臺灣臭氧垂直分布變化趨勢

徐光蓉[1]　張修武[2]

1 臺灣大學大氣科學系

2 中央氣象局

（中華民國九十三年七月十五日收稿；中華民國九十三年九月十五日定稿）

摘　要

本研究用中央氣象局十多年的臭氧探空資料，分析平流層和對流層臭氧的季節變化，以及長期趨勢．同時量度的氣象因子使得分析更有意義．由對流層頂高度的逐漸提升，每十年+79 ± 206 公尺；及溫度小幅但顯著地下降，每十年減少 1.0 ±0.89 K，顯示台灣上空大氣已感受到溫室效應氣體增加的影響．對流層臭氧是由地表積分各高度的臭氧分壓而得，有不顯著的微弱下降，每十年減少 0.60 ± 2.1 DU，雖然與許多人預測不符，但是和近一二十年全球各地觀測結果沒有太大差異．

臭氧垂直剖面在低平流層有很顯著的變化：夏季有遠多於平均的臭氧，冬季則比平均值少很多．對流層的變化幅度較平流層小：冬季多而夏季少，冬夏季節變化正好與平流層相位相反．春秋兩季的臭氧則沒有明顯的特徵．比較同時期臭氧及溫度直垂剖面的年季變化，發現臭氧與溫度變化在某段時差下，兩者呈負相關，因此大氣動力所引起氣溫改變可能是控制臭氧季節性分布的主要因素．臭氧的長期趨勢，在低平流層有顯著增加，在中高對流層則有明顯下降．臭氧的趨勢變化正與溫度變化明顯反相．這現象應該表示對流層的增溫縮短了臭氧在大氣的生命期，因此濃度下降．在低對流層溫度下降，使得臭氧生命期變長，濃度上升．當然在某地觀測到的臭氧變化及趨勢，不一定能代表更廣泛的區域．本觀測結果雖僅在台北，但是與部份模式推估有許多相似之處，如果這裡觀察到的現象也在其他地區發生，未來對流層臭氧的量的增加將不如許多人預期的多，而地表的增溫幅度也較許多人預期低許多．

關鍵辭：對流層臭氧，剖面，季節變化，趨勢．

一、前　言

因爲臭氧直接或間接控制大氣中其他化學物質的分布，進一步影響氣候，臭氧可以說是對流層及平流層中最重要的化學物質. 此外，臭氧的產生和光解消耗吸收了來自太陽的紫外線，保護地表生物免於被破壞；同時也將太陽能轉換爲熱能，增加平流層的能量，使之成爲更高層大氣運動的主要能量來源. 總之，瞭解平流層與對流層臭氧變化是研究大氣化學中十分重要的課題.

大氣中臭氧濃度主要是受到光化學反應及大氣傳送的影響，其中平流層臭氧分佈受到太陽黑子運動及準雙年震盪影響很大；有相當多對流層的臭氧是由平流層傳送而來 (Fabian and Pruchnierwicz, 1977)，或透過長程傳送來臭氧的先驅物質影響偏遠地區的對流層臭氧 (Fishman and Crutzen, 1978; Liu et al., 1980). TRACE -A 大型實驗計畫結果顯示南美及非洲的生質燃燒是臭氧先驅物質的主要來源 (Thompson et al., 1996). 但也有些研究認爲氣象條件改變會影響臭氧變化(Krishnamurti et al., 1993; Chandra et al., 1998).

許多光化學一傳送模式希望探討哪些才是影響臭氧產生及消耗的主要機制 (Wang, et al., 1998; Crutzen and Zimmerman, 1991). 針對不同機制，Logan (1999) 估計對流層臭氧每年約有 3500 到 4000 Tg 是由光化學反應產生，並有 400 to 850 Tg 來自平流層下傳；光化學消耗約爲每年 3000 到 4000 Tg，有 500 到 1200 Tg 在與地面接觸後消失.

最近二三十年西太平洋地區不僅人口多增加迅速，也是全球經濟成長速度最快的地區. 這地區的人均能源消耗量在 1990 到 1995 年這段期間，每年以 6%的速率增加 (Ellis and Treanton, 1998)，爲全球之冠，而能源需求必然隨著經濟成長大幅增加，因此大家都預期未來臭氧的先驅物質排放會更多. 東亞地區臭氧的快速增加，很可能影響到北太平洋區域對流層的光化學變化，還可能影響美國西部地表臭氧的多寡 (Jacob, et al., 1999)； 而 Blake et al. (1999)分析春季收集到的懸浮微粒中所含礦物，結果顯示在晚冬初春時亞洲大量沙塵及光化學的先驅物質，會隨氣流傳送到美國加州.

由於臭氧在對流層中十分活潑，生命期很短 --- 僅二三週，對於想明確判別對流層臭氧的長期增減，增加許多困難. 早期的臭氧探空資料多半顯示對流層臭氧在逐漸上升，而低平流層臭氧下降. 但是最近的觀測資料不是都支持這樣明確的結果. Logan (1994) 分析對流層臭氧變化，結果顯示歐洲有顯著上升，加拿大沒有，而美國只有很微弱的增加. 她認爲可能是美國，歐洲，及日本等國，氮氧化物的排放自 1980 年起漸漸被控制因而逐漸穩定，而任何臭氧的短期變化應該是由動力因素所造成. 並且在部份測站，對流層臭氧的改變也影響到臭氧總量的變化.

Hsu and Yung (1999) 分析十四年衛星臭氧垂直總量資料，所得結果顯示人工合成的氟氯碳化物對臭氧總量影響，在台北(25.05N, 121.5E)是每十年下降 0.92 ±0.46%，台東成功(23.10N, 121.40E)是每十年下降 1.77±0.52 %；依據許多前人研究，緯度高的臭氧總量受到氟氯碳化物影響較緯度低的多，這裡看來並非如此，因此本研究想要瞭解是否因爲對流層臭氧變化而使得台北的臭氧總量減少幅度不及南部的成功.

除了觀測資料外，許多利用模式研究大氣化學變化，推估各種過程的重要性，並預測臭氧的時空分布，但是這些依然無法取代實際觀測. 因

爲模式是建立在已知的物理化學過程，無法推展出原先沒有的現象. 而模式與實際情況是否相符，或差距大小，還是需要實際觀測資料作驗證比對. 也只能由實際觀測與模式比對差異，才可能發現新的現象.

觀測資料涵蓋面最完整的是衛星資料，也是頻率最穩定的資料. 但是衛星資料多半僅提供垂直總量，無法討論在不同高度是否有變化. 因爲未來的東亞可能是污染物增長最快的區域，爲了要在空氣品質尚未極度惡化前，收集充份訊息，建立'背景資訊'，因此自 1980 年起，國際間組織了多次大型實驗計畫，包括 GAMETAG (Davis, 1980), PEM-West A and B (Hoell, et al, 1996, 1997), ACE 1 (Bates, et al., 1998), PEM- Tropics A and B (Hoell et al., 1999, Raper et al., 2001), 及 CENP. 這些大型計畫在選定的時間內，密集進行觀測，可以獲得相當完整的多種化學物質的垂直及水平分布，但是因爲密集觀測時間有限，通常是一兩個月；很難掌握隨長時間的變化. 長時間臭氧探空正好可以彌補這方面資料的不足，過去，因爲西方國家比較富裕，臭氧探空研究多數都集中在這些北半球中緯度國家，只有少數測站設在赤道及亞熱帶地區 (Logan, 1999)，資訊分布不平均.

DiNunno et al. (2003)分析中東北太平洋地區，約二十年來的十次飛機觀測臭氧光化學變化資料，資訊主要集中在春秋兩季，他們利用箱型光化模式探討臭氧的產生，消耗及整體變化. 結果顯示兩季，由地表到 4 公里高這段大氣有顯著臭氧減少，春季的變化比秋季大；往更高處去，臭氧開始小幅增加，而 DiNunno et al. 結果與先前在太平洋的兩次密集觀測 (PEM-West A 秋季及 PEM-West B 春季) 結果相反. 前兩次實驗結果一是 PEM-West A 沒有任何顯著臭氧變化趨勢，或如 PEM-West B 在所有高度都有增加. 因此 DiNunno et al. 認爲在亞洲大陸邊緣測到臭氧增加只對周遭有影響，因爲擴散及化學反應消耗而沒有影響到太平洋中部.

基本上，對某一地區而言，有三項因素影響低平流層及對流層臭氧：化學反應，自然運動以及大氣傳送. 長時間的臭氧垂直觀測是要想釐清三者間關係不可或缺的資料，也是模式驗證，衛星資料反衍所必須. 但是缺點是觀測數量有限，觀測頻率受到氣象條件影響而不固定 (Thompson, et al., 2003). 本研究用 Hsu and Yung (1999) 研究台灣臭氧總量變化爲基礎，利用中央氣象局約十年的臭氧探空資料，分析長期對流層臭氧變化，季節性變化，在不同高度臭氧長期變化，以及不同季節臭氧變化. 以下將先說明資料選取及分析方式；依照溫度分布先訂出對流層頂的位置；對流層臭氧就由地表積分到對流層頂而得；另外，臭氧也以每兩公里積分一次的方式得到不同層的臭氧總量，依據此資料討論季節及長期變化趨勢. 最後討論資料作成結論.

二、資料來源

中央氣象局自 1991 年 5 月起開始釋放臭氧探空，探空所用儀器包括：測臭氧的 Vaisala (Model ECC6A)的電化學電池，及量度氣壓，溫度，及相對濕度的 Vaisala (RS80-15GE). 臭氧探空每兩週的下午一時在台北站施放一次. 因爲本研究目的是以對流層臭氧爲主，只有上升超過 18 公里的探空才被採用，這高度的氣壓約爲 75 hPa，總共有 90.1%的探空達到這項要求.

本研究目的想要瞭解臭氧長期的變化趨勢，因此希望能夠避受特殊事件的干擾. Santer et al. (2003)的研究結果認爲，1991 年 6 月 15 日於菲律賓爆發的 Pinatubo 火山，影響一直持續到

1993 年中. 因此本資料希望能先剔除 Pinatubo 的影響, 先假設不同長短的臭氧探空資料先假設沒有區分, Null hypotheses, 進行測試. 結果顯示從 1993 年 4 月起的資料與以後確實無差別, 因此接下去的分析資料是從 1993 年 4 月開始至 2002 年 10 月, 總共 202 筆資料. 表一列出每個月有的探空資料數目, 與相近緯度的測站的探空資料數.

因爲不是每次探空都上升到 18 公里, 所以資料並沒有固定的頻率, 因此無法用這筆資料像 Hsu and Yung (1999)一般, 探討準雙年震盪, 聖嬰, 及太陽運動等對臭氧的影響. 以下趨勢分析都用簡單的線性迴歸求得.

爲了確認臭氧探空資料的品質, 探空資料也與衛星資料作比對. 因爲探空上升高度有限, 因此臭氧總量一直積分到氣壓 7 hPa 高度, 然後加上 McPeters, Lavow, and Johnson (1997) 所發表在 7 hPa 之上, 北緯 20 到 30 度的每月臭氧氣候值, 從而得到修飾過的臭氧總量. 結果再與施放探空時通過台北的衛星測得臭氧總量相比較. 在這段量度期間內, 通過台灣上空的各種測量臭氧總量的衛星天數共計有 119 天, 修飾過的臭氧總量與衛星所得臭氧總量的比值爲 0.966 ± 0.053. 探空所得數據略偏低, 但差距不大.

表一 台北測站 1993 年 4 月到 2002 年 10 月, 每個月臭氧探空數, 所得對流層臭氧平均值及誤差及緯度相近區域的探空數量

Month	J	F	M	A	M	J	J	A	S	O	N	D
Naha (26 N)*	16	11	14	16	17	12	15	13	16	19	16	20
Kagoshima(32N)*	20	21	23	18	19	15	14	9	29	36	21	22
Taipei (25 N)	17	14	14	15	14	13	18d	19	21	24	16	17
Mean	39.0	40.1	46.1	54.8	45.7	42.6	39.7	41.9	36.4	37.4	31.3	37.2
Uncertainty**	0.17	0.10	0.10	0.30	0.25	0.25	0.27	0.29	0.26	0.21	0.27	0.15

* 取自 Logan, 1999, 這些是在 1995 年 12 月前, 於 500hPa 有數值的探空數. 本研究只列入探空達 18 公里或更高, 相當於氣壓 76 hPa.

** 相對誤差.

三、結　果

對流層臭氧 對流層頂的位置是依照世界氣象組織 (WMO, 1957)定義求得: 溫度隨高度上升而下降, 每公里上升下降溫度小於 2 度, 而且現象能持續 2 公里, 這範圍的最低高度就是對流層頂. 由此定義訂出的對流層頂高度平均爲 16.81 ± 0.86 km, 相當於氣壓 96 ± 15 hPa. 圖 1 同時繪出對流層頂的溫度, 可以很明顯看出, 高度與溫度間呈現負相關: 對流層頂高度最高的月份也是對流層頂溫度最低的時候, 反之亦然. 對流層頂溫度最高時是四月, 200.0K, 此時對流層頂高度最低, 只有 16.24 公里. 而溫度最低是在十一月, 197.4K, 對流層頂高 17.29 公里.

這結果與 Seidel et al. (2001)從 1961 到 1990

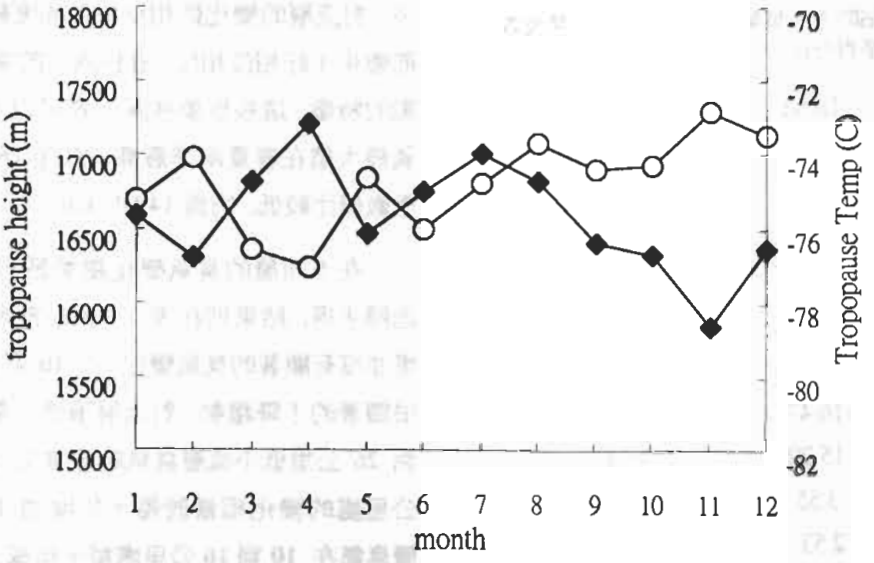

圖 1　對流層頂高度及對流層頂溫度的月變化，空的圓形代表對流層頂高度，填滿的菱形是溫度.

年的氣象探空所推導出的氣候值相當,最高的對流層頂發生在十一月; 與 Seidel et al. 略有差別的是，本研究所得四月的對流層頂最低，他們的結果顯示夏天的對流層頂最低; 但是他們所用資料集中在中緯度區域，可能是造成差異的主要原因.

分析整段時間對流層頂高度變化，發現一個很小並不顯著的上升趨勢: 每十年增加 79 ± 206 公尺，相當於每十年氣壓下降 1.1 hPa. 結果與 Santer et al. (2003)分析 ECWMF 資料結果, -1.13 hPa/decade 相似. 但幅度比 NCEP 再處理的結果, -2.16 hPa/decade 小. 對流層頂溫度則小幅但顯著下降，每十年減少 1.0 ±0.89 K.

對流層頂的位置比臭氧最低值的位置要高出 1 到 2 公里，差異的大小隨季節改變. 對流層臭氧總量是由臭氧在不同高度的分壓，由地表積分至對流層頂而得. 由此所得對流層臭氧平均值爲 40.58 ± 10.99 DU. 表一也列出每個月平均對流層臭氧值及誤差. 對流層臭氧最高在四月，十一月最少，對流層臭氧的月變化與對流層頂溫度變化相當，與對流層頂高度變化相反. 除了最高及最低數值外，其他幾個月的對流層臭氧數值幾乎相同. 以簡單線性迴歸所得對流層臭氧變化，結果是不顯著的微弱下降，每十年減少 0.60 ± 2.1 DU，或下降 1.5%. 結果與緯度相似的測站，Hilo (20N, 155W)相當，其所得對流層臭氧最高爲四月，九月最低，數值在 30 到 45 DU 間 (Ziemke and Chandra, 1999, Figure 5)，年季變化很弱.

垂直剖面　臭氧探空所得臭氧分壓以每兩公里一層積分轉換成絕對量，Dobson Unit (DU). 總共積分到四十公里，分二十層. 共 202 組資料分析結果得到臭氧最大值在 24 到 26 公里高處，臭氧量爲 15 DU/km. 最低的數值在 12 到 16 公里處，1.3 DU/km. 最高值及最低值換成混合比則分別相當於 4ppm 與 60 至 80ppb.

表二 台北測站的十年臭氧垂直剖面變化趨勢及誤差，數值都是百分比.

Altitude (km)	Trend	One Standard deviation
1	1.76	9.35
3	-6.18	6.87
5	0.16	6.74
7	0.76	6.01
9	2.48	6.81
11	-13.88	7.23
13	-16.47	7.60
15	-15.20	7.94
17	-3.55	8.86
19	2.53	7.03
21	6.92	5.12
23	10.70	5.99
25	13.75	5.34
27	0.10	6.82
29	-2.13	7.53
31	2.04	8.77
33	-1.76	10.35
35	-4.30	11.26
37	-39.58	17.22
39	-58.86	31.00

每層做線性迴歸所得十年趨勢及標準誤差列在表二，在 10 公里以下沒有明顯的臭氧變化. 10 到 16 公里有很強而顯著的下降趨勢，最高可達十年減少 16.5%. 低平流層則有明顯的上升趨勢，並以 22 到 26 公里最顯著. 對流層的變化與 Randel et al. (1999) 研究結果相似，他們發現在 10 到 25 公里範圍內趨勢都是下降. 在低平流層的結果則與他們不同.

分季節討論，每個季節臭氧值都減去年平均，繪於圖 2. 結果顯示在平流層有很顯著的變化：夏季有遠多於平均的臭氧，冬季則比平均值少很多. 對流層的變化則相反但是幅度較小. 冬夏季節變化正好相位相反. 春秋兩季的臭氧則沒有明顯的特徵. 這些現象在圖二表現的十分清楚. 臭氧最大值在春夏兩季最高，約爲 16 DU/km；冬季數值比較低，約爲 14 DU/km.

在不同層的臭氧變化趨勢是利用簡單線性迴歸求得，結果列在表二. 在地表到 10 公里高處並沒有顯著的臭氧變化. 從 10 到 16 公里處有很顯著的下降趨勢. 對流層頂是一個轉折，之上到 26 公里低平流層臭氧顯著增加. 在 20 到 26 公里處的變化相當於每十年增加 8.2DU，對流層臭氧在 10 到 16 公里處每十年減少 1.35 DU.

用 UV10.7 公分電磁波長訊號的 13 個月的移動平均，作爲太陽運動強弱的代表. 將由 1993 年 4 月到 2002 年 10 月的 UV10.7 數據，作簡單線性回歸. 結果顯示太陽光強度增加約 100 個單位，由過去 Hsu and Yung (1999)研究結果，推測這樣幅度太陽強度改變，會增加台北上空臭氧總量約 5.6 DU. 如果這些改變集中在平流層，就相當於平流層增加量的 70%.

溫度隨高度變化趨勢繪在圖 3，顯示對流層有明顯的增溫現象，而低平流層溫度明顯下降，這些特徵和 Kirk-Davidoff et al. (1999)預測溫室效應氣體增加的影響，當二氧化碳倍增時，在赤道附近區域的溫度變化剖面相似. 然而溫度及臭氧變化趨勢在同一高度變化的符號相反，與許多人預測：對流層臭氧增加導致的增溫效應不符.

四、結果討論

表一中也列出對流層臭氧量與對應的相對誤差，部份月份有相當高的誤差. 誤差來源有兩類：觀測的不準度，及自然變動所引起觀測量的

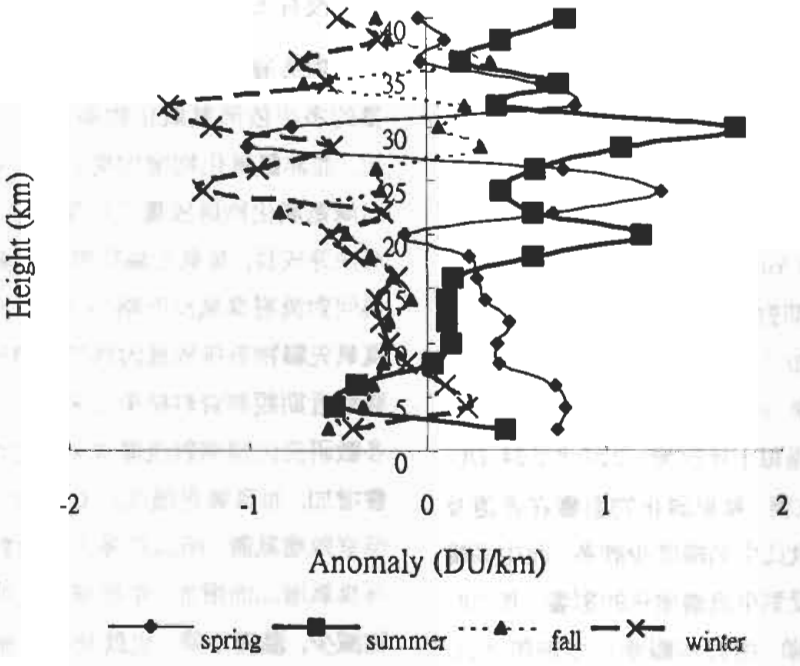

圖 2　四季臭氧剖面隨高度的變化.

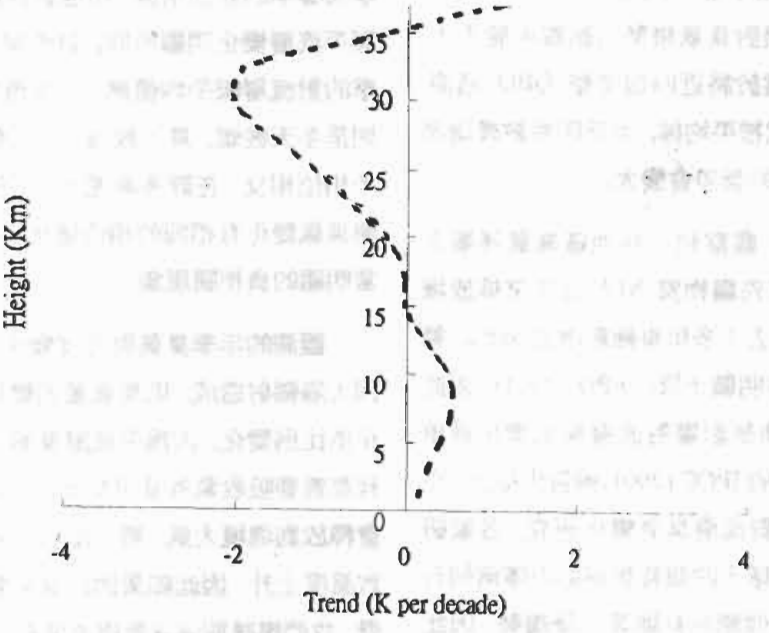

圖 3　溫度剖面的趨勢變化.

變動. 我們認爲在本研究, 後者的影響較重. 因爲前項誤差主要來自隨機誤差, 採樣次數越多, 誤差應該越小. 以六月份資料來看, 樣本 13 組, 誤差爲 25%, 而二三月都有 14 組資料, 但誤差都僅 10%.

依據 Hsu and Yung (1999)報告, 在台北上空, 太陽黑子運動週期對臭氧總量影響是每 100 單位的太陽變動增加 5.57±0.97 DU; 每個準雙年震盪週期改變臭氧 8.73±1.45 DU; 人爲合成的氟氯碳化物影響僅每十年改變 -2.50±1.24 DU, 相當於 –0.92%改變. 氟氯碳化物影響在赤道及亞熱帶地區原本就比中高緯度少許多. 而中高緯度臭氧變化多數受到平流層變化的影響, 其他的可能變數無法突顯. 由於本觀測在亞熱帶地區, 一些原本被平流層變化掩蓋的因素, 在這裡可以突顯. 在本資料收集的時間, 正好與太陽運動逐漸活躍時間吻合, 對臭氧影響估計應增加約 5.6 DU, 但應該主要集中在平流層. 二十九個月一周期的準雙年震盪對臭氧趨勢的影響可能不大, 因爲觀測期間相當於將近四個完整 QBO 週期, 所以 QBO 的貢獻被平均掉, 但是因爲數據隨運動震盪, 所得結果的誤差會變大.

Logan (1994) 觀察到一些地區臭氧逐漸上升, 認爲主要受到先驅物質 NO_x 近年來排放增加的影響. 台灣過去十多年車輛數增加 60%, 氮氧化物排放量沒有明顯下降(CEPD, 2001), 因此氮氧化物增加並非是影響對流層臭氧變化最重要的因素. 而最新的 IPCC (2001)報告也提到, 自 1980 年以來針對對流層臭氧變化研究, 各家研究結果不一致. 全球十四個背景測站中僅兩個有明顯上升趨勢, 四個測站有顯著下降趨勢. 因此本研究所得對流層臭氧略下降之趨勢, 每十年減少 0.60± 2.1 DU, 或下降 1.5%, 與過去研究結果並沒有太大出入.

對流層臭氧是光化學反應的二次產物, 產生量的多少依照氮氧化物與有機物兩者間關係而定, 並非氮氧化物增加臭氧一定線性上升. 雖然台灣氮氧化物排放量已日趨穩定, 但鄰近各國經濟快速成長, 臭氧先驅物質排放量應該大幅上升, 爲何對流層臭氧反而略爲下降? 依前所述, 因爲臭氧先驅物質排放量因爲經濟發展, 會不斷上升, 雖然近期觀測資料結果並未提供一致的結論, 但多數研究仍預測對流層臭氧濃度增加. 因爲臭氧會增加, 而臭氧是僅次於 CO_2 與 CH_4 最重要的溫室效應氣體, 所以許多人預測對流層溫度會因爲臭氧增加而增加. 平流層臭氧則因爲氟氯碳化物減少, 溫度下降. 也就是在對流層及平流層臭氧的變化與溫度變化應該是相同的符號.

圖四是與臭氧探空同時量度所得的溫度的季節變化. 夏季與冬季地表溫度差 12 度, 與秋季與春季的差別相似. 由地表到對流層頂的變化與平流層變化明顯不同, 對流層頂是轉戾點. 夏季的對流層較平均值熱, 冬季溫度較低; 平流層則是冬天較暖, 夏天較冷; 這兩個季節變化顯著地相位相反. 在許多高度上, 不僅沒有發現溫度與臭氧變化有相同的相位變化, 在許多位置有相當明顯的負相關現象.

觀測的年季臭氧與溫度變化間關係, 如果是因太陽輻射造成, 則臭氧量的變化應該和溫度變化依比例變化, 因爲平流層臭氧的生成與光解消耗都需要吸收紫外及可見光, 同時反應多餘的熱會釋放到環境大氣, 將一部份太陽輻射轉成熱導致溫度上升. 因此如果因爲臭氧變化引起溫度改變, 我們應該期望臭氧與溫度有一致性的改變.

雖然太陽輻射增加會導致臭氧增加, 因爲氧

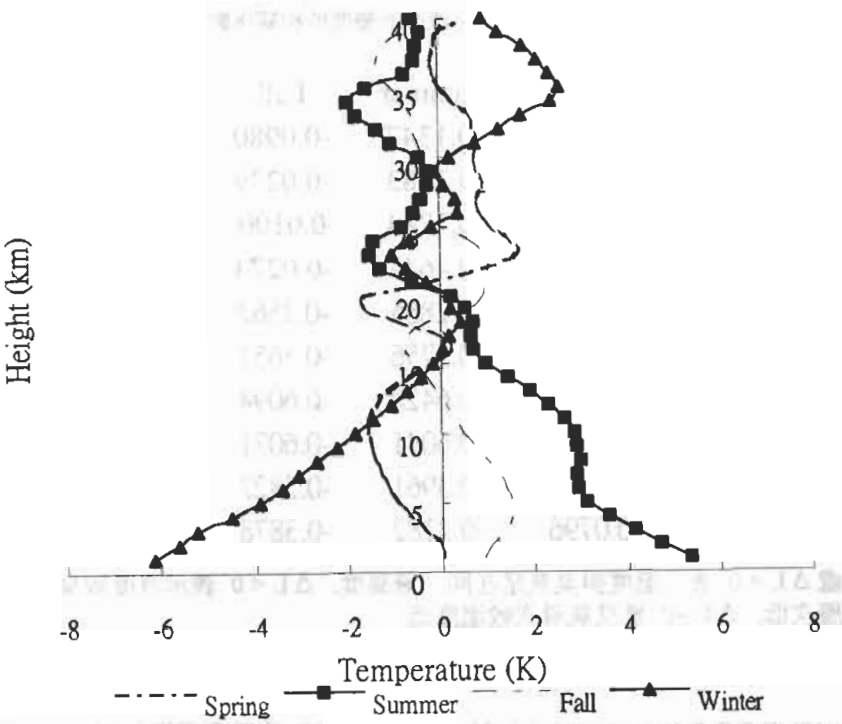

圖 4　溫度剖面的季節變化.

氣光解主要在平流層，對對流層影響應該不大. 如果臭氧變化主要因傳送引起，夏季氣流上升，會將平流層臭氧稀釋，濃度應該下降才是，這和觀測結果相違背. 因此大氣傳送應該不是這裡觀測到臭氧變化的主要控制因素.

由臭氧與溫度等值線圖看出似乎臭氧變化有跟著氣溫變化的現象. 如果確實如此，最可能就是溫度改變影響化學反應快慢. 已知臭氧的生成反應，$O+O_2+M$，反應速率常數隨溫度昇高而降低，$T^{-2.3\pm0.5}$；而臭氧的消耗反應的反應速率常數隨溫度上升而增快(DeMore, et al., 1997). 因此，增溫會使得臭氧在大氣生命期變短，濃度因而下降.

若僅考慮簡單的純氧環境來看，臭氧產生 $O+O_2+M$ (1)及消耗 $O+O_3$ (2) 反應在溫度改變時，臭氧隨溫度改變的相對量爲($\Delta O_3)/(O_3) = 1/2\ (\Delta(k_1/k_2)/(k_1/))$; 其中 k_1 及 k_2 分別是反應 1 及 2 的反應速率常數. 依據 JPL97 (DeMore, et al., 1997), 臭氧變化約爲($\Delta O_3)/(O_3) = -1295 * (\Delta T) / T^2$. 在約 20 到 24 公里高處，溫度爲 220K, 如果溫度下降 4 度，臭氧將上升約 10%. 平流層臭氧催化循環的反應隨溫度的改變比純氧的反應小，因此實際變化應該較低.

表三是計算不同季節臭氧及溫度改變間的相關係數所得結果，ΔL = 0 是同一層的溫度與臭氧變化的相關，在此是以臭氧研究爲主，ΔL 大於零是在高處的溫度改變與較低處的臭氧比

表三 不同季節臭氧及溫度改變間的相關係數

ΔL	Spring	Summer	Fall	Winter
-4	-0.0963	-0.1347	-0.0980	0.0786
-3	-0.5225	-0.3283	-0.0239	-0.1988
-2	-0.6416	-0.3784	0.0100	-0.4970
-1	-0.5161	-0.4642	-0.0273	-0.6171
0	-0.3213	-0.2855	-0.2562	-0.4566
1	-0.5359	-0.3756	-0.5651	-0.4810
2	-0.6704	-0.6420	-0.6094	-0.3649
3	-0.5249	-0.6041	-0.6071	-0.1638
4	-0.3722	-0.3961	-0.5822	-0.0616
5	-0.0796	-0.2182	-0.3878	0.2326

此處 $\Delta L = 0$ 表示溫度與臭氧是在同一層高度，$\Delta L < 0$ 表示溫度較臭氧的層次低，$\Delta L > 0$ 是臭氧層次較溫度低.

較，ΔL 小於零則是高處臭氧與低處溫度之比較. 此處相關係數ΔL 由-4 變到 5，相當於高度差-8 公里到+10 公里. 表三很明顯的看出，不論是否是同一層次間的比較，幾乎所有相關係數都是負值. 進一步說明臭氧變化改變輻射吸收所引起溫度變化，在此處的重要性應該不高. 夏季相關係數最強是臭氧變化與高兩層的溫度變化；冬季相關反過來，臭氧變化與低一層的溫度變化相關性最強. 顯示動力引起的溫度改變對於臭氧分部有十分顯著的影響.

年度變化更能表現溫度與對流層臭氧間關係的密切. 圖 5,6 分別是臭氧及溫度除去年平均後的等值線圖. 對流層臭氧有很顯著的季節性變化. 除了地表臭氧以夏天高於平均值外，對流層臭氧變化最大是在 4-6 公里高處. 臭氧增加開始於晚冬 4-6 公里處，五六月間由比平均多變爲比平均少. 在其餘的時間對流層臭氧都偏低. 略高於平均值的時間隨高度上升而延後. 平流層變化以 28 –30 公里高處變化最大. 六月初可以突然由負轉正，而變化最大的區域有略微向上抬昇. 變化次多的區域冬天是在 24 到 26 公里處，隨著天氣變暖逐漸下降，在六七月降到 20 公里處，之後再度上升.

對流層溫度有很清楚的季節性變化，見圖六. 與臭氧變化稍微不同的是對流層溫度改變由地表開始，而夏秋季溫度變化呈現相當好的對稱性；低於平均溫度的部份變化則與臭氧變化相似，雖然改變由地表發生，在春天改變逐漸向上移，與平流層溫度變化連接，這些變化主要因 Hadley circulation 年強度變化所引起. 數十年前，Reed and Vlcek (1969) 就已證實在赤道低平流層有相當大的年溫度變化，圖 6 顯示在對流層頂附近溫度變化幅度很大. 比較圖 5 及圖 6 發現，在對流層臭氧高於平均值的時候，正是溫度低於平均值的時候，兩者變化隨高度改變也類似，而臭氧變化約比溫度變化落後一個半月.

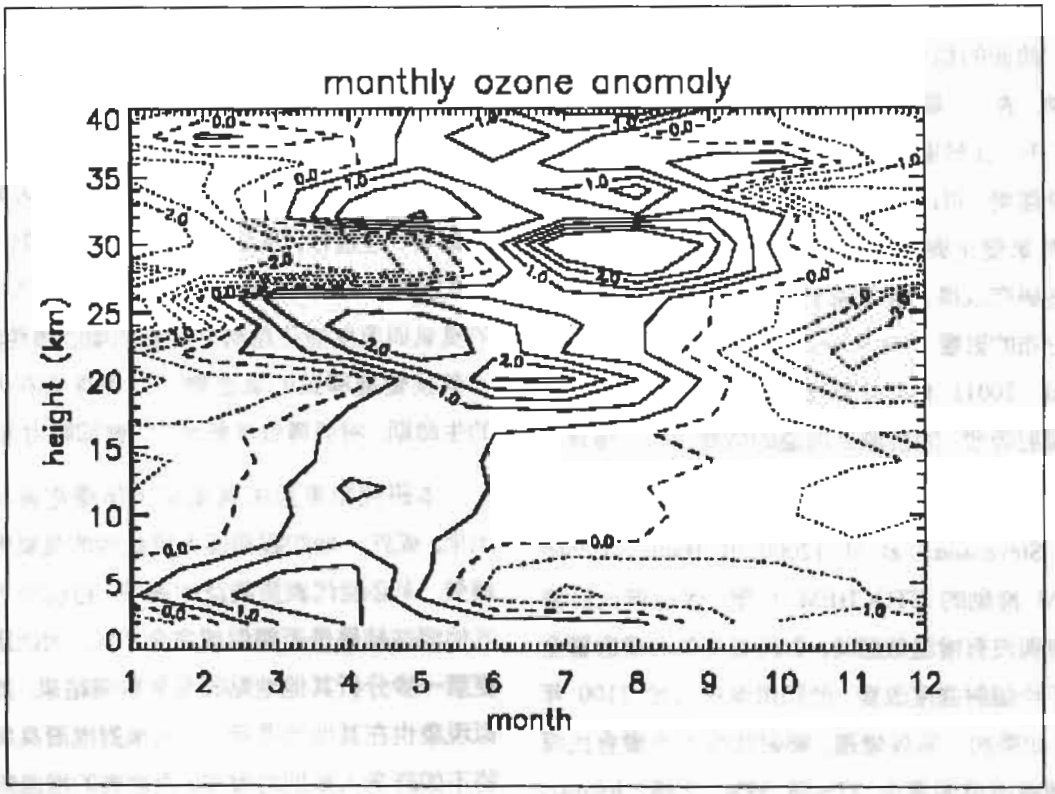

圖 5　除去年平均的臭氧隨高度及時間的變化等值線.

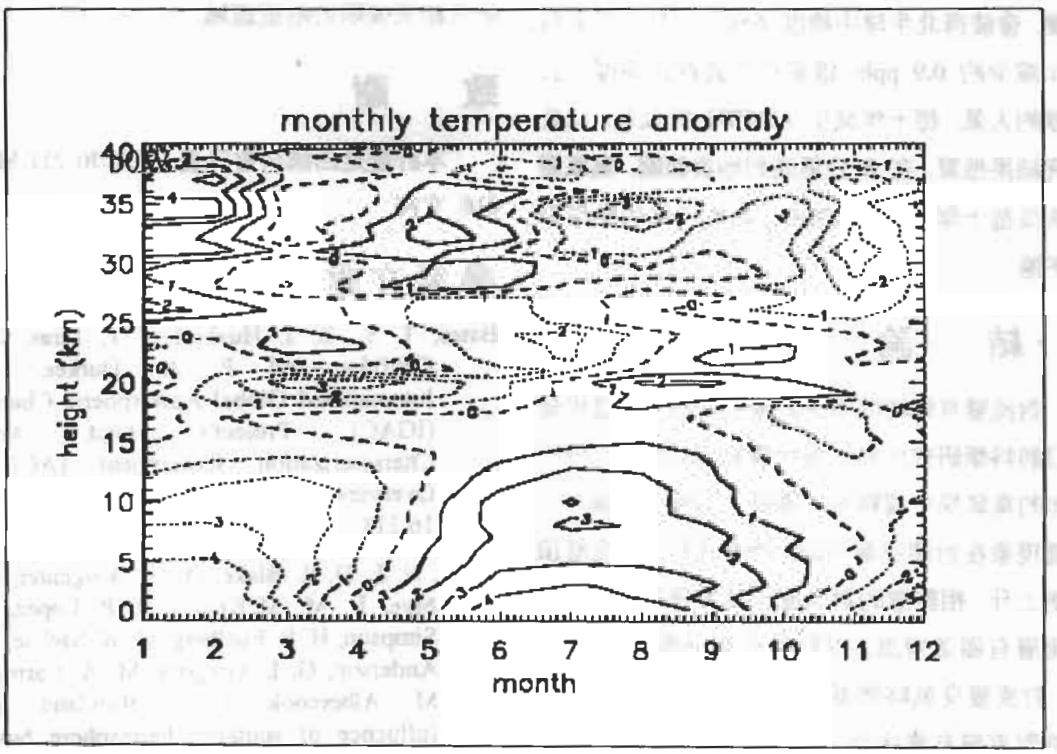

圖 6　除去年平均的溫度隨高度及時間的變化等值線.

前面的結果中得到在不同高度的臭氧長期趨勢，表二，顯示對流層臭氧減少，低平流層臭氧上升；比較圖三顯示的垂直剖面上溫度變化的長期趨勢，可以發現與年季變化有相似的現象 --- 臭氧變化與溫度變化是呈負相關. 其實已有一些研究以模式探討溫室氣體增加對臭氧，甲烷等分布的影響 (Stevenson, et al., 2000; Johnson, et al., 2001). 他們認爲增溫會降低臭氧濃度，減少輻射吸收，間接減低增溫的效應. 是一種負回饋.

Stevenson et al. (2000)用 Hadley Center GCM 推動的 STOCHEM 化學--傳送模式計算在有與沒有增溫效應時，對流層臭氧改變影響全球平均輻射強度改變. 他們預測在公元 2100 年時，如果加入氣候變遷，輻射強度的改變會比沒有考慮增溫因素少 37%到 59%. 之後，Johnson et al. 進一步估算到在公元 2100 年前，考慮氣候改變，會使得北半球中緯度 650hPa 高度臭氧每十年減少約 0.9 ppb. 這量相當於在此高度一公里厚的大氣，每十年減少 0.06DU 的臭氧. 以此研究結果推算，在 8 公里高到地表範圍，臭氧變化量爲每十年減少 0.07DU. 與模式推估結果相距不遠.

五、結　論

對流層臭氧時間空間的變化都很大，這也是到目前科學研究尚無法有明確結論的原因. 分析十年的臭氧探空資料可以獲得下列幾項結論. 一，增溫現象在台灣逐漸明顯；特徵包括：對流層頂逐漸上升，相對應的對流層頂溫度逐漸下降，高對流層有顯著增溫，以及低平流層溫度下降等. 二，對流層臭氧略微減少，但不顯著. 這與一般預測對流層臭氧因爲先驅物質排放不斷增加而應該增加不同. 三，臭氧的剖面分析顯示，對流層臭氧減少，平流層臭氧增加. 而後者的增加有一大部份應該歸因於太陽活動增強所致. 四，臭氧的年季變化主要受到大氣運動改變大氣溫度的影響. 在這裡，臭氧本身的輻射吸收對大氣溫度的影響似乎不重要. 五，在對流層及低平流層的臭氧與溫度變化趨勢之間有明顯的負相關，顯示氣候變遷導致的氣溫變化改變臭氧在大氣中的生命期，增溫導致臭氧減少，會抑制增溫作用.

本研究結果是由氣象局十年探空資料推導出來，或許一地的觀測僅表現此地的臭氧變化及趨勢，未必能代表更廣泛的區域. 目前尚不知道其他測站結果是否類似或完全不同，因此應該會更禁一步分析其他地點的臭氧觀測結果. 如果類似現象也在其他地區發生，未來對流層臭氧的量將不如許多人預期的增加，而地表的增溫幅度也較許多人預期低. 再還沒有更多資料佐證前，本研究結果僅限於附近區域.

致　謝

本計畫是由國科會計畫：NSC90-211-M-002-016 支持.

參考文獻

Bates, T. S., B. J. Huebert, J. L. Gras, G. B. Griffiths and P. A. Durkee, 1998: International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Project's First Aerosol Characterization Experiment (ACE 1): Overview, *J. Geophys. Res.*, **103**, 16,297 - 16,318.

Blake, N. J., D. R. Blake, O. W. Wingenter, B. C. Sive, L. M. McKenzie, J. P. Lopez, I. J. Simpson, H. E. Fuelberg, G. W. Sachse, B. E. Anderson, G. L. Gregory, M. A. Carroll, G. M. Albercook, F. S. Rowland, 1999: Influence of southern hemisphere biomass

burning on mid-tropospheric distribution of non-methane hydrocarbons and selected halocarbons over the remote South Pacific, *J. Geophys. Res.* **104**, 16213-16232.

CEPD, 2001: Taiwan Statistical Data Book, 2000, Council of Economic Planning and Development, Taiwan.

Chandra, S., J. R. Ziemke, W. Min, and W. G. Read, 1998: Effects of 1997-1998 El Nino on tropospheric ozone and water vapor, *Geophys. Res., Lett.*, **25**, 3867-3870.

Crutzen, P. J. and P. H. Zimmerman, 1991: The changing photo photochemistry troposphere, *Tellus, B.* **43**, 136-151.

Davis, D. D., 1980: Program Gametag: An overview, *J. Geophysi. Res.*, **85**, 7285 - 7292.

DeMore, W. B. et al., 1997: *Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling*, JPL publication 97-4, Pasadena, California.

DiNunno, B., D. Davis, G. Chen, J. Crawford, J. Olson, and S. Liu, 2003: An assessment of ozone photochemistry in the central/eastern North Pacific as determined from multiyear airborne field studies, *J. Geophys. Res.*, **108**, 8237, doi: 10129/2001JD001468.

Ellis, Jane and Karen Treanton, 1998: Recent trends in energy-related CO2 emissions. *Energy Policy* **26**, 159-166.

Fabian, P., and P. G. Pruchniewicz, 1977: Meridional distribution of ozone in the troposphere and its seasonal variation, *J. Geophys. Res.*, **82**, 2063- 2073.

Fishman, J. and P. Crutzen, 1978: The origin of ozone in the troposphere, *Nature*, **274**, 855-858.

Hoell, J. M., Jr., D. D. Davis, S. C. Liu, R. E. Newell, M. Shipham, H. Akimoto, R. J. McNeal, R. J. Bendura and J. W. Drewry, 1996: Pacific Exploratory Mission - West (PEM- West A): September - October 1991, *J. Geophys. Res*, **101**, 1641 - 1653.

Hoell, J. M., Jr., D. D. Davis, S. C. Liu, R. E. Newell, H. Akimoto, R. J. McNeal, and R. J. Bendura, 1997: Pacific Exploratory Mission - West (PEM-West B): February - March 1994, *J. Geophys. Res.*, **102**, 28,223 - 28,239.

Hoell, J. M., Jr., D. D. Davis, D. J. Jacob, M. O. Rogers, R. E. Newell, H. E. Fuelberg, R. J. McNeal, J. L. Raper, and R. J. Bendura, 1999: Pacific Exploratory Mission in the tropical Pacific: PEM - Tropics A, August - September, *J. Geophys. Res.*, **104**, 5567 - 5583.

Hsu, Kuang- Jung and Yuk Ling Yung, 1999: Ozone trend over Taiwan from TOMS Data, *Terrestrial, Atmospheric and Oceanic Sciences*, **10**, 619-632.

IPCC 2001, Climate Change 2001: the scientific basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, edited by Houghton, J. T. et al. Cambridge University Press.

Jacob, D. J., J. A. Logan, and P. P. Murti, 1999: Effects of rising Asian emissions on surface ozone in the United States, *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 2175-2178.

Johnson, C. E., Stevenson, D. S., Collins, W. J. & Derwent, R. G., 2001: Role of climate feedback on methane and ozone studied with a coupled Ocean- Atmosphere – Chemistry model. *Geophys. Res. Lett*, **28**, 1723-1726.

Kirk-Davidoff, D.B., Hintsa, E. J., Anderson, J. G.. & Keith, D. W., 1999: The effect of climate change on ozone depletion through changes in stratospheric water vapor. *Nature* **402**, 399 –402.

Krishnamurti, T. N., H. E. Fuelberg, M. C. Sinha, D. Oosterhof, E. L. Bensman, and V. B. Kumar, 1993: The meteorological environment of the tropospheric ozone maximum over the tropical South Atlantic Ocean, *J. Geophys. Res.*, **98**, 10,621 - 10,641.

Liu, S. C., D. Kley, M. McFarland, J. D. Mahlman, and H. Levy II, 1980: On the origin of tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, **85**, 7546 - 7552.

Logan, Jennifer A., 1994: Trends in the vertical distribution of ozone: An analysis of ozonesonde data, *J. Geophys. Res.* **99**, 25,553-25,585.

Logan, Jennifer A., 1999: An analysis of ozonesonde data for the troposphere: Recommendations for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, **104**, 16,115-16,149.

McPeters, R. D., G. J. Labow, and B. J. Johnson, 1997: A Satellite-derived ozone climatology for balloonsonde estimation of total column ozone, *J. Geophys. Res.*, **102**, 8875 - 8885.

Randel, William J., Richard S. Stolarski, Derek M. Cunnold, Jennifer A. Logan, M. J. Newchurch, Joseph M. Zawodny, 1999: Trends in the Vertical Distribution of Ozone, *Science* **285**, 1689-1692.

Raper, J. L., M. M. Kleb, D. J. Jacob, D. D. Davis, R. E. Newell, H. E. Fuelerg, R. J. Bendura, J. M. Hoell, and R. J. McNeal, 2001: Pacific Exploratory Mission in the Tropical Pacific: PEM-Tropics B, March - April 1999, *J. Geophys. Res.*, **106**, 32,401-32,425.

Reed, R. J. and C. L. Vlcek (1969), The annual temperature variation in the lower tropical stratosphere, J. Atmos. Sci., 26, 163-167.

Santer, B. D., R. Sausen, T. M. L. Wigley, J. S. Boyle, K. AchutaRao, C. Doutriaux, J. E. Hansen, G. A. Meehl, E. Roeckner, R. Ruedy, G. Schmidt, and K. E. Taylor, 2003: Behavior of tropopause height and atmospheric temperature in models, re-analyses, and observations: Decadal changes, *J. Geophys. Res.*, **108**, D1m 4002, ACL 1-1 to ACL 1-22.

Seidel, D. J., R. J. Ross, J. K. Angell, and g. C. Reid, 2001: Climatological characteristics of the tropical tropopause as revealed by radiosondes, *J. Geophys. Res.*, **106**, 7857-7878.

Stevenson, D. S., Johnson, C. E., Collins, W. J., Derwent, R. G.. & Edwards, J. M., 2000: Future estimates of tropospheric ozone radiative forcing and methane turnover – the impact of climate change. *Geophys. Res. Lett.* **27**, 2073- 2076.

Thompson, A. M., K. E. Pickering, D. P. McNamara, M. R. Schoeberl, R. D. Hudson, J. H. Kim, E. V. Browell, V. W. J. H. Kirchhoff, and D. E. Nganga, 1996: Where did tropospheric ozone over southern Africa and the tropical Atlantic come from in October 1992? Insights from TOMS, GTE/TRACE-A and SAFARI-92, *J. Geophys. Res.*, **101**, 24,251-24,278.

Thompson, A M., J. C. Witte, R. D. McPeters, S J. Oltmans, F. J. Schmidlin, J. A. Logan, M. Fujiwara, V. W. J. H. Kirchhoff, F. Posny, G. J. R. Coetzee, B. Hoegger, S. Kawakami, T. Ogawa, B. J. Johnson, H. Vomel, and G. Labow, 2003: Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998 - 2000 tropical ozone climatology: 1. Comparison with Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) and ground-based measurements, *J. Geophys. Res.*, **108**, D2, 8238, doi: 10,1029/2001JD000967.

Wang, Y. H., D. J. Jacob, and J. A. Logan, 1998: Global simulation of tropospheric O3-Nox-hydrocarbon chemistry, 3: Origin of tropospheric ozone and effects of non-methane hydrocarbons, *J. Geophys. Res.*, **103**, 10,757- 10,768.

World Meteorological Organization, 1957: Definition of the tropopause, *WMO bull.*, **6**, p.136.

Ziemke, J. R. and S. Chandra, 1999: Seasonal and interannual variability in tropical tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, **104**, 21,425 -21,442.

Seasonal Variations and Trend of Ozone Vertical Profiles over Taiwan

Kuang-Jung Hsu[1] Hsiu-Wu Chang[2]

[1]Department of Atmospheric Sciences, National Taiwan University
[2]Central Weather Bureau

(Manuscript received 15 July 2004 ; in final form 15 September 2004)

ABSTRACT

This study analyzes the ten-year ozonezonde data taken by the Central Weather Bureau from 1993 till 2002. With concurrent observations of meteorological information, results are quite interesting. There is an insignificant rise in the tropopause heights, +79 ± 206 m per decade. Temperature at the tropopause decreases at rate of 1.0 ±0.89 K per decade. Both are signs of troposphere warming. Values of tropospheric ozone are obtained by integrating the observed ozone partial pressure from surface up to the tropopause. This data set gave an insignificant decreasing trend of -0.60 ± 2.1 DU per decade.

Ozone profiles have distinct seasonal and annual variations. There are more than averaged ozone in the lower stratospheric summer, and less than average during winter. Variations in the troposphere are the opposite, more in the winter and less in the summer. Comparing with variations of temperature, there are negative correlations at same heights or different heights. These suggest the dynamic process drive the temperature change which in turn influence the ozone distribution in the atmosphere. It is more obvious when trend of ozone profiles compare with that of temperature, in lower stratosphere and troposphere. It is suggested that temperature change caused by global warming affect ozone vertical distribution. Due to highly variability of ozone, observations at one location may not be able to represent wider region. However, results from this study do match those predictions from GCM driven chemistry models. It suggests the importance of climate forcing on the ozone distribution in this area, and may explain the missing tropospheric ozone increase, and predict a much smaller warming from tropospheric ozone.

Key words: Tropospheric ozone, Vertical profile, Seasonal variations, Trend.