢的步上軌道,直 到完成這份研究。

感謝口試委員吳明進老師,林沛練老師,程萬里老師以及龍世俊老師。老師 們提供了許多寶貴的意見,使這份研究能更為完整精確。

Lat Y

再來要感謝的是全球變遷中心的學長姐們:林淑華博士,葉銘德學長,林瑋 翔學長,陳汎凌學長。在研究過程中學長姐們花了許多時間,給予我許多程式上 的協助以及方向上的建議,讓我學到了很多東西,真的很謝謝你們。此外感謝研 究所的夥伴蕭鋒學長,崇旗學長,凱元、華富,宗哲。大家一起開讀書會、打球、 晚上一同在全變奮戰的日子,都將是未來美好的回憶。

最後要感謝的是我的家人,在我的研究生生涯默默給予支持與鼓勵,使我能 順利的完成研究所的學業。特別感謝女朋友惠婷,妳一路上的支持及陪伴,是我 能完成論文的動力。

#### 摘要:

蘭嶼背景大氣測站(22°02 'N,121°33' E,324 公尺高)自 1995 年開始進行 臭氧之監測。柳(1999)曾指出,臭氧為最能反應季節性氣團變動之大氣化學物 質:冬季乾冷北風攜帶高濃度臭氧,而夏季海洋暖濕南風伴隨低濃度臭氧。為了 延續先前之議題,進一步了解臭氧和空氣來源的關係,本研究利用群集分析,配 合蘭嶼臭氧夜間觀測資料,期求客觀量化分析台灣地區空氣來源分布及隨時間之 變化,尋找 1995-2007 年間變化特徵,並觀察與臭氧濃度間之關聯性。

群集分析(Cluster analysis)為多變數分析方法,其目的是希望利用客觀計量, 將事物根據某些屬性歸在各群體中,使同一集群內的事物都具有高度同質性 (Homogeneity)。我們利用群集分析中 K-means 法進行改良來進行分群,最終得 到六主要族群:A:從西北方來之族群(佔全部來源之15%),B:從北方來之族 群(17%),C:從北北東方來之族群(13%),D:從東北方來之族群(6%),E: 從東方來之族群(23%),F:從西南方來之族群(21%)。

時間分佈上,依季節區分,冬季主要以大陸性族群A、B為主,夏季則以海 洋性族群E、F為主,族群C、D則在秋季較盛行。比對空氣胞族群和蘭嶼臭氧 含量,發現族群A、B臭氧含量較高,平均超過45ppbv,族群C、D略低,平均 達為43及36ppbv;族群E、F之臭氧含量則明顯較低,平均分別僅22、23ppbv。

在臭氧值年際變化上,大陸性族群臭氧含量以2002為分界,前半段為上升, 後半段為下降;海洋性族群則呈逐年上升趨勢。若依臭氧值高低將各族群再分成 三類次族群,可發現高臭氧次族群其路徑較偏向排放源。藉由冬季兩個案模擬, 也可發現偏向陸路到達台灣之個案,由於其路徑後期亦受排放源影響,因此抵達 蘭嶼時之臭氧值較經由海路路徑的個案高。

關鍵字:長程傳送、背景臭氧、群集分析



### Abstract

Lanyu background station (22°02 N, 121°33 E, height:324m) has monitored ozone since 1995. Liu et al.(1999) observed 4-year Lanyu data, indicated that ozone was the best gas to response to seasonal air masses change. In order to continue his research about air sources and ozone background concentration of Taiwan, we used cluster analysis to separate all air parcel trajectories from 1995 to 2007 into groups, to find out the spatial and temporal characteristics of air parcels of Taiwan. We also compared back trajectories groups with background ozone concentration in Lanyu to find out ozone characteristics and long-term change trends of groups.

Cluster Analysis is a multivariate analysis technique that seeks to organize information about variables so that relatively homogeneous groups can be formed. In all methods of clustering, we used K-means method for clustering air parcels to Taiwan, and finally got 6 groups: group A from northwest (accounting for 15% of all trajectories), group B from north (17%), group C from north-northeast (13%), group D from northeast (6%), group E from east (23%), and group F from southwest (21%).

From the analysis of seasonal ozone distribution, groups from continental ( $A \\ B$ ) prevailed in winter, group from ocean( $E \\ F$ ) prevail in summer, and group C and D prevailed in autumn. Comparing air parcel group with Lanyu ozone, we found that group A and B had larger mean ozone concentration, which was higher than 45 ppbv; the mean ozone concentration of group C and group D was 43ppbv and 36ppbv, respectively; group E and F was evidently lower mean ozone concentration than other groups, only 22 ppbv and 23 ppbv. In terms of ozone yearly trend, there were two phases of continental group: before 2002, ozone concentration increased; after 2002, ozone concentration decreased. Oceanic group had lasting increase trend. According to ozone concentration, we separated each group into three sub-groups. The mean trajectory of high ozone sub-group was closer to emission zone than other two sub-groups. Using case study, we found because the ozone values of trajectories whose routes were near to emission zone still affected by emission when parcels approached Lanyu, ozone concentration of near emission air parcels was higher than air parcels whose routes far from emission zone.

Keywords: long-range transport, background ozone, cluster analysis



目錄
----

第一章:前言:	1
第二章:資料來源	6
2.1 臭氧資料來源	6
2.1.1 蘭嶼背景站簡介	6
2.1.2 臭氧資料	7
2.2 軌跡線模式 HYSPLIT:	7
2.3 數值模式	9
2.3.1 中尺度氣象模式 MM5	10
2.3.2 台灣空氣品質模式 TAQM:	11
第三章:研究方法	14
3.1 群集分析簡介及其在空氣胞逆軌跡線上之應用	14
3.2 方法簡介	16
第四章:結果分析	
4.1 分群結果與空氣胞的時空分佈特性探討	19
4.1.1 空氣胞空間分布特性	19
4.1.2 六類空氣胞典型個案	20
4.1.3 空氣胞來源月份分布特性	21
4.1.4 季節盛行族群特性	22
4.2 各族群所攜帶之臭氧值討論	23
4.3 空氣胞來源與臭氧值的年際變化與相關性探討	25
4.3.1 空氣胞來源與臭氧值年際變化分佈特性	25
4.3.2 空氣胞來源與臭氧值分段年際變化特性	26
4.4 臭氧值分佈與路徑之相關性探討	27

4.5 個案模擬分析	
4.5.1 071206 個案模擬討論	
4.5.2 050118 個案模擬討論	
4.5.3 討論	
第五章:結論與展望	
參考文獻:	
附表	

附圖



# 表目錄

表 2.1:NCEP/NCAR 全球再分析資料 Pressure Level 之垂直解析度
表 2.3.1: MM5 氣象資料垂直方向解析度46
表 2.3.2: TAQM 在垂直方向之解析度
表 4.1.1:17 類有個案之子族群與最終選出之六主要族群
表 4.1.2:1996 年至 2007 年 12 年完整年間,六主要族群所佔比例表
表 4.1.3:各族群在各月所佔比例
表 4.1.4:各月份出現族群頻率表
表 4.1.5:各季節出現頻率統計表
表 4.2.1:蘭嶼測站及日本與那國島測站之臭氧監測月平均資料的統計平均、標
準差、相關係數、均方根差及均方根差與平均值的比值(單位 ppbv)50
表 4.2.2: 蘭嶼及日本與那國島臭氧監測之月平均資料的季節性統計平均、標準
差、及趨勢變化(單位 ppbv)51
表 4.2.3: 六逆軌跡族群之臭氧值統計表(單位 ppbv)51
表 4.3.1:逐年各族群個數
表 4.3.2: 六族群個數年際趨勢、年均個數平均與 R <sup>2</sup> 值, 有通過 p 檢定者以星號
(*)標計52
表 4.3.3:逐年各族群臭氧平均值(單位 ppbv)
表 4.3.4: 六族群臭氧值年際趨勢、年均臭氧值平均與 R <sup>2</sup> 值, 有通過 p 檢定者以
星號(*)加註 (單位 ppbv)53
表 4.3.5: 六族群季節個數年際趨勢與 $R^2$ 值, 有通過 $p$ 檢定者以星號(*)加註54
表 4.3.6: 六族群季節臭氧值年際趨勢與 $R^2$ 值, 有通過 $p$ 檢定者以星號(*)加註
表 4.3.7: 1995-2007 蘭嶼夜間臭氧值年際變化

56	表 4.3.8: 六族群前後期臭氧值年際趨勢變化
56	表 4.3.9: 六族群前後期族群數目年際趨勢變化
其中通過p檢定者	表 4.3.10:逆軌跡族群數目之季節年際趨勢與分期年際趨勢,
57	以星號(*)加註
y,其中通過 p 檢定	表 4.3.11:逆軌跡族群臭氧值之季節年際趨勢與分期年際趨勢
58	者以星號(*)加註
59	表 4.4.1:次族群之臭氧範圍標準(單位:ppbv)
60	表 4.5.1:個案模擬之統計資料



# 圖目錄

圖 2.1.2: 蘭嶼氣象站
圖 2.1.2: 蘭嶼島與日本與那國島(Yonagunijima)之地理位置
圖 2.1.3: 蘭嶼氣象站位置圖
圖 2.3.1: MM5 中尺度系統操作流程(摘自 MM5 使用手册)
圖 2.3.2: MM5 模式與 TAQM 模式模擬範圍64
圖 2.3.3: TAQM 資料流程圖(摘自 TAQM 手冊)
圖 3.1: k-means 方法流程圖65
圖 3.2: 利用 K-means 分別對到達蘭嶼前倒退3日、4日、5日之空氣胞位置
分别分成2群、3群、4群之結果,之後再依此結果進行樹狀分群得
到子族群
圖 4.1.1: 六空氣胞族群倒退五日平均路徑,路徑中每 24 小時以一圓點標示67
圖 4.1.2: 六族群倒退五日逆軌跡線總分佈
圖 4.1.3: 六族群高度平均圖
圖 4.1.4: 六類典型個案逆軌跡線與地面氣壓場合成圖
圖 4.2.2: 我國蘭嶼及日本與那國島測站之月平均臭氧濃度變化
圖 4.2.3: 六逆軌跡族群之臭氧值區間分佈圖70
圖 4.3.1: 六族群個數年際變化趨勢
圖 4.3.2: 六族群臭氧年際變化趨勢, (臭氧值單位: ppbv)
圖 4.3.3: 六族群臭氧值分佈區間年際變化等值圖72
圖 4.3.4:1995-2007 蘭嶼夜間臭氧值年際變化72
圖 4.4.1: 六族群依臭氧值所分次族群平均五日水平逆軌跡線圖, 各次族群所設
定的臭氧值範圍可參照表 4-4-173

圖 4.4.2: 六族群依臭氧值所分次族群平均五日高度圖,各次族群所設定的臭氧

值範圍可參照表 4-4-1......74

圖 4.4.3: 六族群依臭氧值所分次族群之年際比例變化圖,各次族群所設定的臭

- 圖 4.5.1:所有個案的臭氧最大值位置(左),最大上升處位置(右)。其中各編號代
- 圖 4.5.2:071206 個案水平逆軌跡比較圖,紅色為由 NCEP/NCAR 再分析資料所 得之逆軌跡,藍色為由 MM5 氣象場所得之逆軌跡,每 24 小時並以 X

- 圖 4.5.3:071206 個案垂直逆軌跡比較圖,紅色為由 NCEP/NCAR 再分析資料所
  - 得之逆軌跡,藍色為由 MM5 氣象場所得之逆軌跡。其中 MM5 逆軌跡
- 因範圍限制僅計算至-89小時......77
- 圖 4.5.4:2007 年 12 月 3 日 12Z, 925hPa 之高空天氣圖......77
- 圖 4.5.5:071206 個案空氣胞臭氧值隨路徑之變化圖,藍線為一般排放模擬,灰
- 線則為扣除排放之模擬。其中因範圍限制,臭氧僅採計至-80小時.78
- 圖 4.5.6:071206 個案中,將有排放模擬值減去無排放模擬值,所得空氣胞因排
- 圖 4.5.8: 特性時段(I)時, sigma level=0.928 與地面之東亞臭氧場圖,此時段之空
  - 氣胞水平位置以紅框標出 ......80
- 圖 4.5.9:特性時段(II)時, sigma level=0.957(左)與地面(右)之東亞臭氧場圖,此
- 圖 4.5.10:071206 個案於特性時間(III)的純排放造成之臭氧場圖,單位為 ppbv。

號標示		83
<i>munn</i> / / / / / / / / / / / / / / / / / /	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	00

圖 4.5.12:050118 個案垂直逆軌跡比較圖,紅色為由 NCEP/NCAR 再分析資料所

得之逆軌跡,藍色為由 MM5 氣象場所得之逆軌跡
圖 4.5.13:2005 年 01 月 15 日 12Z ,925hPa 之高空天氣圖
圖 4.5.14:050118 個案空氣胞臭氧值隨路徑之變化圖,藍線為一般排放模擬,灰
線則為扣除排放之模擬。其中因範圍限制,臭氧僅採計至-110小時84
圖 4.5.15:071206 個案中,將有排放模擬值減去無排放模擬值,所得空氣胞因排
放所造成臭氧值隨路徑之變化圖85
圖 4.5.16:050118 個案中兩特性時段,臭氧之水平位置,(I)1 月 16 日 16 時至 1
月17日4時, (II)1月17日4時至1月18日12時
圖 4.5.17:050118 個案中的下降期,σ=0.957(左)與地面(右)之東亞臭氧場圖,此
時段之空氣胞水平位置以紅框標出
圖 4.5.18:050118 個案,上升期中兩主要上升段地面純排放之東亞臭氧場圖87
圖 4.5.19:050118 個案中的上升期,地面之 CO 場圖,此時段之空氣胞水平位置
以紅框標出
圖 4.5.20:050118 個案中的下降期,NO2在路徑上之變化
圖 4.5.21:071206 個案中,特性時段(I)時,NO2在路徑上之變化

XI

# 第一章:前言:

近年來,隨著經濟的發展以及人口的增加,溫室氣體及空氣污染物的排放對 地球及區域環境造成極大的負擔。東亞地區之工業亦不斷快速成長,大範圍的空 氣污染以及化學物質傳送對綜觀尺度的大氣化學場影響極大。換言之,區域性大 氟化學研究對區域以及全球氣候變遷的探討,扮演舉足輕重的角色(柳等, 1999)。美國國家航空太空總署(NASA)曾在1991年與1994年推動西太平洋探測研 究計畫(PEM-west Phase A、B)(Hoell et al., 1996, 1997),先後於1991及1994年進 行兩次大範圍飛航與地面監測,春季與秋季西北太平洋地區上空大氣化學場,以 研究亞洲大陸物質輸送對海洋地區物質變化的影響(Talbot et al. 1996; Gregory et al., 1997)。並進行建立儀器比對(Ridley et al., 1993)和資料交換等工作,對監測 東亞大範圍地區的物質變化,奠定了堅實的基礎。

陳(1995)研究指出大陸海岸的污染物雖然無法由低層直接穿越台灣海峽輸送至本島,但高於邊界層的西風可輕易且快速地將大陸上空的污染物傳送至台灣上空。中國的NOX 排放,自1970 年代以來,排放量已經增加三倍,超過北美及歐洲地區排放量總合,預估未來的數十年仍將持續此趨勢(Akimoto,2003)。汽車 排放的NOx和碳氫化合物經過光化學反應生成臭氧,給大陸大城市帶來了新的污染問題—以臭氧為代表的光化學污染(柳,2004)。來自中國大陸高濃度的臭氧及 其前驅物,通過長程傳送,影響了下游地區的韓國、日本、台灣等地的大氣化學

臭氧是一種強氧化劑,主要的來源為光化反應,若臭氧產生於對流層頂之 上,則有助於吸收來自太陽的紫外線,對於地表的生物生存環境有正面幫助。但 若臭氧生成於近地面,則為一種污染物質。對流層的臭氧對於人類有很大的影 響,當其濃度過高則會產生如影響人類呼吸道 (McConnell et al., 2002),以及使動植物異變 (Kappos and Koss, 1990)。等負面影響。自民國86年開始,臭氧已 取代懸浮微粒,成為台灣地區最嚴重的空氣污染物,最近數年更佔總污染事件的 70% (劉,2005),可見臭氧對台灣的空氣品質有著重要的影響。

對流層臭氧受到光化反應以及傳送作用之間複雜的交互作用的影響,其最主 要來源為本地的光化學反應生成(Crutzen, 1972; Chameides and Stedman, 1977; Fishman and Crutzen, 1978; Fishman et al., 1979),以及平流層注入(Junge, 1962; Danielsen and Mohnen, 1977; Fabian and Pruchniewicz, 1977; Holton et al., 1995),影響這兩者相對重要性的因子,為人為排放所導致臭氧前驅物(例如 NOx、碳氫化合物、一氧化碳)的增加,以及平流層臭氧的減少。其他影響對流 層臭氧的因子尚有甲烷的濃度(Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), 1996),太陽紫外線輻射(Fuglestvedt et al., 1994; Madronich and Granier, 1994),氣溫(Vukovich et al., 1977; Sillman and Samson, 1995)等。

墨。學

台灣地區的臭氧除經由本地光化學反應產生之外,長程傳送亦是台灣地區臭 氧來源之一。長程傳送產生的效應是將臭氧的背景值抬升(Fiore et al., 2003),影 響整季的臭氧平均濃度。Lin et al. (2004)利用地面觀測資料,以及HYSPLIT模 式模擬到達萬里背景測站的空氣逆路徑,將長程傳輸分類成:沙塵暴、伴隨污染 物的長程傳輸、背景濃度的長程傳輸等三種。並指出此段期間受長程傳輸的日數 (包含以上三種)佔將近30%,顯示出台灣地區的空氣一定程度受到了長程傳輸 的影響。劉(2005)也分析了台灣地區從1994-2003十年間,空氣污染物濃度的變 化趨勢,發現冷鋒過境後台灣之臭氧平均濃度約增加15%,顯示源自亞洲大陸, 代表光化污染物的臭氧,對台灣的背景臭氧濃度的影響有顯著的增加。 有關長程傳送對台灣背景臭氧的影響,王等(1994)利用四階 Rung-kutta方法 進行積分,計算空氣胞在等熵面與等壓面的運動軌跡(Crum and Stevens, 1988), 以分析1991年9-10朋間墾丁臭氧濃度變化與長程空氣胞軌跡的相關,其結果發現 臭氧背景值在10~20ppbv時,24小時前軌跡線主要來自東南或東方,且伴隨較高 濕度及上升運動:臭氧背景值在40~50ppbv時,主宰的氣流為下沈性,且相對濕 度較低(~80%),軌跡來向大致為東北方。

Liu et al. (1995)指出墾丁測站的臭氧濃度與大尺度氣團的傳送有關,當綜觀 尺度為大陸性高壓籠罩時,墾丁測站會觀測到穩定的高濃度臭氧,此時臭氧濃度 不會有明顯的日變化,推測這個現象可能與來自中國大陸、韓國、日本以及東海 的臭氧長程傳送有關。

柳等(1999)以1993年1月與4月、1992年7月與10月等共四個月的資料代 表四季,利用 850hPa 等熵面及 305K 等壓面,分析每12小時空氣胞自蘭嶼逆推 72小時的軌跡,以探討蘭嶼上游空氣源在不同季節下的分佈狀態。其結果顯示, 元月份空氣胞部分源自大陸上空,走向東南,以順時鐘方式下降到達蘭嶼上空, 並推測與大陸冷高壓自蒙古出海,所造成大尺度氣流運動有關。四月份空氣多源 自菲律賓半島走向華南。七月份受太平洋高壓影響,空氣由南方而來。十月份空 氣則從台灣北方~東方洋面到達蘭嶼。在來源組成方面,柳利用空氣出現在網格 點的機率之方式來分析路徑來源比例。文中並由1995~1998的監測資料,分析 各氣象因子與大氣化學物質的關連性,指出臭氧為最佳之辨認季節性氣團變動的 大氣化學因子,冬季乾冷大陸氣團影響顯著,臭氧濃度高;夏季暖濕海洋氣團影

進一步的柳等(2004)則利用數值模擬的方法,針對冬夏各一個案,來確認蘭

嶼島監測資料主要受長程傳送影響;並分別進行無污染與考慮污染之模擬,以定 量探討上游自然與人為之貢獻。其結果指出,夏季受太平洋與南海海域乾淨海洋 性空氣影響,臭氧濃度維持在18ppbv上下,其中人為約佔2-4ppbv。冬季時, 源自於西伯利亞之高層空氣出海後,高度急遽下降,造成洋面上大範圍的高臭氧 濃度,其中述經中國大陸高污染源區,促成臭氧生成增加,臭氧濃度在東亞大陸 附近洋面維持在45ppbv上下。其中人為污染項貢獻約為5ppbv。

而柳等(2005)則將蘭嶼背景站自 1995 至 2005 之月平均臭氧觀測值與日本與 那國島背景測站的觀測資料進行比對。其結果發現兩者的相關係數達 0.92,且 兩者均呈現冬春高、夏秋低之現象。長期趨勢來看,蘭嶼測站有增加趨勢 (0.75ppbv/年),然而若以季節分類,可發現夏季為上升,冬季反而呈現下降情形。

劉(2005)其研究亦指出過去數年,台灣許多地區的臭氧發現到有持續增加的 趨勢。且除台灣之外,世界各地的臭氧亦有增加的現象,包括日本、香港和夏威 夷,並推測可能與長程傳輸增加有關。

由以上研究可得知,長程傳送的確對於台灣地區的背景臭氧值具有很大的影響性,然而之前的研究多以個案分析或是小樣本分析為主,目前台灣地區尚無一 針對空氣胞來源與背景臭氧間長期變化的定量分析統計研究。本研究將接續柳等 人的工作,藉由 HYSPLIT 逆軌跡模式模擬出空氣胞的逆軌跡線,並利用群集分 析的方法,來定量統計從 1995-2007 近十三年內蘭嶼地區空氣胞來源,其空間與 時間中的分布特性與變化,及其和蘭嶼背景站所測得臭氧值之關係探討,並藉由 台灣空氣品質模式(TAQM),進行個案模擬,來探討空氣胞在路徑上的臭氧值變 化及成因。

本文第二章將針對資料來源進行說明,第三章將介紹本研究使使用的統計方

法--群集分析方法,第四章將對群集分析的分群結果進行分析,並利用空氣來源 與測站臭氧值進行比對,試著找出兩者間之相關性,以及個案模擬探討。第五章 則為結論與展望。



# 第二章:資料來源

本章將分節介紹本研究的各項資料來源及模式介紹:包括蘭嶼背景站及臭氧 觀測值;逆軌跡線模式 HYSPLIT,以及個案分析時所利用的台灣空氣品質模式 TAQM。

### 2.1 臭氧資料來源

本研究的其中一個重要目的為利用蘭嶼背景站的臭氧資料與空氣胞逆軌跡 線進行比對,以了解大氣長程傳送的時空變化。以下分別對蘭嶼背景站進行簡介 及對臭氧資料選取方法進行說明。

# 2.1.1 蘭嶼背景站簡介



國科會氣候與空氣品質台灣站(CATS)研究群,在1989年11月召開中美研討 會,討論我國科學界未來在參與全球變遷有關大氣背景觀測方面所應進行之工作 (柳,1992)。背景大氣監測的主要目的,是希望能長期的監測大氣成分的改變。 1993年1月中央氣象局與CATS研究群共同規劃後,決定以蘭嶼站為背景測點,逐 步建立包含O3、CO、SO2、NO、NO2與CO2的自動監測。

蘭嶼氣象站(圖2.1.1)(22°02'122°33')高324公尺,位於蘭嶼島(圖2.1.2、圖 2.1.3)中央,大致上,蘭嶼背景站應可視之為東亞區域背景站,其空氣胞源自東 亞各地,當然也經過台灣西部污染地區,但是空氣胞在經過相當充裕的時間後, 才抵達蘭嶼,因此所測得的空氣性質並非是初排放之污染物,而是已經相當光化 反應後之物質。且由於台灣東岸之污染較少,加上位於山頂的測站風速強,測站 觀測受台灣本島污染影響的機會並不高,因此其觀測值可充分反應經由長程傳送 帶至蘭嶼之空氣污染物濃度,加上蘭嶼本地污染源影響有限,這些均使得蘭嶼所 測空氣胞代表著大範圍地區的均勻背景特性。此外柳等(1999)並發現該測站並不 受區域性熱力系統影響,符合背景大氣監測條件。

## 2.1.2 臭氧資料

本研究所採用之背景臭氧值來源,即是由蘭嶼背景站監測值所提供。且為了 避免臭氧觀測值在日間受到蘭嶼附近漁村的污染,我們只採取夜間的資料(每日 晚上六時至羿日早上六時共十二小時)的平均做為日平均。測站的臭氧監測設 備,是使用 TEI 49S 臭氧連續監測儀,測定原理為 UV 紫外光吸收原理(UV absorption principle),精密度為2ppbv。每十秒可擷取一次資料,資料存取則以 小時平均值為主。每週二次跨距(span)校正,每日凌晨進行1小時完全自動零點 及跨距校正。此外,每三個月或儀器重大故障修復後,會執行含零點共5點的校 正流程,以確定儀器準確性。更詳細的監測訊息,在柳等(1999)中已有更完整的 介紹。另外共計176 筆夜間平均資料因為蘭嶼測站原始監測資料缺漏而被排除, 佔總資料的3.7%(176/4672)。

#### 2.2 軌跡線模式 HYSPLIT:

在統計方法上,空氣胞的逆軌跡線時常和空氣品質的監測結合,以辨認空氣 污染物的可能來源及分析其對本地污染物監測值造成之影響(Stohl, 1995)。而逆 軌跡線最好的使用方式,是能找出空氣胞代表性的移動路徑,而非單一空氣塊精 確的移動路徑。利用大量空氣胞路徑進行氣候統計,將可減少個別空氣胞路徑的 誤差(Harris and Kahl, 1990)。因此若是能將同一地區長時間的空氣胞逆軌跡線進行適當分群,將能夠更清楚了解到空氣胞的來源及其所攜帶臭氧的時空特性。

本研究所模擬出的空氣胞逆軌跡線,是採用 HYSPLIT 模式,此模式是由美 國國家大氣與海洋署(National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) 中的空氣來源實驗室(Air resources laboratory)所開發得來(Draxler and Hess, 1998; Draxler and Rolph, 2003; Rolph, 2003)。HYSPLIT 的全名為混合單一粒子拉 格朗日軌跡模式(Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model), 模式最主要特色為利用拉格朗日(Lagrangian)方法計算粒子的平流與擴散作用, 而以尤拉(Eulerian)方法處理輸入的氣象資料。自 1982 年問世以來,至今已發展 到第4版,而我們所採用的是 2006 年所發表的第4.8 版。此模式目前廣泛的被 應用在有關空氣胞路徑模擬與污染物擴散、傳送等大氣化學相關研究。國內也有 許多利用此模式來進行空氣污染物或長程傳送的相關研究。(Lin et al., 2007; 陳, 1995; 吳, 2002)。

零。學

模式中的空氣軌跡計算方程可用式(1)與式(2)表示:

$$P'(t+\Delta t) = P(t) + V(P, t) \Delta t$$
(2-1)

$$P(t+\Delta t) = P(t) + 0.5 \left[ V(P, t) + V(P', t+\Delta t) \right] \Delta t$$
(2-2)

式(1)中的 P(t)代表的是初始三維位置,V(P,t)代表的是當時間為t,位置為 P 時,經由線性內插所得的三維速度向量,P'(t+Δt).代表的是經過Δt 時間後所初 始猜測的位置。而式(2)中的 P(t+Δt)則是在考慮到初始位置與初始猜測位置後, 最終計算出的位置。 在模式的誤差部分。研究發現 HYSPLIT 模式所模擬出的逆軌跡線,在整條 路徑上約會有 15%-30%的誤差(Stohl, 1998; Draxler and Hess, 2004),其中不確定 性會隨著模擬軌跡時間越長而增加。另外 Stohl et al. (1995)也指出風速低的區域 會造成空氣胞來源的不確定性增加。然而若是利用統計方法,來考慮路徑相似的 "軌跡族群",則單一軌跡線模擬的限制與不確定性,將在某種程度上減少(Cape et al., 2000)。

在輸入的氣象場部分,我們所採用的是 NCEP/NCAR Reanalysis 的全球尺 度資料。此資料的時間可從 1948 至今。其水平方向空間解析度為 2.5° x 2.5°, 垂直方向使用 Pressure level,共有 18 層(表 2.1),時間解析度方面則在每日 UTC00、UTC06、 UTC12、UTC18,一日共四筆資料。此在近地表的變數包括 了地表氣壓、2M 高的溫度、10M 高的 U、V 方向風速、六小時累積降雨,而高 空的變數則包括了高度、溫度、U、V、W 三維方向風速、以及相對濕度。其中 空氣胞垂直運動所採用的即是氣象場內建之垂直速度。而氣象場在每一個水平網 格點的資料,將會被線性內插至內建地形的σ垂直座標系統:

$$\sigma = (Z_{top} - Z_{msl}) / (Z_{top} - Z_{gl})$$
(2-3)

Ztop.代表的是軌跡模式座標系統的頂端, Zmsl 代表的是內部座標的高度, Zgl 代表的是地表的高度。

Dojojojojejej

#### 2.3 數值模式

本研究在個案模擬時,將使用數值模式進行模擬。所使用的模式包含兩個部

分,第一部份為中尺度氣象模式 MM5, MM5 模式輸出氣象場模擬結果,再經整 理後,提供第二個部份台灣空氣品質模式(TAQM)所需之三維風場、溫度場、濕 度分布及氣壓擾動場等資料,及二維的大氣物理參數如地面溫度、地表壓力、邊 界層高度、雲覆蓋比例等資料,以進行大氣化學場之模擬分析。

### 2.3.1 中尺度氣象模式 MM5

輸出氣象場所使用的模式為第五代中尺度數值模式(MM5),是由 PSU/NCAR 所發展出,此模式最早是由美國賓州大學的 Anthes 以及 Wagner 所 研發出的靜力模式為依據(Anthes and Wagner, 1978)。本研究所使用的第二版 (MM5V2)已經可以進展至一靜力或非靜力的選擇,以供有限區域模式選用 (Dudhia, 1993)。對於複雜的中尺度天氣系統來說,利用 MM5 的模擬,可以彌 補因觀測資料不足,而無法充分掌握天氣系統在時空上變化情形的缺失。

MM5 中尺度系統模式的操作流程如圖 2.3.1 所述。其中前處理系統主要組 成為:TERRAIN 模組、REGRID 模組、Rawin 模組與 INTERP 模組。其中模式 的資料初始場的建立步驟為:利用 Terrain 模組將所需要模擬區域之地圖投影至 投影所需之網格上,投影方法包括蘭伯特保角投影法(Lambert projection)、麥 卡托投影法(Mercator projection)及極座標投影法(Polor sterographical projection),並將地形及地表特徵內差建置於所選取之網格內。REGRID 模組則 是將全球觀測分析資料內插至所需模擬區域的網格中,而 Rawin 模組則是將密 集的地面及高空觀測資料以客觀分析方式加入至網格資料中。另外,INTERP 模 組負責將 REGRID 及 Rawin 等模組產生之資料(P 座標系統)轉換成至 MM5 模 式所需使用之σ座標系統,最後經由初始化,才開始經由 MM5 model 主程式積 分運算。 本研究中模式模擬的範圍是設定在東亞區域,從中國北方及蒙古一直到台灣 及東南亞(圖 2.3.2)。以東經 120 度,北緯 25 度為中心,網格解析度為 60km, 共有 99 x 99 個網格點。模式在水平方向是使用卡氏座標,並利用蘭伯特保角投 影(Lambert Projection);在垂直方向的解析度屬於 non-uniform(表 2.3),向上取 の座標,共分成 24 層。使用歐洲氣象中心(EC)資料為初始分析場,模式中使用 的 explicit moisture schemes 為 simple ice shceme,積雲參數化為 Anthes-Kuo scheme,輻射處理方法為 cloud-radiation scheme。在模擬過程中每小時輸出一次 氣象場預報結果。為協助 TAQM 初始場之建立,MM5 的運算始自模擬期的前二 日。

## 2.3.2 台灣空氣品質模式 TAQM:

TAQM(台灣空氣品質模式)是由行政院環保署委託台灣大學環境工程研究 所所引進發展而成的區域性空氣品質模式,早期的架構乃根據美國環保署的"酸 沉降評估計畫"(National AcidPrecipitation Assessment Program, NAPAP)所 發展的"區域性酸沉降模式"(Regional Acid Deposition Model, RADM)為主, 後來參考美國加州SARMAP Air Quality Model (SAQM)先進的數值方法做修 正,並加入台灣本土排放資料、光化反應速率常數、天氣條件等發展而成的三維 尤拉式(Eulerian)模式(鄭等,2000)。模式最重要的核心程式為化學傳輸模式, 並採用與MM5氣象相似的巢狀網格(Nesting techniques)技術,因此模擬範圍 可大至數千公里,涵蓋東南亞地區,小至數公里,可應用在區域性模擬(Regional scale)或解析都市尺度(Urban scale)的空氣汙染現象,應用上的彈性相當大。 本研究所使用的即是1999年建立的第二版。

TAQM 可模擬的大氣對流層中空氣污染重要之物理及化學過程,包括了傳

輸、擴散、沈降、氣相及液相化學反應,以及光化學反應等。並可依模式中不同 的化學物種,來求解每個化學物種在網格點上之質量守恆方程:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\nabla \cdot (\overline{v}c) + \nabla \cdot (ke\nabla c) + P_{chem} - L_{chem} + E + (\frac{\partial c}{\partial t})_{cloud} + (\frac{\partial c}{\partial t})_{dry}$$
(2-4)

其中 c 為模擬大氣中某物種的濃度; v 為三維的速度向量; ke 為紊流擴散係數 (Eddy diffusivity); P<sub>chem</sub> 與 L<sub>chem</sub> 為大氣氣相化學的反應生成與消耗速率; E 為污 染源排放污染物之速率;  $(\frac{\hat{c}c}{\hat{c}t})_{cioud}$  為雲效應所造成之濃度變化率;  $(\frac{\hat{c}c}{\hat{c}t})_{dm}$  為地表沈降 所造成的濃度變化率。

TAQM水平為卡氏直角座標系統,其採用的投影方式亦屬於蘭伯特保角投影 (Lambert comformal projection),此投影法非常適合中緯度地區,投影所產生 的地理輪廓變形較少。在垂直座標方面採用非靜力平衡(Non-hydrostatic)的σ 座標系統,此座標系統最大的好處是垂直座標實際上隨地形高度而變化。在光化 學機制方面,理論上要解析大氣化學的現象必須對所有的反應物種與反應方程式 同時進行計算,不過受限於計算時間與計算機能力,這樣的理論解析方式幾乎是 不可能的,比較合理的方法是採用化學物種簡併(Lumping)的方式,將具同類 特性的大氣化學物種合併,如此可將為數眾多的大氣化學簡併到可接受的程度, 數以千計的大氣化學反應式亦可簡併為數十到數百條。目前TAQM所包含的版本 已有CBM4及RADM2版。計算方面,TAQM 目前設計的計算全時間步階(full time step)長度為5 分鐘,亦即所有的物理與化學程序每5分鐘模擬時間完成一次時 間的進程。

而TAQM的運作流程如圖2.3.3,氣象資料的前處理是將MM5模擬之逐時氣 象結果進行內插,計算乾濕沈降的速率,並依氣象場處理模組中之基本光化動力 資料,配合氣象狀況與實際太陽天頂角等資料,計算產生光解係數資料;氣相光 化反應機制是採用RADM2的光化學機制,在無機化學部分包含了14種穩定物 質、4種活性中間體以及含量較高的氧氣、氮氣及水;有機化學反應部份則含括 了26種穩定物質及16種過氧化物自由基為代表。其中包含21個光解反應、136個 化學反應動力方程式,是由Stockwell(1990)所研發。其他更為詳細的機制在鄭等 (2000)有完整的介紹。排放場部分,我們所使用的是以Streets et al. (2003)以及 Woo et al. (2003)的資料庫為基礎。此一排放資料庫包含所有人為排放源、生質 燃燒、火山、以及生物來源。另外包括台灣環保署所提供的高解析排放資料也包 含在其中,模式內建系統並將高解析度的資料庫集安插進TAQM的網格點中以符 合需要。初始和邊界條件是採用 Heald et al. (2003),從GEOS-CHEM v. 4.33 全 球3-D對流層化學模式(http://acmg.seas.harvard.edu/)而來,解析度是2°x2.5°, 垂 直方向有48層。使用的是月平均的GEOS-CHEM資料,來初始化並在每個時間步 階設定邊界條件。其中GEOS-CHEM的輸出允許從北美及歐亞大陸來的上游效應 對區域空氣品質產生影響。

在模式設定方面,TAQM可每小時輸出一筆模擬資料,為節省時間,資料 將是每兩小時輸出一筆。水平解析度同為 60km x 60km,其中 TAQM 採取的是 邊界內一層的網格點濃度為預設,所以模式網格點數為 98 x 98,垂直方向的解 析度則是將 MM5 資料的 24 層內插至 15 層(表 2.3.2)。

13

# 第三章:研究方法

0

本章節將說明本研究所使用的統計方法--群集分析(Cluster analysis),包含簡 介、本研究所使用的 K 平均方法(K-means method)介紹、以及針對此法的缺點 所做出的修正

### 3.1 群集分析簡介及其在空氣胞逆軌跡線上之應用

群集分析是一種多變數的統計法,被用來探索資料集(dataset)中的結構 (Anderberg, 1973; Everitt, 1980)。其目的主要是能夠將同一群的資料中的差異最 小化,並同時將群與群之間的差異最大化,意即使得每個群集中的資料點間相似 程度高於與其它群集中資料點的相似程度。常見的群集分析方法分為階層式 (Hierarchical)與非階層式(Non-hierarchical)兩種,分別描述如下:

階層式的群集分析方法分為聚合法(Agglomerative nesting)與分裂法(Divisive hierarchical clustering)兩種:聚合法是將先將所有項目視為獨立的族群,接著再 反覆將距離相近的族群併入同一群中,族群數會越來越少,而族群內的項目則會 越來越多,直到達到需要條件為止;而分裂法則是將n個項目視為一個大族群, 接著反覆將大族群分裂成各個小族群,直到達到需要條件為止。一般說來聚合法 較為常見。

驅

而決定族群分合的依據,則是由資料群的距離而決定,一般來說兩資料群距 離的計算法,分為以資料群中最小距離做為族群分合依據的單一連結法 (Single-linkage method)、以資料群中最大距離做為族群分合依據的完全連結法 (Complete linkage method)、以各資料群中的平均距離做為族群分合依據的平均 連結法(Average linkage method),以及非以點與點間距離為分類依據,而是計算 兩資料點(或群)的距離平方和,以最小平方和做為合併族群依據的華德法(Ward method)等。(Johnson, 2002)

非階層式的群集分析方法則最主要是以K平均法(K-means method)為主,K 平均法是由MacQueen(1967)所提出,其步驟如圖3.1所示,首先第一步要先決定 K值,即期望的族群數;決定族群數後,隨機將所有資料分配到K個族群中,並 利用歐式距離(Euclidean distance)算出每一族群的質心(Centroid)。歐式距離的公 式如下:

$$d_2 (x_i, x_j) = \left(\sum_{d=1}^k |x_{id} - x_{jd}|^2\right)^{\frac{1}{2}}$$
(3-1)

接下來分別計算每一個樣本到各個質心的距離(包含自己族群),並比對樣本至各 質心的距離,並將樣本重新分配到距離本身最近的質心所在族群中(若距離自身 所在族群的質心最近,則不需移動);將所有樣本都全部重新分配完畢後,各族 群再計算出新的質心,並重覆前面步驟,如此反覆計算直到全部樣本都不須重新 分配到別的族群為止。

群集分析方法目前普遍的應用在各種領域之中,包括商業(Punj and. Stewart, 1981)、生物(Eisen et al., 1998)、醫療(Clatworthy et al., 2005)等等。而氣象上為 了減少氣候統計的主觀性,並改進對於大量氣象資料的分析,群集分析在1980 年代末期開始應用在分析氣象資料上,成為一個有效的工具(Kalkstein et al. 1987)。應用範圍除了分析降水特性(Gong and Richman, 1995)、辨認區域氣候特 性(Unal, 2003)之外,氣象上一個很常見的應用領域,即為空氣胞逆軌跡線的群 Moody(1986) 以及Moody and Galloway(1988)是最早利用群集分析來對大氣 軌跡線進行分析的研究,其應用群集分析方法,來詮釋軌跡線與降雨資料間的關 係。之後世界各地亦有許多研究,都曾利用群集分析的方法,來量化空氣胞的長 程傳送時空特性,或加以配合當地空氣污染物觀測,分析長程傳送對空氣造成的 影響,例如愛爾蘭的Cape et al. (2000)、香港的Chan et al. (2002)、西班牙的 Jorba et al. (2003)等。因此我們認為,利用群集分析來對到達蘭嶼的空氣胞逆軌跡線 進行分群,將能夠對到達台灣地區的空氣胞進行特性的分析。

3.2 方法简介

本研究將先利用 HYSPLIT 模式,模擬出 1995 年 3 月-2007 年 12 月將近十 三年間,每日到達蘭嶼的空氣胞其倒退三維空氣路徑。HYSPLIT 雖提供最多至 144 小時的空氣胞逆軌跡模擬,但在倒退 120-144 小時的資料卻多有缺漏,因此 我們僅採計至-120 小時。在時間選取部分,為了配合夜間臭氧值以進行比對, 我們每日僅採計 UTC12 時的資料,也就是台灣時間晚上八點的資料做為初始時 間,來模擬三維的逆軌跡路線。而在模擬完所有逆軌跡線後,我們再利用群集分 析的方法來將所有項目來將到達蘭嶼的空氣路徑進進行適當的分群。

在群集分析方法的選擇上面,我們決定使用是非階層式方法中的K-means 法,K-means法有著方法簡單且計算需求低的優點,並且也廣泛的利用在軌跡線 的分群中來判斷空氣可能的來源,(Abdalmogith and Harrison, 2005; Hafner et al., 2007)、研究綜觀天氣現象(Avila and Alarcon, 1999)等氣象相關研究中。 然而此方法亦有一個明顯的缺點,就是我們一開始是希望能用較為客觀的方 式進行分類,然而若單純使用 K-means 的方法,一開始就要先決定組數,而這 是較為主觀的作法:若族群分類過多,則雖然族群內的資料其同質性較高,但可 能部分族群間的差異不明顯;若族群分類過少,則會降低族群內資料的同質性, 把具有不同特性的項目分在同一族群的可能。

因此針對這個缺點,我們不採用預先決定組數,再將軌跡線進行單次群集分 析的方法,而是將原本的方法加以修改:考量到空氣胞距離蘭嶼越遠,所可能的 來源越多樣化,但每小時的變化並不致於太大,我們使用的是修正型單點群集分 析運算,方法簡述如下:

- (1)首先選擇一起點時間,將族群分成2組
- (2)以步驟(1)時間為標準進行倒推,每隔n小時,就將族群數加1再進行一次群 集分析
- (3)如此重覆計算直到時間已倒退至軌跡線源頭(倒退120小時)為止
- (4)每條軌跡線在每次的群集分析都會有其分類結果,依照每次的分類情形將各個樣本依樹狀圖分成子族群。
- (5)然而部分子族群可能為空集合或是樣本數不具代表性,因此在分群完之後, 最後再設定一個樣本數比例的標準,來得到具有代表性的空氣胞來源族群。

經由敏感度測試後,我們決定將起始時間設為-72小時,n設為24,也就是 把所有空氣胞從到達蘭嶼的前72小時、前96小時以及前120小時這三個時間點 的水平點位置,利用 K-means 法依序分成2、3、4 類,如此每一條空氣胞路徑 在這三個時間點,會分別有一個分類結果,再依照這三次分類情形將空氣胞依樹 狀圖分群(圖3.2)。以此樹狀分群法,最多可能會有2 x 3 x 4 共 24 種子族群, 之後再從其中設定族群所佔比例標準,選出具有代表性的族群。修正過的方法比 起單次 K-means 分類法,仍然有考慮到路徑,且最後所選出的族群是由族群所 佔比例來篩選,較預先決定組數的方法更能反應空氣胞來源特性。



# 第四章:結果分析

此章節將針對本研究的結果進行分析。首先會先介紹群集分析的結果,之後 會分別討論各族群空氣胞與其所攜帶臭氧值的時空分佈特性,並針對空氣胞路徑 與臭氧值的年際變化進行探討,最後將討論同一族群內攜帶不同臭氧濃度的"次 族群"路徑差異,並利用 TAQM 進行個案模擬分析。

### 4.1 分群結果與空氣胞的時空分佈特性探討

從 1995/03/01 至 2007/12/31, 扣除掉缺漏資料, 共有 4672 筆軌跡, 分類結 果如表 4.1.1 所示, 在 24 個樹狀子族群中有 17 個有個案存在, 我們設立的標準 是子族群的逆軌跡線數須超過全體總數的 5%, 意即個案數在 234 筆以上, 才被 視為是具有代表性的族群。最後通過此標準的共有六個子族群, 此六族群的加總 共有 4406 筆逆軌跡線, 約佔所有逆軌跡線的 94.3%。之後我們將利用此六主要 族群來進行分析。

### 4.1.1 空氣胞空間分布特性

圖 4.1.1 為六主要族群水平方向的平均五日逆軌跡路徑,為了之後描述方 便,我們分別將此六族群分別以代號表示,分別為:從西北方來的族群 A,從北 方來的族群 B,從北北東方來的族群 C,從東北方來的族群 D,從東方來的族群 E,以及從西南方來的族群 F。表 4-1-2 為 1996 年-2007 年 12 個完整年間,族群 出現頻率所佔比例,此六族群中是以族群 E 為最高,佔總軌跡的 21.8%;其次為 族群 F,佔總軌跡的 20.8%;族群 B、族群 A 和族群 C 則分別佔全部軌跡的 17.4%、 15.1%及13.4%; 族群 D 則在六類中所佔比例最低, 佔所有軌跡的 5.8%。

圖 4.1.2 為六族群所有個案倒退五日的水平逆軌跡線總分布。族群 A、B、C、 D 的路徑較為集中,多與平均路徑接近:族群 A 的空氣胞從高緯的蒙古一路向 東南,經由勃海出海口來到蘭嶼;族群 B 的空氣胞由東俄羅斯經由勃海或韓、 日等地向南而來;族群 C 的空氣胞是從日、韓等地繞一小弧抵達蘭嶼;族群 D 空氣胞的路徑則是從日本東方,經由日本或日本南方海上向西南方到達蘭嶼。族 群 E 及 F 的範圍較為廣大:族群 E 涵蓋了從東北到東南各個從太平洋上來到蘭 嶼的路徑;而族群 F 則包括了從蘭嶼的東南、南及西南方,各個往北移的路徑。

而在垂直方向上的路徑變化上。圖 4.1.3 為六族群的逆軌跡線平均高度:族 群 A 的空氣塊在抵達蘭嶼的五日前平均高度最高,約從 2600 公尺高一路南下至 蘭嶼,高空風速強也造成了此族群空氣胞水平移動距離較長;族群 B 的平均高 度則約為 1500 公尺高;族群 C 平均高度則更低一些,約 1100 公尺高;而另外 三個族群在垂直方向的逆路徑上,幾乎是沒有高度變化。由垂直方向的逆路徑可 以發現從陸地上空而來的族群 A、族群 B、以及族群 C,是由高層向下傳送而來 到蘭嶼,而從海洋來的族群則是由平地來到台灣。

#### 4.1.2 六類空氣胞典型個案

接著我們從六族群中各挑選一個典型個案,來觀察其綜觀氣象場的形態。圖 4-1-4 為六個典型空氣胞逆軌跡線,與到達蘭嶼兩日前的地面氣壓場(由美國 NOAA/ESRL 的 Physical Sciences Division (http://www.cdc.noaa.gov/data /composites/day)網站所繪製)疊圖所繪製。族群 A 的個案到達蘭嶼日期為 2001/12/15,當日蘭嶼夜間臭氧平均值為 44.4ppbv,這是一個典型的冬季冷高壓

籠罩在大陸上方的天氣型態,此時空氣胞從外蒙古高空向南方移動,並向下到達 台灣。族群 B 的個案到達蘭嶼時間為 1999/2/14,當日蘭嶼夜間臭氧平均值為 45.8ppbv 可以發現這同樣是冬季冷高壓籠罩的情形,空氣由北方向南傳送至台 灣。但是與族群 A 不同的是, 高壓的勢力稍弱一些, 等壓線沒有那麼密集, 使 得一般來說族群 B 的空氣胞在五日內移動的速度沒有像族群 A 那麼快速,然而 若族群 B 的軌跡線再向後多倒退幾日,應該可以得到和族群 A 類似的軌跡。族 群C個案到達蘭嶼的時間是1999/11/19,當日蘭嶼夜間臭氧平均值為38.1ppbv 此時綜觀天氣仍是大陸冷高壓佔優勢,並出現了分裂高壓要出海的情況,此時空 氣胞將會順著氣壓場從北北東方的韓國來到台灣。族群 D 個案到達蘭嶼的時間 為 2002/10/15,當日蘭嶼夜間臭氧平均值為 35.1ppbv,此路徑如同前面所述,較 好發於季節轉換之時節,此時大陸冷高壓與太平洋高壓並無一方佔明顯優勢,在 適當氣壓場配置下,空氣胞從日本來到台灣。此外,若是有秋颱接近台灣,此時 空氣亦有可能從東北方而來到台灣。族群 E 的個案時間是 2007/6/21,當日蘭嶼 夜間臭氧平均值為18.0ppbv,在此時綜觀天氣場已改由太平洋高壓所主導,當太 平洋高壓勢力強盛時,空氣胞將會順著高壓由東向西到達台灣。族群 F 的個案時 間為 2007/6/1,當日蘭嶼夜間臭氧平均值為 15.0ppbv。當太平洋高壓勢力較為減 弱時,此時空氣胞將會隨著西南風,由西南方向東北到達台灣。

#### 4.1.3 空氣胞來源月份分布特性

接下來我們試著將蘭嶼的空氣胞來源的月份及季節分布特性進行探討。首先 以族群的角度,來看各族群在不同月份及季節的分佈特性,結果如表 4.1.3。族 群A主要出現在冬半季(10月-3月)這段期間,此時的軌跡線數佔了A族群 92.4% 的比例,其中11月、12月及1月所發生的比例各都超過15%,而6月到9月所 發生的比例均不超過1%,可得知此類型為明顯的冬季族群。族群 B 和族群 A 類 似,好發於冬半季,在冬半季的個案數佔族群 B 個案的 81.1%;而在各月分布上, 族群 B 較族群 A 的發生時間範圍更廣,在 4 月以及 9 月都有 5%以上的比例。族 群 C 亦屬於冬多夏少的族群,但不同的是在秋季(9,10,11 月)所發生的比例較高, 所發生比例佔族群 C 的 43.2%,冬季(12,1,2 月)其次,佔族群 C 的 30.4%。族群 D 和前三類並不相同,發生在冬季的比例僅 7.6%,其主要發生在季節轉換的期 間 4 月、5 月、9 月、10 月,其中秋季即佔了全部族群 D 中超過一半,達 50.2% 的個案,並以 10 月份所佔的比例最高,達 24.3%,可以說是屬於過渡性族群。 族群 E 是唯一一個在各月份都有超過 20 個個案的族群 (最少為 12 月的 21 筆個 案),然而沒有任何一個月的比例超過 15%;在其發生的頻率上除了冬季所發生 的比例較低(7.4%)之外,在春、夏、冬都有著一定的發生比例,分別為 36.2%、 35.0%、21.4%。族群 F 則完全和族群 A 相反,是很明顯的夏季族群,6、7、8 三個月分別佔全年族群 F 個案中 25.4%、22.4%、25.0%的比例,然而冬季所佔比 例則僅有 0.2%。



#### 4.1.4 季節盛行族群特性

接著換以季節為主的角度,來看各季節所盛行的族群,如表 4.1.4、表 4.1.5 所示:在春季(3、4、5月)時,主要是以族群 E 為主,佔了 35.2%的比例,其他 如 A、B、C、F 等族群,也都佔了 10%-20%不等的季節比例,這也表示春季的 空氣來源較不固定。在夏季(6、7、8月)時,族群 E 和族群 F 佔了絕大部分的來 源,其中族群 F 更在這三個月中均佔有超過一半的當月個案比例(6、7、8月的 族群 F 數分別佔當月總個數的 66.9%、58.0%、62.2%個案比例),這表示蘭嶼地 區的空氣在夏季有超過半數是由西南方而來。若將 E、F 兩族群一同計算,則在 夏季有 95%的個案屬於此兩類,因此可以說是夏季個案絕大部分都是屬於這兩 類,由西南方及東方而來。在秋季(9、10、11月)時的空氣來源和春季一樣屬於 不穩定的情形,其中以族群 C 所佔比例最高,佔了秋季 23%的來源比例,其他 族群像是 A、B、D、E 等,也都佔有秋季 10%以上的比例;值得一提的是,族 群 D 雖然總個案數較少,因此在各月份所佔的比例均較低,但在秋季仍佔有 11.6%的個案比例。在冬季(12、1、2 月)時,族群 A 以及族群 B 所佔的比例都超 過 30%,並佔了全部冬季資料的 72.8%,可見冬季的空氣胞來源是以這兩類最為 重要。

#### 4.2 各族群所攜帶之臭氧值討論

本小節藉由將蘭嶼背景站所測得之臭氧值與空氣胞路徑比對,來探討長程傳 送對臭氧背景值的影響。首先為了驗證蘭嶼臭氧的有效性,我們延續了柳等(2005) 的工作,選取了日本與那國島測站(24°28'N,123°01'E,30m,其地理位置如圖 2.1.2 所示。將其日平均臭氧監測資料(自1997年1月起)與蘭嶼夜間臭氧監測資 料進行比對,表4-2-1 與表4-2-2 分別為其統計比對結果與季節性比對結果,圖 4.2.2 為兩者之月平均臭氧濃度變化,兩者間的相關性相當高,達到90%。平均 來說與那國島測站之臭氧值較蘭嶼測站值高約3ppbv,兩者均呈現冬春高,夏秋 低的季節性變化現象。推測與那國島臭氧值較高的原因,包括其緯度較蘭嶼高, 距中高緯排放源較近、以及監測資料的基準不同(其每日資料是採用日平均而非 如同蘭嶼僅計夜間)等。由驗證結果,我們認為蘭嶼測站能反映此區域的臭氧背 景值,並將以此測站之觀測值來和逆軌跡族群進行比對。

表 4.2.3 顯示的是我們所選取的時間中, 六逆軌跡族群到達蘭嶼時, 蘭嶼測 站所測得的臭氧值分佈表。在平均臭氧值部分,由西北方及北方的高空來來的族 群 A 與族群 B,其臭氧值較高且兩者平均值相當接近,分別為 45.8ppbv 以及 46.2 ppbv;由北北東方而來的族群 C 的值較低一些,為 42.9ppbv;由東北方而來的
族群 D,其平均臭氧值為 35.7ppbv;而從東方經太平洋而來的族群 E 與從西南方 而來的族群 F 則與前面四個族群有明顯的差異,其平均臭氧值分別為 21.7ppbv 與 22.8ppbv。另外六個族群的標準差則落在 8-14ppb 中間,並無特別高的族群。 配合三維的族群平均路徑,可以明顯的發現臭氧值與空氣胞來源有密切的關連: 由高緯度高空而來的空氣所攜帶之臭氧值明顯較高:包括從亞洲大陸高空而來的 族群 A、B 及 C;族群 D 雖從低層而來,然而其從較高緯度向南傳送,仍帶來 >35ppbv 的臭氧值;從中緯或低緯海洋而來的族群 E 及 F,攜帶臭氧值則較低。

接著試著比較各類臭氧的中位數以及四分位距(Interquartile Range,指第三四 分位數減去第一四分位數之值),以了解臭氧值的離散狀況。可以發現六個族群 的中位數均十分接近其平均值(六類之中位數分別為45.5ppbv、46.2 ppbv、 42.8ppb、35.4ppbv、17.3ppbv、20.1ppbv),表示資料無明顯左右偏移。另外六類 的四分位距分別為14.0ppbv、11.7ppbv、13.2ppbv、21.1ppbv,18.6ppbv以及 11.3ppbv。其中可以看出族群D及族群E的四分位距較其他四類來得大,族群D 的四分位距較大的原因可能是因為族群本身資料量較少,而族群E的四分位距 較大的原因可能是因此族群的時間分佈分散在各月份,使得此種空氣來源所攜帶 之臭氧值散布範圍較廣。

接下來藉由分析各個族群中不同臭氧濃度所佔的比例,來進一步的了解臭氧 在各個區間的分布情形。如圖 4.2.3 所示。濃度從 5ppbv 開始,以 5ppbv 為組距 一直至 90ppbv 止,分別計算六個族群在各濃度所佔的比例。族群 A 和族群 B 的 曲線相當接近,呈現接近常態分布的情況。但族群 A 在 35-50ppbv 這一段所佔的 比例較族群 B 來得高,可見族群 A 的臭氧值更為集中在此範圍;族群 C 亦為類 似常態分布曲線,但曲線較偏西;族群 D 的分布呈現雙峰的情形,分別出現在 20-25ppbv 以及 30-35ppbv,且由每一組的比例均不超過 20%來看,此族群較為 零散;族群 E 在 5ppbv~25ppbv 的四個區間都有高於 15%的比例,在 25ppbv~45ppbv 的每一區間也都有大於 5%的比例,可以說散布情形較廣;族群 F 呈現類似常態分布,最高值出現在 15-20ppbv 這一段。

#### 4.3 空氣胞來源與臭氧值的年際變化與相關性探討

本研究的重要目的之一,即為希望能了解近十餘年間,各種空氣胞來源與其 所攜帶之臭氧值是否產生變化。因此本節將分別就族群逆軌跡線及臭氧值其年際 變化與逐季年際變化進行分析,並討論了單一族群內路徑的差異是否和臭氧值高 低有關。

#### 4.3.1 空氣胞來源與臭氧值年際變化分佈特性

圖4.3.1為六族群空氣胞逐年的來源數年際變化圖,表4.3.1提供了相對應的確 切數據資訊。表4.3.2則是六個族群空氣胞來源數目的統計趨勢:可觀察到族群F 呈增加趨勢,並具統計顯著性,上升趨勢為2.3%/年(1.7個/年)。而其他五個族群 的個數分布雖有震盪,但年來源數仍維持在一定的區間內,並無具統計顯著性之 趨勢。族群A的區間約在40~60個;族群B在50~70個;族群C除2005年偏低(28個) 外,個數區間亦在40-60間;族群D的個案較少,年平均在10-30間;族群E除了1995 及1998年偏高(分別為100及111個)外,個數約在60~90間。

在族群臭氧值的年際趨勢方面。圖 4.3.2 為六族群發生時,當日蘭嶼夜間臭 氧值年平均變化圖,表 4.3.3 提供了相對應的確切數據資訊。表 4.3.4 則是六空氣 族群夜間臭氧值統計趨勢。屬於大陸性來源的族群 A 與族群 B 整體來說呈現微 幅下降的情形,分別為-0.2%/年(-0.08ppbv/年)及-0.7% (-0.15ppbv/年);族群 C 有 上升的趨勢,值為 0.7%/年(0.32ppbv/年),且 1997 年之後即均高於 40ppbv;族群 D 增加 0.4%/年(0.14ppbv/年),年平均值在 30-40ppbv 間震盪;族群 E 與族群 F 呈較幅度較大的上升趨勢,上升輻度分別為 2.3%/年(0.52ppbv/年)以及 1.9%/年 (0.42ppbv/年),其中族群 E 的上升具統計顯著性。圖 4.3.3 則為六個族群其臭氧 區間的年際分佈圖。除族群 D 之外,其餘族群的整體分佈趨勢和臭氧平均年際 變化圖大致類似,顯示臭氧平均值的年際變化具有其代表性。

接著進一步的將族群個數與族群攜帶臭氧值的年際變化趨勢,依季節加以細分,如表 4.3.5 與表 4.3.6 所示。在族群數部分,僅有族群 F 在春季有具統計顯著性的上升情形,上升幅度為 9.0%/年(1.07 個/每年);而蘭嶼監測臭氧值若依季節加以細分,可發現春夏秋季均為上升趨勢,冬季族群 A、B 反呈下降趨勢,族群 C、D 維持上升趨勢。其中僅族群 F 在夏季的上升具統計顯著性,上升輻度為 3.0%/年(0.44ppbv/年)。

#### 4.3.2 空氣胞來源與臭氧值分段年際變化特性

若僅看年際變化,僅少數族群的空氣來源和臭氧呈持續變化趨勢。然而若觀 察蘭嶼監測臭氧值自 1995~2007 近 13 年的逐年變化(圖 4.3.4,對應的確切數據 資訊顯示於表 4.3.7),整體臭氧值以 2002 年的 37.5ppbv 為最高,並以其為分界, 呈現兩個不同的趨勢: 2002 年以前呈現上升趨勢,上升輻度為 2.1% (0.72ppbv/ 年),而在 2002 之後則呈現相反的趨勢,為-2.3% (-0.76ppbv/年)。因此我們以 2002 為分岐點,將年際變化分成 1995 -2002 的前半期以及 2002-2007 的後半期兩部 分,分別做出空氣胞來源以及臭氧值的年際趨勢表。

結果如表 4.3.8 所示:在前半期,六族群的臭氣值均呈上升情形,其中 C、E

兩族群的上升具統計意義,上升幅度分別為2.6%/年(1.1ppbv/年)與5.7%(1.2ppbv/年)。而在後半期,六族群中從北方而來的族群(A、B、C)出現下降的趨勢,其中族群A的下降輻度最大,且具統計意義,為-3.4%/年(-1.85ppbv/年),而屬於海洋性的族群E與族群F則維持持平。另外空氣胞來源(表4,3,9)在前後期則均無具統計顯著性之趨勢。

若再依不同季節加以細分,如表 4.3.10 與表 4.3.11 所示:在臭氧值的部分, 可以看到幾個現象:在 1996-2002 的前半段,所有族群分季的趨勢上,全為上升 的趨勢,其中在族群 A 的春季與族群 E 的秋季的上升具顯著性,分別為 3%/年 與 11%/年。而在 2002-2007 的後半段部分,超過一半的分季族群(10/18)已轉為負 趨勢,其中冬季全為負趨勢,族群 A 與族群 B 並連續六年為下降,趨勢為-3%/ 年與-5%/年。另外從表可發現在分段之後,不論前後段其春季的臭氧平均值,都 較其秋、冬季之臭氧平均值來得高,可見蘭嶼臭氧的季節性差異特性並沒有隨著 前後期而改變。在空氣胞來源的部分,仍無具統計顯著性的趨勢,可見逆軌跡族 群的數量無明顯的趨勢存在。

由以上結果可以發現,在年際變化上以2002為分界點,在2002年以前臭氧 值呈增加趨勢,在2002年以後則多呈現下降趨勢,其中海洋性來源的空氣,其 臭氧前半段的上升幅度大,但在後半期則呈持平;而大陸性來源空氣之臭氧,前 半期為上升,後半期則多為下降,並以冬季最為明顯。後半期的臭氧下降趨勢並 較前半期的上升趨勢高,因此造成年際變化整體看來,海洋性空氣仍呈上升,而 大陸性空氣呈現微幅下降的情形。空氣胞來源族群在前後期則無明顯變化。

#### 4.4 臭氧值分佈與路徑之相關性探討

由 4.3 節我們已了解臭氧的年際變化特性。本節將利用"次族群"的分析法, 進一步了解在同一族群中,不同濃度區間的臭氧,是否其路徑亦有所不同,意即 路徑是否造成了臭氧值的差異。

我們所使用的方法是將六個族群依臭氧值不同,分成三個區間,臭氧值分隔 的範圍與所佔比例見表 4.4.1 與表 4.4.2,各個次族群的平均路徑則與平均高度則 如圖 4.4.1 與圖 4.4.2 所示。圖中紅線代表的是臭氧濃度偏高的次族群之平均路徑 (以族群字母後加 1 表示,如 A1),黑線代表臭氧濃度一般的族群平均路徑(同上, 以族群字母後加 2 表示),藍線則代表臭氧濃度偏低的次族群之平均路徑(同上, 以族群字母後加 3 表示)。

從圖中可明顯發現,六個族群中的三個次族群,其路徑都有很大的不同:族 群A中,攜帶高濃度臭氧的A1次族群,要比另外兩個族群A2與A3的平均路 徑更偏西側,意即更偏向中國的東海岸,在平均高度上三次族群的軌跡接近,但 A1之整體高度較A2、A3高約500公尺;旋群B中,平均路徑由西向東分別為 B1、B2、B3,表示次族群的臭氧值越高,其路徑越偏西偏。高度方面B1、B2 平均高度較B3高,但差距不明顯;族群C中,可看到C1次族群從韓國上空直 接往西南而來到東方,然而C2與C3則走了一個順時針小弧才來到台灣。且平 均路徑由西向東依序為C1、C2、C3,仍是臭氧值越高之次族群越偏向西側。高 度上和族群B相似,C1、C2路徑上之高度較低臭氧含量的C3來得高;族群D 中,D1繞了一小圓弧而來到台灣,D3與D1相比則偏向南側,D2則為兩者之 綜合:來源處路徑接近D1,而在近台灣處路徑則接近D3。高度上則是臭氧含量 與高度成正比(D1>D2>D3);族群E中,E1的值較偏北且路徑較短,E2、E3則 依序更偏向南側。而高度上,次族群的臭氧含量越低,其平均高度反而高(來源 高度:E3>E2>E1);族群F中,F1次族群路徑較短短目偏向西側,F2、F3路徑較 長比較偏東。高度上和E族群類似,次族群的臭氧含量與來源高度成反比。圖 4.4.3 為次族群之年際變化,可發現次族群亦反應出和臭氧平均值年際變化對應 之趨勢(如路徑較偏排放源的高臭氧次族群在高值年上升或在低值年下降等),顯 示出環流變化的確是造成臭氧值年際變化的重要原因。

由以上結果發現,若依臭氧含量進行次族群的路徑分析,空氣胞所攜帶之臭 氧濃度和空氣胞路徑上距離排放源的遠近有關:族群A、B、C的高臭氧次族群 A1、B1、C1較靠中國東海岸、族群D的高臭氧次族群D1較靠近日本、族群F 的高臭氧次族群F1較靠近南中國與中南半島。從太平洋而來的族群E,雖周圍 沒有陸地,但其高臭氧的次族群亦較靠近北方,可能受日本影響。在高度上,大 陸性及過渡性族群(A、B、C、D),其次族群的平均高度與臭氧濃度成正比,高 臭氧的次族群其平均高度較高;然而海洋性氣團(E、F),其次族群的平均高度與 臭氧濃度則呈反比,高臭氧的次族群其平均高度較低。

#### 4.5 個案模擬分析

由4.4節次族群的分析,我們做出了空氣胞路徑會影響其攜帶臭氧值的結 論:高臭氧的個案,其平均路徑較低臭氧的個案更為靠近排放源。為了能進一步 的了解臭氧在空氣胞路徑上所發生的變化,本節將利用 TAQM 模式進行個案模 擬,並針對其中兩個案進行較完整的分析,來探討路徑對臭氧值的可能影響。

由於 TAQM 模式的氣象場資料是利用 MM5 模式之輸出值而來,在個案模擬時,是將 MM5 氣象場輸入至 HYSPLIT 模式中輸出倒退逆軌跡線,並會將其路徑與 NCEP/NCAR 的再分析資料進行比對。另外由於此次 TAQM 模式的模擬空間範圍有限,因此僅模擬在網格範圍內的軌跡,而非如同前面章節所做模擬至

我們自1998-2007 共挑選了十個個案,其統計資料如表 4.5.1 所示。十個案 之臭氧最大上升段與最大值之水平位置則表示於圖 4.5.1。從圖中可發現最大上 升段普遍出現在排放源如韓國、北京、上海等地附近。而最大值緯度則較靠近台 灣,且十個個案中有四個出現在台灣東北海岸線附近,這表示台灣北部地區的污 染源排放亦有可能影響到蘭嶼之臭氧值。為了進一步了解臭氧產生變動的原因, 我們從這十個個案中,挑選了兩同屬族群 B 但不同路徑的個案來做進一步的分 析,分別為 2007 年 12 月 6 日,路徑是較遠離陸地走海路而抵達台灣的個案(之 後將以 071206 簡稱),以及 2005 年 1 月 18 日,路徑是偏向陸路到達台灣的個案 (之後以 050118 簡稱)。



#### 4.5.1 071206 個案模擬討論

071206 個案中,兩不同氣象場所分別模擬的逆軌跡線比對如圖 4.5.2。由於 TAQM 空間模擬的範圍限制,MM5 氣象場模擬之逆軌跡只計至抵達蘭嶼前的 80 小時。兩氣象場的模擬路徑大致上相當接近,從東經 120 度、北緯 45 度向東南 方,繞一順時針大圓弧而來到蘭嶼,亦即在離開勃海出海口後延韓國半島西側, 再經由海面而抵達蘭嶼。高度方面如圖 4.5.3 所示是從 1600 公尺高一路南下至近 地面而抵達蘭嶼。在縱觀氣象場部分,由圖 4.5.4 我們可以看出,此個案的縱觀 天氣型態是由大陸冷高壓所主導,高壓範圍已延伸出海,空氣胞順著高壓順時針 行進,符合軌跡線的走向。此日蘭嶼的夜間平均臭氧值為 37ppbv,TAQM 模擬 值則為 39.8ppbv。 圖 4.5.5 為 TAQM 所模擬出空氣胞路徑上之臭氧值圖,藍線和灰線分別代表 正常模擬以及扣除掉所有東亞排放源的模擬。圖 4.5.6 則是將有無排放之路徑臭 氧值相減,以此當作單純由排放所造成的臭氧值。可以發現在-80 至-74 小時, 兩者之臭氧值穩定維持在 42ppbv 附近,而此值也代表著未受污染影響的臭氧背 景值。從-74 小時至-60 小時,路徑上之正常模擬與無排放模擬為負差異;自第-60 小時開始,正常模擬開始呈上升趨勢,並有兩主要上升段,分別為-60 至-52 小 時,以及較明顯的-38 至-30 小時;在第-22 小時到達頂峰 50ppbv 後,臭氧值開 始下降直到抵達台灣。我們選取-74 至-60 小時、-60 至-52 小時、-38 至-30 小時 等三特性時段定為(I)、(II)、(III),將三時段之空氣胞水平位置以紅線標出如圖 4.5.7,並對照東亞大氣化學場圖來進行討論。

首先由純排放造成負值的時段(1),此時段為12月3日18時至4日8時,空 氟胞從渤海出海口東側南移至韓國半島西側,高度從約1000公尺降至800公尺。 由東亞σ=0.928層之臭氧場圖及地面臭氧場圖(圖45.8)來看,在此期間,此兩層 在中國北方沿海以及韓、日等地都出現了下降的情形,可見此處臭氧值下降受到 了地面影響,但由於仍在近1000公尺高空,因此影響有限。由於此時段是在夜 間,因此我們推論可能是受到了夜間NO2滴定效應(titration effect)的影響。滴定 效應簡單的說明如下:在不考慮非甲烷碳氫化合物(NMHC)的作用下,氦氧化物 (NOx)在大氣中藉由太陽短波輻射提供光化反應能量而生成臭氧,並與一氧化氮 (NO)、二氧化氮(NO<sub>2</sub>)違光化平衡反應。當反應達穩定狀態後,臭氧不會增加或 減少:

$$NO_2 + hv \rightarrow NO + O \quad (\lambda < 424 \text{ nm})$$
 (4-1)

$$O + O_2 + M \rightarrow O_3 + M^* \tag{4-2}$$

$$O_3 + NO \rightarrow O_2 + NO_2 \tag{4-3}$$

31

當夜間無日照時,此時 NO2 無法光解,然而臭氧則會與 NO 反應形成 NO2, 使臭氧值下降,式(4.3)即為消耗臭氧的主要機制滴定效應。若再配合此下降時段 NO2 的逐時變化(圖 4.5.20),可發現在此下降最明顯之-64 至-60 小時, NO2 為上 升,證明了此下降和滴定效應有關。

在-60至-52小時的時段(II),時間為4日早上8時至16時,位置是在韓國半 島的南方上空由800公尺下降至550公尺,由σ=0.957層及地面臭氧場圖可看出 (圖4.5.9),此一小上升段應是受到了韓國地區日間排放的影響。

在-38 至-30 小時時,空氣胞已達日本南方,高度已低於 500 公尺。由於此 處純排放臭氧產生了明顯的上升,我們觀察純排放臭氧場(圖 4.5.10),發現在此 時受到西側排放源擴散的影響而上升,影響約 8ppbv。而隨著空氣胞接近台灣, 因海面上無污染源,空氣胞路徑上之臭氧值緩緩下降而抵達蘭嶼,然而此區段因 純排放所造成的臭氧值則約維持持平,這表示模擬受到排放影響,使得正常情形 下之背景臭氧值較無排放情形而提升約 8ppbv。

由此個案我們可以發現,空氣胞從西北方高空一直南降的途中,若在日間經 勃海出海口與韓國等地時,可能受排放源影響使得臭氧值有上升情形,但若在夜 間經過則反而因滴定效應而造成臭氧值的下降。在出海之後雖中途受到排放源的 擴散影響,但由於之後均無排放源,因此臭氧值便一路下降直到到達台灣。台灣 地區的排放則提高了整體的背景值。

#### 4.5.2 050118 個案模擬討論

050118 個案中,兩不同氣象場所分別模擬的逆軌跡線比對如圖 4.5.11,兩者

水平路線基本上仍為類似:空氣胞路徑從東經 120 度、北緯 40 度向南方,經由 中國東部,延中國東海岸線向南而來到蘭嶼。高度方面則是從約 1800 公尺高空 一路南下至蘭嶼(圖 4.5.12)。在綜觀氣象場方面,由圖 4.5.13 可看出,此個案的 綜觀天氣型態是由大陸冷高壓所主導,而由風場亦可看出空氣胞順著高壓直線向 南傳送,符合軌跡線的走向。此日蘭嶼的夜間平均臭氧值為 46.2ppbv, TAQM 模 擬值則為 52.4ppbv。

利用 TAQM 所模擬出空氣胞在此 110 小時內之臭氧值,如圖 4.5.14 所示, 純排放所造成的臭氧值則如圖 4.5.15 所示。在前半段(第-110 至-82 小時),兩者 之臭氧值均穩定維持在 42ppbv 附近,表示此時背景臭氧尚未受排放影響。而一 般模擬從第-82 小時開始的中午時段,路徑上之臭氧值開始上升約 2ppbv,此時 的位置是在勃海出海口處,和 071206 案例有類似的情形。之後臭氧經過一段微 幅震盪期,自-56 小時開始有下降趨勢,並於-52 小時開始產生明顯下降,至最 低值的第-40 小時,甚至臭氧含量僅有 25ppbv,然而臭氧值自此低點後便開始一 路上升,至-14 小時時已達 45ppbv,到達台灣時甚至達 52ppbv。而無排放模擬其 路徑上之臭氧值則是停留在 40ppbv 附近,整體來說是呈現先降後升的情況。我 們將-52 至-40 小時,以及-40 至-8 小時等兩特性時間空氣胞水平位置標出(圖 4.5.16),並利用東亞地面臭氧場圖進行討論。

下降時段是 16 日 16 時至 17 日凌晨 4 時的夜間時段,臭氧的位置是在上海 上空向南行進,高度從 700 公尺降至約 500 公尺。由 σ=0.957 的場圖及 NO<sub>2</sub> 的分 佈圖(圖 4.5.21),地面臭氧場圖(圖 4.5.17),可發現在-44 小時至-36 小時此段期間, 空氣胞所在位置在排放源上空,其臭氧值有明顯的降低,而同時 NO<sub>2</sub>有顯著上 升,甚至可達 20ppbv 以上。此應同是由於空氣胞於夜間行進排放源, NOx 滴定 效應造成臭氧減少。 上升時段則從1月17日4時至1月18日12時,此時高度已在500公尺以下。其中此上升段中在第-36至-30小時,以及第-14至-8小時較為明顯,由純排放臭氧場圖(圖4.5.18)可以看到,此兩時段受到中國大陸地區排放源擴散的影響,使臭氧產生上升的情形。若再比對一次污染源:一氧化碳(CO)於上升期間前的地面場圖(圖4.5.19),可發現一氧化碳的高值出現在臭氧高值的上游地區,因此我們推論人為排放是造成臭氧在此處產生高值的主因。值得一提的是,至-8小時空氣已抵達台灣北部海面上空,然而此時模擬值仍為上升,此應是受台灣地區排放源的影響。而空氣胞一路上連續受中國以及台灣的排放源影響而直接抵達台灣,也可能是我們所挑選的個案中,有部分個案臭氧最大值出現在近台灣處的原因。另外此上升期因已遠離排放源,故夜間無明顯滴定效應使臭氧值下降。

由此個案我們可以發現,經由陸地的個案,在從西北方高空南降途中,除了 在勃海出海口處受排放源影響外,亦受到上海附近之排放源的影響,在夜間上海 附近的滴定效應使空氣胞臭氧含量降低,但在離開排放源之後,直到抵達台灣附 近均受到中國排放源的擴散影響,因此臭氧值維持較高的含量而到達台灣。

#### 4.5.3 討論

綜合比較此兩個案,可以發現071206 個案,其路徑上僅前中半段受排放影響,後半段則因無經過排放源影響區域,使得臭氧值一路下降,因而在蘭嶼所測 得之臭氧值含量較低。而050118 個案,其在路徑後半段受到上海排放源區域的 影響,因此在蘭嶼所測得之臭氧值含量較高。然而此僅為初探性質的模擬,兩個 案間存在太多不確定性,包括綜觀環境的不同,臭氧受其他因素影響的比例(如 臭氧排放的增加)不同等,因此尚無法從個案模擬中來了解路徑對臭氧含量的比 較或是定量探討,此方面仍有賴未來更多的統計模擬來驗證。

### 第五章:結論與展望

在本研究中,我們利用群集分析的方式,找出了自 1995 至 2007 十三年間, 到達蘭嶼的六大空氣胞來源族群,分別是來自西北方的族群 A、來自北方的族群 B、來自北北東方的族群 C,來自東北方的族群 D,來自東方的族群 E 以及來自 西南方的族群 F。並經由統計分析後,得到以下結論:

- 空氣胞來源的季節分佈上:春季來源較為複雜,夏季以海洋性氣團(族群E、F)為主,秋季則以過渡性氣團(族群C、D)為主,冬季是以從西北方而來的大陸性氣團(族群A、B)為主。
- 若配合蘭嶼當地的臭氧監測值配合六大族群進行分析,可以發現來自大陸性的族群(A、B)之平均值最高,達45ppbv,來自北北東方的族群 C
   臭氧值稍低,為42ppbv,來自東北方的族群 D 為 35ppbv,海洋性的族群(E、F)較低,僅約 20ppbv。
- 大陸性空氣胞所攜帶臭氧值的年際變化上,以2002分界,產生兩種截 然不同的變化:在2002之前臭氧值為上升,在2002之後臭氧值為下降, 此現象以族群A最為明顯。海洋性空氣胞則是逐年上升,其中族群E 有著具統計意義的上升趨勢。
- 若依不同的臭氧值將各族群再分為三個次族群,則可發現其路徑並不相同:含較高臭氧值的族群較為靠近排放源。由大陸性族群的個案分析亦可發現:路徑較沿陸路之空氣胞臭氧,由於在路徑後期亦受排放源影響,其臭氧含量較延海路之路徑要高。

對於未來的臭氧趨勢,由前面結果得知來自大陸之空氣胞,其攜帶臭氧值在 近年冬季呈下降趨勢,然而人為排放在近年來應為增加。由個案模擬的結果,我 們推測近年蘭嶼臭氧值下降的原因,可能是由於空氣胞在夜間行經排放區造成滴 定效應所致。加上大陸性族群其路徑移動較快,可能在夜間經過之排放源也較 多,因此未來若人為排放繼續增加,在空氣胞路徑無明顯改變的情況下,可能會 呈繼續下降的趨勢,但不確定因素還有許多,仍待後續追縱研究。

此外,本研究亦有許多進步空間待日後加以克服:首先由於蘭嶼測站於 1995 年起才正式設立,監測時間僅 15 年不到,若未來能持續比對蘭嶼臭氧值與空氣 胞來源之間的關係,將可更進一步的了解長程傳送對台灣背景臭氧的長期影響及 趨勢。

另外本研究之逆軌跡所使用之輸入氣象是為NCEP/NCAR全球性再分析資料,解析度僅2.5°x2.5°,因此軌跡線的不確定性依然很大。此外在個案模擬時,所使用的網格解析度僅為60km x 60km,雖能反應出東亞地區綜觀的化學場變化,但由於台灣地區附近的網格點解析度不足,因此造成個案模擬和實際觀測間產生一定程度的誤差,未來若有機會,可縮小模擬區域,在台灣附近進行更高解析度的模擬,以得到更高準確性的模擬結果。

在個案分析部分,本研究僅挑選十個案,並僅針對兩個案進行進一步探討, 因此對於空氣胞路徑上之臭氧的了解仍然有限。未來若是能多增加個案數目進行 統計分析,或進行月或季之連續時間長期分析,應能使我們更加了解臭氧從高空 南下之台灣一路上臭氧值的變化情形。甚至年際間的差異。另外若能配合其他化 學物種的觀測資料,將可利用其他物種的化學特性,對臭氧造成的空氣污染成因 等更詳細的探討。

# 參考文獻:

王作台、胡志文、林松錦、柳中明,1994:氣象環流對背影氣成份傳送影響:第

一部分:軌跡方法之建立及個案分析結果。大氣科學,22,57-76。 吳承翰,2002:亞洲沙塵暴之模擬,國立中央大學,大氣物理研究所碩士論文。 柳中明,1992:台灣背景大氣研究:(1)中美合作「氣候與空氣品質台灣站(CATS)

研究發展與西太平洋地區觀測(PEM-west)研究計劃及背景大氣中甲烷(CH4)測

量分析」。NSC810421M0023224z。

柳中明,張修武,劉紹臣,1999:蘭嶼背景大氣監測初析。大氣科學,27,99-130。 柳中明,葉銘德,彭立新,吳俊傑,劉紹臣,2004:冬夏季長程傳送影響台灣海

域背景臭氧之模擬探討。大氣科學,32,1-21。

- 柳中明,商俊盛,陳瑋蘭,葉銘德,2005:1995-2004 年蘭嶼背景臭氧濃度分析。 氣候變遷與永續發展研討會。
- 陳進煌,1995: 氣流軌跡模式在大氣污染物長程輸送上之運用,國立中央大學, 大氣物理研究所碩士論文。
- 劉紹臣,2005:亞洲沙塵及污染物對台灣空氣品質之影響。中央研究院週報, 1041,11-14。
- 鄭福田、張時禹、黃賀春、張艮輝、劉遵賢,2000:台灣空氣品質模式(Taiwan Air Quality Model)操作使用手冊。
- Abdalmogith , S.S., and R.M. Harrison, 2005: The use of trajectory cluster analysis to examine the long-range transport of secondary inorganic aerosol in the UK, *Atmospheric Environment* **39**, pp. 6686–6695.

Akimoto, H., 2003: Global Air Quality and Pollution, Science, 302, 1716-1719.

Anthes, R. A., and T.T. Warner, 1978:Development of hydro-dynamical models suitable for air pollution and other mesometeorological studies. *Mon. Wea. Rev.*,

**106**, 1045-1078

Anderberg, M.R., 1973: Cluster Analysis for Applications, Academic Press, p. 48–52.

- Avila, A., and M. Alarcón., 1999: Relationship between precipitation chemistry and meteorological situations at a rural site in NE Spain. *Atmospheric Environment* 33, pp. 1663–1677.
- Blake, J., G. W. Sachse, J. E. Collins, Jr., B. G. Heikes, J. T. Merrill, G. L. Gregory, B.
  E. Anderson, H. B. Singh, D. C. Thornton, A. R. Brady, and R. F. Pueschel, 1997:
  Chemical characteristics of continental outflow from Asia to the troposphere over the western Pacific Ocean during February-March, 1994:Results from PEM-West B. *J. Geophys. Res.*, **102**, 28,255-28,274.
- Cape, J.N., J. Methven, L.E. Hudson, , 2000: The use of trajectory cluster analysis to interpret trace gas measurements at Mace Head, Ireland. *Atmospheric Environment* 34, 3651–3663.
- Chameides, W. L., and D. H. Stedman, 1977: Tropospheric ozone: Coupling transport and chemistry, J. Geophys. Res., 82, 1787 1794.
- Chan, C.Y., Chan, L.Y., Lam, K.S., Li, Y.S., Harris, J.M. and Oltmans, S.J., 2002:
  Effects of Asian air pollution transport and photochemistry on carbon monoxide
  variability and ozone production in coastal South China at Hong Kong, *J. Geophys. Res.*, **107**(0), 4746.
- Clatworthy, J., Buick, D., Hankins, M., Weinman, J., & Horne, R. (2005). The use and reporting of cluster analysis in health psychology: A review. *British Journal of Health Psychology*, **10**(3), 329–358.
- Crum, F. X. and D. E. Stevens, 1988: A case study of atmospheric blocking using isentropic analysis. *Mon. Wea. Rev.*, **116**, 223-241.
- Crutzen, P. J., 2003: A discussion of the chemistry of some minor constituents in the

stratosphere and troposphere, Pure Appl. Geophys., 106 - 108, 1385 - 1394.

- Danielsen, E. F., and V. Mohnen, 1977: Project Duststorm: Ozone transport in situ measurements and meteorological analysis of tropopause folding, *J. Geophys. Res.*, 82, 5867 5877.
- Draxler, R.R., and G. D. Hess, 1998: An overview of the HYSPLITp4 modelling system for trajectories, dispersion, and deposition. *Aust.Meteor. Mag.*, **47**, 295–308.
- Draxler, R.R., and G. D. Rolph, cited 2003: NOAA ARL HYSPLIT Model. NOAA Air Resources Laboratory. (Available online at http://www.arl.noaa.gov/ ready/hysplit4.html.)
- Draxler, R.R., Hess, G.D., 2004: Description of the Hysplit\_4 Modeling System. NOAA Technical Memorandum ERL ARL-224, 25pp.
- Dudhia, J., 1993: A nonhydrostatic version of the Penn State-NCAR meso-scale model: Validation tests and simulation of an Atlantic cyclone and the cold front. *Mon. Wea. Rev.*, **121**, 1493-1513.
- Eisen, M., Spellman, P.T., Brown, P.O. & Botstein, D. 1998: Cluster analysis and display of genome-wide expression patterns. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* 95, 14863–14868.
- Everitt BL. 1980: Ecology of saltcedar: a plea for research. *Environmental Geology* **3(2)**: 77–84.
- Fabian, P., and P. G. Pruchniewicz, 1977: Meridional distribution of ozone in the troposphere and its seasonal variations, J. Geophys. Res., 82, 2063 – 2073.
- Fiore, A., D.J. Jacob, H. Liu, R.M. Yantosca, T.D. Fairlie, Q. Li, 2003: Variability in surface ozone background over the United States: Implications for air quality policy. J. Geophys. Res., 108, 4787.
- Fishman, J., and P. J. Crutzen, 1977: The origin of ozone in the troposphere, *Nature*, **274**, 855-858.

- Fishman, J., S. Solomon, and P. J. Crutzen, 1979: Observational and theoretical evidence in support of a significant in-situ photochemical source of tropospheric ozone, *Tellus*, 31,432 446.
- Fuglestvedt, J. S., and J. E. Johnson, 1994: Effects of reductions in stratospheric ozone on tropospheric chemistry through changes in photolysis rates, *Tellus, Ser. B*, 46, 172 192.
- Gong, X. and M.B. Richman, 1995: On the application of cluster analysis to growing season precipitation data in North America east of the Rockies. *J. Climate*, 8: 891-931.
- Gregory, G. L., J. T. Merrill, M. C. Shipham, D. R. Blake, G. W. Sachse, and H. B.
  Singh, 1997: Chemical characteristics of tropospheric air over the Pacific Ocean as measured during PEM-west B: Relationship to Asian outflow and trajectory history. *J. Geophys. Res.*, 102,28,275-28,286.
- Hafner, W.D., N.N. Solorzano, D.A. Jaffe, 2007: Analysis of rainfall and fine aerosol data using clustered analysis for National Park sites in the Western US. *Atmospheric Environment*, 41, 3071~3081.
- Harris, J. M. and Kahl, J. D. (1990) A descriptive atmospheric transport climatology for the Mauna Loa Observatory, using clustered trajectories. *Journal of Geophysical Research* 95, 13,651-13,667.
- Heald, C.L., Jacob, D.J., Fiore, A.M., Emmons, L.K., Gille, J.C., Deeter, M.N.,
  Warner, J., Edwards, D.P., Crawford, J.H., Hamlin, A.J., Sachse, G.W., Browell,
  E.V., Avery, M.A., Vay, S.A., Westberg, D.J., Blake, D.R., Singh, H.B., Sandholm,
  S.T., Talbot, R.W., Fuelberg, H.E., 2003: Asian outflow and transpacific transport
  of carbon monoxide and ozone pollution: an integrated satellite, aircraft and model
  perspective. *J. Geophys. Res.* 108 (D24), 4804.
- Hoell, J. M., D. D. Davis, S. C. Liu, R. E. Newell, M. Shipham, H. Akimoto, R. J.

McNeal, R. J. Bendura, and J. W. Drewry, 1996: The Pacific Exploratory Mission-West Phase A:September –October 1991. *J. Geophys. Res.*, **101**, 1641-1653.

- Hoell, J. M., D. D. Davis, S. C. Liu, R. E. Newell, H. Akimoto, R. J. McNeal and R. J.
  Bendura, 1997: The Pacific Exploratory Mission-West Phase B:February-March,
  1994. J. Geophys Res., 102, 28,223-28,239.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. R. Rood, and L. Pfister, 1995: Stratosphere-troposphere exchange, *Rev. Geophys.*, **33**,403 439.
- Johnson, R.A. and Wichern, D.W., 2002: Applied Mulitivariate Statistical Analysis, Prentice Hall.
- Jorba, O., C. Perez, F. Rocandenbosch, and J.M. Baldasano, 2004: Cluster Analysis of 4-day Back-Trajectories Arriving into Barcelona Area (Spain) from 1997 to 2002. *J. Appl, Meteor.*, **43**, 887–901.
- Junge, C. E., 1962: Global ozone budget and exchange between stratosphere and troposphere, *Tellus*, **14**, 363- 377.
- Kappos A. D., and G. Koss, 1990: Health effects of ozone as component of summer smog. *Offentl Gesundheitswes*, 53, 16-22.
- Liu C. M., M. P. Buhr, J.-G. Lo, T.-L. Tso, K. J. Hsu, J.-T. Wang, J. T. Merrill and S.
  C. Liu, 1995: A study of Taiwan background atmosphere. *J. Terrestrial Atmos. and Oceanic Sci. (TAO)*, 6, 419-442.
- Lin, C.-Y. Lin, S.C. Liu, C. C.-K. Chou, T.H. Liu, C.-T. Lee, C.-S. Yuan, C.-J. Shiu, and C.-Y. Young, 2004: Long-Range Transport of Asian Dust and Air Pollutants to Taiwan. *Terrestrail, Atmosphericand Oceanic Sciences*, **15**, 759-784.
- Lin, C.-Y., Z. Wang, W-N. Chen, S-Y. Chang, C.C.K. Chou, N.Sugimoto and Z. Zhao, 2007: Long-range transport of Asian dust and air pollutants to Taiwan: Observed evidence and model simulation, *Atmos. Chem. Phys.* 7, 423-434.

- MacQueen, J., 1967: Some methods for classification and analysis of multivariate observations, Proceedings of the Fifth Berkeley Symposium on Mathematical Statistics and Probability. Volume I: Statistics, pages 281-297.
- Madronich, S., and C. Granier, 1994: Tropospheric chemistry changes due to increased UV-B radiation, in Stratospheric Ozone Depletion/UV-B Radiation in the Biosphere, *NATO ASI Ser., Ser. I*, 18, edited by R.H. Biggs and M. E. B. Joyne, pp. 3 10.
- McConnell R, Berhane K, Gilliland F, 2002. Asthma in exercising children exposed to ozone: a cohort study. *Lancet* 2002; **359:** 386–91.
- Moody, J. L., 1986: The influence of meteorology on precipitation chemistry at selected sites in the Eastern United States. Ph.D. dissertation, University of Michigan, 176 pp.
- Moody, and J. N. Galloway, 1988: Quantifying the relationship between atmospheric transport and the chemical composition of precipitation on Bermuda. *Tellus*, **40**, 463–479.
- Punj G., and David W. Stewart, 1983: Cluster analysis in marketing research: review and suggestions for application, *Journal of Marketing Research*, 20, No. 2, pp.134-148.
- Rolph, G, D., 2003: Real-time Environmental Applications and Display sYstem(READY) Website (http://www.arl.noaa.gov/ready/HYSPLIT4.html).
- Sillman, S., and P. J. Samson, 1995: Impact of temperature on oxidant photochemistry in urban, polluted rural and remote environments, *J. Geophys. Res.*, **100**, 11,497 – 11,508.
- Stockwell, W.R.., Middleton, P., Chang, J.S., 1990: The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling. J. *Geophys. Res.* 95 (D10), 16343-16367.

- Stohl, A. and Wotawa, G. 1995: A method for computing single trajectories representing boundary layer transport. *Atmospheric Environment*, **29**, 3235~3239.
- Stohl, A., 1998: Computation, accuracy and applications of trajectories—A review and bibliography. *Atmos. Environ.*, **32**, 947–966.
- Streets, D.G., Bond, T.C., Carmichael, G.R., Fernandes, S.D., Fu, Q., He, D., Klimont,
  Z., Nelson, S.M., Tsai, N.Y., Wang, M.Q., Woo, J.-H., Yarber, K.F., 2003: An
  inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000: *J. Geophys. Res.* 108 (D21), 8809.
- Talbot, R. W., J. E. Dibb, K. I. Klemm, J. D. Bradshaw, S. T. Sandholm, D. R. Blake,
  G. W. Sachse, J. Collins, B. G. Heikes, G. L. Gregory, B. E. Anderson, H. B. Singh,
  D. C. Thornton, and J. T. Merrill, 1996: Chemical characteristics of continental outflow from Asia to the troposphere over the western Pacific Ocean during
  September-October 1991: Results from PEM-West A. J. Geophys Res., 101, 1713-1726.
- Unal, Y., Kındap, T. and Karaca, M., 2003: "Redefining Climate Zones for Turkey Using Cluster Analysis", *International Journal of Climatology*, **23**, 1045 1055.
- Vukovich, F. M., W. D. Bach, B. W. Crissman, and W. J. King, 1977: On the relationship between high ozone in the rural surface layer and high pressure systems, Atmos. Environ., **11**, 967-983.
- Woo, J.-M., Streets, D., Carmichael, G.R., Tang, Y., Yoo, B.-I., Lee, W.-C.,
  Thongboonchoo, N., Pinnock, S., Kurata, G., Uno, I., Fu, Q., Vay, S., Sachse, G.W.,
  Blake, D.R., Fried, A., Thornton, D.C., 2003: The contribution of biomass and
  biofuel emissions to trace gas distributions in Asia during the TRACE-P experiment. *J. Geophys. Res.* 108 (D21), 8812.
- Harvard Atmospheric Chemistry Modeling Group
  - http://acmg.seas.harvard.edu/

NOAA ERL: Physical Sciences Division:Daily Mean Composite http://www.cdc.noaa.gov/data/composites/day



1 surface	
2 1000	
3 925	
4 850	
5 700	
6 600	
7 500	
8 400	
9 300	
10 250	
11 200	
12 150	
13 100	
14 70	AR
15 50	and a
16 30	
17 🍣 20 🧖	14- 8
18 10	30
王子 · 华	

層數	σ座標
1	1
2	0.995
3	0.99
4	0.98
5	0.96
6	0.93
7	0.89
8	0.85
9	0.8
10	0.75
1H	0.7
X-12	0.65
ak 13	0.6
140	0.55
15	0.5
16	a 0.45 000 000 000 000 000 000 000 000 000 0
17 M	0.4
18	0.35
19	0.3
20	0.25
21	0.2
22	0.15
23	0.1
24	0.05

衣 2.5.2 · IIIQIII 在至重力的全府机	12	×.	<u>к</u> .	2.3.		IAQM	仕芏	且刀	四人	. 所千 1/1
----------------------------	----	----	------------	------	--	------	----	----	----	----------

	層數	σ座標	
	1	1	
	2	0.995	
	3	0.989	
	4	0.978	
	5	0.957	
	6	0.928	
	7	0.89	
	8	0.848	
	9	0.75	
	10	0.65	
	11	0.55	
	12	0.45	
ß	X-13	0.35	A.
a a	14	0.25	AR
TON	150	0.15	- International
7			N. N.
10	UN B	· # [14]	p*

表 4.1.1:17 類有個案之子族群與最終選出之六主要族群

具代表性							不具代表性									
子族	群 1-3-3	1-1-1	2-2-4	2-2-2	2-3-4	2-3-3	1-3-4	1-1-3	1-3-1	1-1-4	2-3-1	1-3-2	1-2-4	2-3-2	1-2-2	2-2-1
個婁	t 1051	972	813	698	609	263	155	50	39	9	4	3	2	2	1	1
比何	] 22.5%	20.8%	17.4%	14.9%	13.0%	5.6%	3.3%	1.1%	0.8%	0.2%	0.1%	0.1%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%
_	表 4	4.1.2:	1996	年至	2007	年12	き、日本	意	手間		E要为	<b>疾</b> 群戶	近41	七例	表	_
_	族群		A	]	В	C		Γ	)	E	,	F	1	六類	<b>〔總和</b>	_
	數目	6	61	7:	58	58	34	25	54	95	1	90	)8	41	16	
1	占全個案	15	.1%	17.	4%	13.4	4%	5.8	8%	21.8	8%	20.	8%	94	.3%	

month\group	А	В	С	D	Е	F
1	18.5%	17.1%	8.4%	1.9%	2.4%	0.0%
2	14.0%	13.5%	9.7%	1.5%	3.0%	0.1%
3	12.2%	12.9%	10.0%	4.9%	8.4%	0.4%
4	5.2%	7.6%	8.9%	9.9%	13.3%	3.3%
5	0.9%	3.6%	4.9%	12.5%	14.5%	12.7%
6	0.0%	0.5%	1.1%	3.0%	9.8%	25.4%
7	0.0%	0.0%	0.3%	3.8%	13.9%	22.4%
8	0.0%	0.1%	1.1%	8.0%	11.3%	25.0%
9	1.6%	7.1%	12.6%	17.1%	8.4%	9.7%
10	8.3%	9.8%	16.7%	24.3%	6.9%	0.9%
11	16.6%	11.8%	13.8%	8.7%	6.1%	0.0%
12	22.8%	15.9%	12.3%	4.2%	2.0%	0.1%
_	100%	100%	100%	100%	100%	100%

表 4.1.3:各族群在各月所佔比例

51 表 4.1.4: 各月份出現族群頻率表 Ex (A)

-

		N.	蜜蜜.	舉 11	Alex .		
month\group	А	В	С	D	Е	F	
1	37.0%	39.8%	14.6%	1.4%	7.2%	0.0%	100%
2	32.2%	36.2%	19.4%	1.3%	10.5%	0.3%	100%
3	23.9%	29.5%	17.1%	3.7%	24.7%	1.1%	100%
4	10.3%	17.7%	15.4%	7.4%	40.0%	9.1%	100%
5	1.6%	7.8%	8.0%	8.8%	40.8%	33.0%	100%
6	0.0%	1.1%	1.9%	2.2%	27.9%	66.9%	100%
7	0.0%	0.0%	0.5%	2.7%	38.8%	58.0%	100%
8	0.0%	0.3%	1.8%	5.4%	30.4%	62.1%	100%
9	2.9%	15.5%	20.6%	12.1%	23.6%	25.2%	100%
10	15.0%	20.7%	26.4%	16.6%	18.9%	2.3%	100%
11	30.3%	25.1%	21.9%	6.0%	16.7%	0.0%	100%
12	40.2%	32.6%	18.9%	2.8%	5.3%	0.3%	100%

表 4.1.5: 各季節出現頻率統計表

season\group	А	В	С	D	E	F	
Spring(3-5)	11.8%	18.2%	13.4%	6.7%	35.2%	14.7%	100%
Summer(6-8)	0.0%	0.4%	1.4%	3.4%	32.4%	62.3%	100%
Autumn(9-11)	16.2%	20.5%	23.0%	11.6%	19.7%	9.0%	100%
Winter(12-2)	36.8%	36.0%	17.6%	1.9%	7.4%	0.2%	100%



表 4.2.1: 蘭嶼測站及日本與那國島測站之臭氧監測月平均資料的統計平均、標

準差、相關係數、均方根差及均方根差與平均值的比值(單位 ppbv)

新

1 82. 4	19	99
1995~2007	Lanyu	Yonagunijima
mean	33.9	39.7
s.d.	11	11.2
correlation coef.	-	0.9
rms	-	7.09
rms/mean (%)	-	18

		winter		spring		summer
	Lanyu	Yonagunijima	Lanyu	Yonagunijima	Lanyu	Yonagunijima
mean	41.4	46	38.9	46.7	18.9	23.5
std.	3.95	3.23	3.91	3.94	3.37	2.72
trend	-0.33	-0.43	0.32	-0.02	0.39	-0.3
(ppbv/year)	-0.55	-0.45	0.52	-0.02	0.57	-0.5
					-	
		autumn		year	-	
	Lanyu	Yonagunijima	Lanyu	Yonagunijima	_	
mean	36.7	42.2	33.8	39.6		
std.	5.56	4.15	2.56	2.11		
trend	0.41	-0.07	0.31	-0.18		
(ppbv/year)		a an	2		•	
			1			
	+ 10	2	A	+ + + + + ( 四 )	1 )	
	衣 4.2	.5 · 六迎軌跡族	种之吴辛	(值統計表(単位	ppov)	
			要。學	(A) (S)		
nercentile\group	А	B	C	D	E	F
mean	45.8	46.3	42.9	35.7	21.7	22.8
max	74.0	89.6	88.6	75.5	74.5	74.6
99%	66.1	75.0	73.3	69.6	56.8	59.9
95%	59.8	62.8	62.0	57.2	47.6	48.1
75%	54.6	52.0	49.4	44.7	29.9	26.7
50%	45.5	46.2	42.8	35.4	17.3	20.1
25%	40.6	40.7	36.2	25.6	11.5	15.4
5%	34.2	28.7	23.7	15.7	7 0	87
1%	23.8	12 3	167	11 2	5.5	4.5
std	<b>2</b> 5.0 <b>8</b> 1	10.5	11 5	13.0	13.2	11.5
Interquartile Range	14.0	11.7	13.2	21.1	18.6	11.3
interquartite rulige	17.0	11./	13.2	21.1	10.0	11.5

差、	及趨勢變化(單位 ppbv)	

year\group	А	В	С	D	Е	F
1995	37	55	25	9	100	64
1996	67	66	45	28	84	54
1997	46	71	52	23	84	73
1998	43	63	39	11	111	73
1999	52	70	52	17	60	88
2000	66	47	55	28	86	67
2001	59	63	59	30	64	74
2002	53	61	47	12	79	89
2003	52	73	44	30	82	62
2004	64	63	55	24	73	72
2005	63	68	28	13	81	85
2006	49	48	53	16	81	83
2007	47	65 X-	55	> 22	66	88

表 4.3.1:逐年各族群個數



表 4.3.2: 六族群個數年際趨勢、年均個數平均與 R<sup>2</sup>值,有通過 p 檢定者以星號 (\*)標計

	А	В	С	D	Е	F
trend%	-0.2%	-0.8.%	0%	-0.5%	-2.1%	2.3%*
mean(N)	55	63	49	20	81	75
$\mathbf{R}^2$	0.00	0.04	0.00	0.01	0.22	0.33

year\group	А	В	С	D	E	F
1995	45.5	44.4	39.6	34.3	17.6	18.3
1996	46.7	47.0	38.7	31.2	16.7	21.2
1997	45.4	47.6	41.5	35.6	21.9	22.7
1998	45.1	45.9	42.0	31.5	20.2	21.6
1999	45.0	43.5	44.0	41.2	20.9	21.1
2000	40.4	43.0	40.7	34.1	20.1	19.0
2001	47.5	49.6	45.6	40.0	25.7	23.8
2002	51.5	48.2	46.6	29.8	26.5	26.8
2003	46.8	48.9	41.8	37.3	20.9	19.0
2004	48.1	47.2	44.2	39.2	22.6	27.3
2005	48.0	49.1	44.3	31.1	22.4	21.5
2006	44.1	41.1	47.9	39.9	26.7	26.3
2007	41.8	44.3	40.2	32.6	22.4	24.2

表 4.3.3:逐年各族群臭氧平均值(單位 ppbv)



表 4.3.4: 六族群臭氧值年際趨勢、年均臭氧值平均與 R<sup>2</sup>值,有通過 p 檢定者以 星號(\*)加註 (單位 ppbv)

	А	В	С	D	Е	F
trend%	-0.2%	-0.7%	0.7%	0.4%	2.4%*	1.9%
mean(ppbv)	45.6	45.9	43.0	35.2	22.0	22.5
$\mathbb{R}^2$	0.02	0.06	0.16	0.02	0.38	0.30

		А	В	С	D	Е	F
spring	N/year	0.0%	-1.3%	1.8%	-3.3%	-3.4%	9.0%*
	Mean(N)	10	15	11	6	29	12
	$R^2$	0.00	0.04	0.02	0.04	0.15	0.51
	N/year					-3.3%	0.5%
summer	Mean(N)					18	55
	$R^2$	1010		ADIA S		0.07	0.02
	N/year	0.7%	-1.7%	0.0%	2.0%	-3.5%	5.1%
autumn	Mean(N)	14	18	20	10	17	8
	R <sup>2</sup>	0.00	0.03	0.00	0.03	0.07	0.24
winter	N/year	-0.6%	-1.0%	1.4%		3.3%	
	Mean(N)	31	231	14		6	
	$R^2$	0.02	0.02	0.05		0.03	

表 4.3.5: 六族群季節個數年際趨勢與  $R^2$  值, 有通過 p 檢定者以星號(\*)加註

		А	В	С	D	Е	F
spring	trend%	0.3%	0.4%	1.5%	1.0%	1.4%	0.9%
	mean	51.4	49.9	45.4	40.8	29.3	32.6
	$\mathbb{R}^2$	0.01	0.04	0.23	0.03	0.11	0.09
	trend%					3.0%*	1%
summer	mean					13.3	20.2
	$R^2$	1919		TOTOTO .		0.30	0.17
	trend%	0.8%	1.0%	0.9%	0.9%	3.7%	2.6%
autumn	mean	48.1	48.6	42.3	33.7	21.6	22.9
	$\mathbb{R}^2$	0.12	0.20	0.12	0.06	0.28	0.09
winter	trend%	-0.2%	-0.7%	0.5%		0.9%	
	mean	43.1	43.1	41.5		34.8	
	$R^2$	0.00	0.05	0.03		0.04	

表 4.3.6:六族群季節臭氧值年際趨勢與  $R^2$  值,有通過 p 檢定者以星號(\*)加註

表 4.3.7: 1995-2007 蘭嶼夜間臭氧值年際變化

Year	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007
O <sub>3</sub> value	<u> </u>	376	311	30.0	33.8	31/	37.0	375	3/3	37.0	33.0	33.0	33.0
(ppbv)	20.2	52.0	54.4	50.9	55.8	51.4	57.0	57.5	54.5	57.0	55.9	55.9	35.0

1995-2002	А	В	С	D	E	F
Trend%	1.1%	0.2%	2.6%*	0.6%	5.7%*	3.2%
Mean (ppbv)	45.9	46.4	42.4	34.7	21.2	21.8
$R^2$	0.10	0.02	0.71	0.01	0.75	0.43
2002-2007	А	В	С	D	Е	F
Trend%	-3.4%*	-2.6%	-0.9%	1.1%	-0.4%	0.4%
Mean(ppbv)	46.7	46.5	44.2	35	23.6	24.2
$R^2$	0.80	0.47	0.06	0.03	0.00	0.00

表 4.3.8: 六族群前後期臭氧值年際趨勢變化



表 4.3.9: 六族群前後期族群數目年際趨勢變化

		Y	1 3 1	款		
1995-2002	А	B		Ď	Е	F
Trend%	0.5%	-2.7%	2.6%	2.7%	-4.3%	4.3%
Mean(N)	55.1	63	49.9	21.3	81.1	74
$R^2$	0.00	0.20	0.17	0.03	0.25	0.45

2002-2007	А	В	С	D	Е	F
Trend%	-2.0%	-2.2%	2.3%	-0.5%	-2.2%	2.5%
Mean(N)	54.7	63	47	19.5	77	80
$R^2$	0.09	0.10	0.04	0.00	0.25	0.13

表 4.3.10:	逆軌跡族群數目之季節年際趨勢與分期年際趨勢	,其中通過 p 檢定者
	以星號(*)加註	

Number								
1995-2002		А	В	С	D	Е	F	
Coring	trend%	0%	-7%	3%	7%	-3%	14%	
Spring	mean	10	15	11	6	32	10	
Summor	trend%					-10%	3%	
Summer	mean					28	55.3	
Autumn	trend%	1%	3%	3%	-4%	-6%	4%	
Autumn	mean	14	20	21	9	18	7	
W7:	trend%	-1%	-4%	5%		13%		
w inter	mean	31	31	15		28		
2002-2007		A	B	C	D	Е	F	
Spring	trend%	13%	-3%	10%	-21%	-5%	9%	
Spring	mean	8 4	15	11	5	28	16	
Summor	trend%	8.1		$\left( \right)$ .		4%	-1%	
Summer	mean	~	A	1 ANT		27	55	
Autumn	trend%	-9%	-8%	2%	8%	6%	11%	
Autuilli	mean	16	17	20	11	15	9	
Winter	trend%	-3%	1%	6%		-11%		
w miter	mean	30	32	14		7		

Ozone value (ppbv)									
1995-2002		А	В	С	D	Е	F		
Spring	trend%	3%*	1%	2%	3%	3%	3%		
Spring	mean	52	50	44	40	29	32		
Summer	trend%					4%	3%		
	mean					12	20		
Autumn	trend%	2%	2%	3%	2%	$11\%^*$	2%		
Autuillii	mean	47	47	42	33	21	22		
Winter	trend%	0%	1%	2%		1%			
w inter	mean	43	44	41		34			
2002-2007		A	В	C	D	Е	F		
Spring	trend%	-3%	-1%	2%	2%	4%	-2%		
Spring	mean	52	51	47).	40	30	34		
Summor	trend%	-	A	1		3%	-2%		
Summer	mean	1.38		100	0	15	21		
Autumn	trend%	1%	1%	-1%	1%	-1%	7%		
Autuilli	mean	50	50	44	34	24	25		
Winter	trend%	-3%*	-5%*	-2%		-1%			
Winter	mean	44	43	42		36			

## 表 4.3.11:逆軌跡族群臭氧值之季節年際趨勢與分期年際趨勢,其中通過p 檢定 者以星號(\*)加註

次族群\族群	А	В	С	D	E	F
1	>55	>55	>50	>45	>35	>30
2	40-55	40-55	50-35	45-25	35-10	30-10
3	<40	<40	<35	<25	<10	<10

表 4.4.1: 次族群之臭氧範圍標準(單位: ppbv)

表 4.4.2: 次族群之個數佔族群比例

次族群\族群	А	ВТ	C	14 D	Е	F					
1	12.1%	16.1%	23.8%	24.9%	19.1%	19.3%					
2	67.8%	63.2%	56.1%	52.1%	64.6%	57.5%					
3	20.1%	20.7%	20.1%	23.0%	16.3%	23.2%					
		A A A	要.导	HI TO AN							
编號	個案名 (yy/mm/dd)	達蘭嶼 O3 監 淵值(ppbv)	TAQM 模擬值 (ppbv)	次族群 分類	24hr 模擬 與實際 O <sub>3</sub> 値之 rms	O <sub>3</sub> 單一時間區間 最大上升值 (ppbv)	O3 最大上升 區間之 O3 值 (ppbv)				
----	-------------------	----------------------	--------------------	-----------	---	--	-------------------------------				
1	981208	47	53	A-2	7.5	13.2	40.0				
2	991208	40	44	A-2	3.8	2.3	44.3				
3	000117	37	40	В-3	4.6	9.5	54.2				
4	010116	51	53	A-2	11.2	4.1	47.7				
5	020211	60	55	A-1	6.0	9.6	63.7				
6	031221	38	46	A-3	7.2	1.1	43.5				
7	040115	37	39	A-3	3.5	1.6	46.1				
8	050118	46	52	В-2	5.4	4.8	34.6				
9	061216	44	49	A-2	5.4	4.2	40.8				
10	071206	37	37	B-3	4.3	2.6	47.5				

表 4.5.1: 個案模擬之統計資料

	Tor	* AA		
O3最大上升區間所在之		O3最大值	O3 最大值所在之	
經緯區塊與高度(km)		(ppbv)	經緯區塊與高度(km)	
B3	0.4	57.1	D4	0.4
D3	0.3	47.6	C5	0.2
C3	1.2	54.2	C3	1.2
D3	0.9	72.6	C5	0.5
D3	1.0	66.0	D4	0.8
D3	1.1	46.3	D3	0.3
C3	1.6	47.2	C3	1.5
C4	0.3	53.6	C5	0.3
C2	0.6	52.2	C5	0.8
E4	0.1	50.2	D4	0.1



圖 2.1.2: 蘭嶼島與日本與那國島(Yonagunijima)之地理位置



圖 2.1.3: 蘭嶼氣象站位置圖



圖 2.3.1: MM5 中尺度系統操作流程(摘自 MM5 使用手册)



圖 2.3.3: TAQM 資料流程圖(摘自 TAQM 手冊)



圖 3.1: k-means 方法流程圖

(原圖於 http://people.revoledu.com/kardi/tutorial/kMean/Algorithm.htm)



圖 3.2:利用 K-means 分別對到達蘭嶼前倒退3日、4日、5日之空氣胞位置分別分成2群、3群、4群之結果,之後再依此結果進行樹狀分群得到子族群



圖 4.1.1: 六空氣胞族群倒退五日平均路徑,路徑中每 24 小時以一圓點標示



圖 4.1.2: 六族群倒退五日逆軌跡線總分佈



圖 4.1.3: 六族群高度平均圖



圖 4.1.4: 六類典型個案逆軌跡線與地面氣壓場合成圖 其中地面氣壓場日期為逆軌跡計算起始日之前兩天的 00 時,是由 NOAA/ESRL Physical Sciences Division 網站所繪製(<u>http://www.cdc.noaa.gov/data/</u> <u>composites/day</u>)。各圖所代表族群之排列順序同圖 4-1-3



圖 4.2.2: 我國蘭嶼及日本與那國島測站之月平均臭氧濃度變化



圖 4.2.3: 六逆軌跡族群之臭氧值區間分佈圖



圖 4.3.2: 六族群臭氧年際變化趨勢, (臭氧值單位: ppbv)



圖 4.3.3: 六族群臭氧值分佈區間年際變化等值圖



圖 4.3.4: 1995-2007 蘭嶼夜間臭氧值年際變化



圖 4.4.1: 六族群依臭氧值所分次族群平均五日水平逆軌跡線圖,各次族群所設 定的臭氧值範圍可參照表 4-4-1



圖 4.4.2: 六族群依臭氧值所分次族群平均五日高度圖,各次族群所設定的臭氧 值範圍可參照表 4-4-1



圖 4.4.3:六族群依臭氧值所分次族群之年際比例變化圖,各次族群所設定的臭 氧值範圍可參照表 4-4-1



圖 4.5.1:所有個案的臭氧最大值位置(左),最大上升處位置(右)。其中各編號代



圖 4.5.2:071206 個案水平逆軌跡比較圖,紅色為由 NCEP/NCAR 再分析資料所 得之逆軌跡,藍色為由 MM5 氣象場所得之逆軌跡,每 24 小時並以 X 號標示。 MM5 逆軌跡因範圍限制僅計算至-89 小時



圖 4.5.3:071206 個案垂直逆軌跡比較圖,紅色為由 NCEP/NCAR 再分析資料所 得之逆軌跡,藍色為由 MM5 氣象場所得之逆軌跡。其中 MM5 逆軌跡因範圍限



圖 4.5.4:2007 年 12 月 3 日 12Z ,925hPa 之高空天氣圖



圖 4.5.5:071206 個案空氣胞臭氧值隨路徑之變化圖,藍線為一般排放模擬,灰





圖 4.5.6:071206 個案中,將有排放模擬值減去無排放模擬值,所得空氣胞因排 放所造成臭氧值隨路徑之變化圖



圖 4.5.7:071206 個案中三特性時段, 臭氧之水平位置

(I)12月3日18時至12月4日8時

(II)12月4日8時至16時

(III)12月5日6時至14時



圖 4.5.8:特性時段(I)時, sigma level=0.928 與地面之東亞臭氧場圖,此時段之 空氣胞水平位置以紅框標出



圖 4.5.9:特性時段(II)時, sigma level=0.957(左)與地面(右)之東亞臭氧場圖, 此時段之空氣胞水平位置以紅框標出



圖 4.5.10:071206 個案於特性時間(III)的純排放造成之臭氧場圖,單位為 ppbv。 此時段之空氣胞水平位置以紅框標出



圖 4.5.11:050118 個案水平逆軌跡比較圖,紅色為由 NCEP/NCAR 再分析資料所 得之逆軌跡,藍色為由 MM5 氣象場所得之逆軌跡,每 24 小時並以 X 號標示



圖 4.5.12:050118 個案垂直逆軌跡比較圖,紅色為由 NCEP/NCAR 再分析資料所 得之逆軌跡,藍色為由 MM5 氣象場所得之逆軌跡



圖 4.5.14:050118 個案空氣胞臭氧值隨路徑之變化圖,藍線為一般排放模擬,灰線則為扣除排放之模擬。其中因範圍限制,臭氧僅採計至-110 小時



圖 4.5.15:071206 個案中,將有排放模擬值減去無排放模擬值,所得空氣胞因排



圖 4.5.16:050118 個案中兩特性時段,臭氧之水平位置,(I)1 月 16 日 16 時至 1 月 17 日 4 時,(II)1 月 17 日 4 時至 1 月 18 日 12 時



圖 4.5.17:050118 個案中的下降期, σ=0.957(左)與地面(右)之東亞臭氧場圖, 此時段之空氣胞水平位置以紅框標出



圖 4.5.18:050118 個案,上升期中兩主要上升段地面純排放之東亞臭氧場圖 :(左):第-36 至-30 小時(17 日 8 時至 14 時,(右)第-14 至-8 小時(18 日 6 時 至 12 時),此時段之空氣胞水平位置以紅框標出



圖 4.5.19:050118 個案中的上升期,地面之 CO 場圖,此時段之空氣胞水平位



圖 4.5.20:050118 個案中的下降期,NO2在路徑上之變化



圖 4.5.21:071206 個案中,特性時段(I)時,NO2 在路徑上之變化